



**HAL**  
open science

# Etude de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires en régime nanoseconde

Anne Hildenbrand

► **To cite this version:**

Anne Hildenbrand. Etude de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires en régime nanoseconde. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paul Cézanne - Aix-Marseille III, 2008. Français. NNT: . tel-00411083

**HAL Id: tel-00411083**

**<https://theses.hal.science/tel-00411083v1>**

Submitted on 25 Aug 2009

**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.

**THÈSE**

pour obtenir le grade de **Docteur en Sciences**  
de l'Université Paul Cézanne — Aix-Marseille III

n° 2008AIX30055

**Étude de l'endommagement laser  
dans les cristaux non linéaires  
en régime nanoseconde**

soutenue publiquement le **18 novembre 2008** par

Anne Hildenbrand

**Spécialité** : Optique, Électromagnétique et Image  
**École Doctorale** : Physique et Sciences de la Matière

**Rapporteurs** : M. Hervé Bercegol  
M. Jacques Mangin  
**Examineurs** : M. Didier Pribat  
M. Fred Théodore  
**Directeurs de thèse** : M. Jean-Yves Natoli  
M. Frank Wagner



*A ma mère, à mon père,  
A mon frère Alain.*





# Table des matières

|   |          |
|---|----------|
| <b>Remerciements</b>  | <b>3</b> |
| <b>Notations utilisées</b>  | <b>4</b> |
| <b>Introduction</b>   | <b>8</b> |
| <b>1 Problématique de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires</b> | <b>9</b> |
| 1.1 Lasers de puissance et leurs domaines d'application                         | 10       |
| 1.1.1 Puissance laser : régime continu et régime pulsé                          | 10       |
| 1.1.2 Lasers continus   | 11       |
| 1.1.2.1 Laser à CO <sub>2</sub>   | 11       |
| 1.1.3 Lasers impulsionnels  | 11       |
| 1.1.3.1 Laser Nd:YAG  | 11       |
| 1.1.3.2 Laser Excimère  | 12       |
| 1.1.3.3 Laser Titane-Saphir   | 13       |
| 1.1.4 Cas de grands projets lasers  | 13       |
| 1.2 Introduction à l'endommagement laser  | 14       |
| 1.2.1 Intérêt de l'étude de l'endommagement laser dans les cristaux             | 14       |
| 1.2.2 Endommagement fonctionnel et endommagement physique                       | 16       |
| 1.3 Cas particuliers de problématiques de tenue au flux laser                   | 16       |
| 1.3.1 Projet spatial ChemCam  | 17       |
| 1.3.2 Projet Laser MégaJoule  | 19       |
| 1.4 Interaction laser-matière   | 22       |
| 1.4.1 Interaction thermique   | 22       |
| 1.4.2 Interaction photoélectronique   | 23       |
| 1.5 Origines et nature des centres précurseurs                                  | 23       |
| 1.5.1 Validation de la présence de centres précurseurs de l'endommagement laser | 24       |
| 1.5.2 Inclusions et impuretés   | 24       |
| 1.5.3 Défauts structuraux   | 25       |
| 1.5.4 Contaminants de surface   | 26       |
| 1.5.5 Rayures, fractures, rugosité et inhomogénéités de structure               | 26       |
| 1.5.6 Défauts de croissance dans les couches minces optiques                    | 27       |

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>2</b> | <b>Cristaux non linéaires pour l'utilisation laser</b>                           | <b>29</b> |
| 2.1      | Rôle des cristaux dans les cavités laser . . . . .                               | 30        |
| 2.1.1    | Place et choix des cristaux . . . . .  | 30        |
| 2.1.2    | Cas de l'utilisation en cellule électro-optique . . . . .                        | 31        |
| 2.1.3    | Cas de la conversion de fréquence . . . . .                                      | 32        |
| 2.2      | Structure, principales propriétés et applications des cristaux étudiés . . . . . | 33        |
| 2.2.1    | Cristaux de KTP ( $\text{KTiOPO}_4$ ) et RTP ( $\text{RbTiOPO}_4$ ) . . . . .    | 34        |
| 2.2.1.1  | Structure cristallographique . . . . .   | 34        |
| 2.2.1.2  | Principales propriétés physiques . . . . .                                       | 34        |
| 2.2.1.3  | Applications . . . . .   | 35        |
| 2.2.1.4  | Configurations d'utilisation . . . . .   | 36        |
| 2.2.2    | Cristaux de LBO ( $\text{LiB}_3\text{O}_5$ ) . . . . .                           | 37        |
| 2.2.2.1  | Structure cristallographique . . . . .   | 37        |
| 2.2.2.2  | Principales propriétés physiques . . . . .                                       | 38        |
| 2.2.2.3  | Applications . . . . .   | 38        |
| 2.2.2.4  | Configurations d'utilisation . . . . .   | 38        |
| 2.3      | Étapes de fabrication des cristaux . . . . .                                     | 39        |
| 2.3.1    | Croissance cristalline . . . . .   | 39        |
| 2.3.1.1  | Croissance de KTP et RTP . . . . .   | 39        |
| 2.3.1.2  | Croissance du LBO . . . . .  | 41        |
| 2.3.2    | Usinage et polissage des cristaux . . . . .                                      | 41        |
| 2.3.3    | Nettoyage et stockage . . . . .  | 43        |
| 2.3.4    | Traitements en couches minces optiques . . . . .                                 | 43        |
| <b>3</b> | <b>Méetrologie de l'endommagement laser</b>                                      | <b>47</b> |
| 3.1      | Méthodologie de caractérisation de la tenue au flux laser . . . . .              | 48        |
| 3.1.1    | Approche statistique . . . . .   | 48        |
| 3.1.1.1  | Procédure 1-on-1 . . . . .   | 49        |
| 3.1.1.2  | Procédure S-on-1 . . . . .   | 49        |
| 3.1.1.3  | Procédure R-on-1 . . . . .   | 50        |
| 3.1.2    | Approche globale : procédure Raster-scan . . . . .                               | 50        |
| 3.2      | Modèle statistique de l'endommagement laser . . . . .                            | 51        |
| 3.2.1    | Différents modèles de présence de précurseurs . . . . .                          | 51        |
| 3.2.2    | Développement du modèle gaussien . . . . .                                       | 54        |
| 3.2.3    | Analyse et interprétation des courbes d'endommagement . . . . .                  | 54        |
| 3.2.4    | Influence des différents paramètres sur la courbe de probabilité . . . . .       | 56        |
| 3.2.5    | Cas de plusieurs classes de précurseurs dans le matériau . . . . .               | 57        |
| 3.2.5.1  | Généralités dans le cas de deux populations de défauts . . . . .                 | 57        |
| 3.2.5.2  | Cas du cristal de KDP . . . . .  | 58        |
| 3.2.5.3  | Exemple d'un traitement antireflet . . . . .                                     | 58        |
| 3.2.6    | Conclusion sur l'intérêt du modèle gaussien . . . . .                            | 59        |
| 3.3      | Dispositif expérimental de mesure de tenue au flux laser . . . . .               | 60        |
| 3.3.1    | Présentation du banc . . . . .   | 60        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 3.3.2    | Détection des endommagements . . . . .                                       | 61         |
| 3.3.3    | Caractérisation des sources laser . . . . .                                  | 63         |
| 3.3.3.1  | Spécifications principales . . . . .   | 63         |
| 3.3.3.2  | Stabilité en énergie . . . . .   | 64         |
| 3.3.3.3  | Mesure du profil temporel . . . . .  | 65         |
| 3.3.3.4  | Détermination du profil spatial . . . . .                                    | 67         |
| 3.3.3.5  | Stabilité spatiale du faisceau . . . . .                                     | 69         |
| 3.3.4    | Incertitude sur la mesure de fluence . . . . .                               | 70         |
| 3.4      | Validation du dispositif expérimental . . . . .                              | 71         |
| 3.4.1    | Test de la métrologie sur la silice . . . . .                                | 71         |
| 3.4.2    | Répétabilité des mesures dans les cristaux . . . . .                         | 73         |
| <b>4</b> | <b>Spécificités de la caractérisation des cristaux non linéaires</b>         | <b>77</b>  |
| 4.1      | Problématiques de métrologie liées aux cristaux . . . . .                    | 78         |
| 4.2      | Optimisation de la matrice de test . . . . .                                 | 78         |
| 4.2.1    | Choix de la taille du faisceau de test . . . . .                             | 78         |
| 4.2.2    | Détermination du maillage spatial . . . . .                                  | 79         |
| 4.2.3    | Incertitude sur la mesure de la probabilité d'endommagement . . . . .        | 81         |
| 4.2.4    | Exploitation de la procédure de test S-on-1 . . . . .                        | 84         |
| 4.3      | Problèmes de modification de l'intensité maximale dans le cristal . . . . .  | 85         |
| 4.3.1    | Aberrations en faisceau focalisé . . . . .                                   | 85         |
| 4.3.2    | Walk-off . . . . .   | 91         |
| 4.3.3    | Autofocalisation . . . . .   | 93         |
| 4.4      | Génération "parasite" de seconde harmonique . . . . .                        | 96         |
| 4.5      | Anisotropie de la tenue au flux laser . . . . .                              | 97         |
| 4.6      | Conclusion . . . . .   | 99         |
| <b>5</b> | <b>Étude de l'endommagement laser dans le cas des cristaux de KTP et RTP</b> | <b>101</b> |
| 5.1      | Introduction . . . . .   | 102        |
| 5.2      | État de l'art sur le phénomène de gray-track . . . . .                       | 102        |
| 5.3      | Étude de la tenue au flux de surface du KTP . . . . .                        | 103        |
| 5.3.1    | Description des échantillons testés . . . . .                                | 103        |
| 5.3.2    | Endommagement du traitement antireflet et de la surface . . . . .            | 104        |
| 5.3.3    | Identification des précurseurs . . . . .                                     | 106        |
| 5.4      | Problème d'autofocalisation . . . . .  | 108        |
| 5.5      | Morphologie des endommagements en volume . . . . .                           | 111        |
| 5.6      | Influence de la croissance cristalline sur la tenue au flux laser . . . . .  | 113        |
| 5.6.1    | Corrélation entre l'absorption et l'endommagement laser . . . . .            | 114        |
| 5.6.1.1  | Description du cristal étudié . . . . .                                      | 114        |
| 5.6.1.2  | Mesures d'absorption . . . . .   | 114        |
| 5.6.1.3  | Corrélation avec l'endommagement laser . . . . .                             | 116        |
| 5.6.2    | Effet des procédés de croissance . . . . .                                   | 117        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 5.6.3    | Bilan de l'étude . . . . .   | 121        |
| 5.7      | Étude de la fatigue sous irradiation multiple à 1064 et 532 nm . . . . .                             | 121        |
| 5.8      | Anisotropie de l'endommagement laser . . . . .   | 125        |
| 5.8.1    | Effet de la direction d'irradiation et de la polarisation sur la tenue au flux du KTP . . . . .      | 125        |
| 5.8.2    | Comparaison entre les cristaux de KTP et RTP . . . . .   | 128        |
| 5.9      | Influence du mélange de longueurs d'onde 1064 et 532 nm . . . . .                                    | 129        |
| 5.9.1    | Effet de la génération de seconde harmonique sur l'endommagement du KTP . . . . .                    | 130        |
| 5.9.2    | Application au cas de la cellule de Pockels en RTP . . . . .   | 133        |
| 5.10     | Conclusion . . . . .   | 134        |
| <b>6</b> | <b>Étude de l'endommagement laser du LBO : cas d'un cristal à très haute tenue au flux</b> . . . . . | <b>137</b> |
| 6.1      | Contexte de l'étude . . . . .  | 138        |
| 6.1.1    | État de l'art sur l'effet des défauts présents dans le cristal . . . . .                             | 138        |
| 6.1.2    | Expériences préliminaires . . . . .  | 139        |
| 6.2      | Influence de la longueur d'onde sur la tenue au flux . . . . .                                       | 140        |
| 6.2.1    | Analyse des courbes d'endommagement laser . . . . .  | 140        |
| 6.2.2    | Morphologie des endommagements . . . . .   | 142        |
| 6.3      | Évolution de la tenue au flux laser sous irradiation multiple . . . . .                              | 143        |
| 6.4      | Effet de la polarisation et de la direction d'irradiation . . . . .                                  | 146        |
| 6.4.1    | Résultats à 1064 nm . . . . .  | 146        |
| 6.4.2    | Résultats à 532 nm . . . . .   | 149        |
| 6.4.3    | Résultats à 355 nm . . . . .   | 150        |
| 6.4.4    | Bilan sur l'anisotropie . . . . .  | 153        |
| 6.5      | Cas de la génération de seconde harmonique . . . . .   | 154        |
| 6.6      | Conclusion . . . . .   | 156        |
|          | <b>Conclusion</b> . . . . .  | <b>164</b> |
|          | <b>Annexes</b> . . . . .   | <b>164</b> |
| <b>A</b> | <b>Propriétés physiques et optiques des matériaux étudiés</b> . . . . .                              | <b>165</b> |
| A.1      | Cristaux non linéaires . . . . .   | 166        |
| A.1.1    | KTP . . . . .  | 166        |
| A.1.2    | RTP . . . . .  | 167        |
| A.1.3    | LBO . . . . .  | 168        |
| A.1.4    | KDP et DKDP . . . . .  | 169        |
| A.1.5    | Nd:KGW . . . . .   | 171        |
| A.2      | Silice Suprasil / Silice Herasil (Heraeus) . . . . .   | 173        |
|          | <b>Bibliographie</b> . . . . .   | <b>175</b> |

# Remerciements

Cette thèse a été effectuée au sein de l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance (MAP<sup>2</sup>) de l'Institut Fresnel (UMR 6133) à Marseille de 2005 à 2008 grâce à un financement de la Délégation Générale pour l'Armement (DGA).

Je tiens tout d'abord à exprimer mes plus sincères remerciements à M. Claude Amra et M. Hugues Giovannini, ancien et nouveau directeur de l'Institut Fresnel, pour m'avoir accueillie au sein du laboratoire.

Je remercie très vivement M. Hervé Bercegol, responsable du groupe transverse R&D des optiques pour le Laser MégaJoule au CEA/CESTA, et M. Jacques Mangin, directeur de recherche à l'Institut Carnot de Bourgogne, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, et pour l'attention et l'intérêt qu'ils y ont porté.

Je suis également très sensible à l'honneur que m'ont fait à M. Didier Pribat, directeur de recherche à l'Ecole Polytechnique, et M. Fred Theodore, responsable R&D croissance cristalline à Cristal Laser S.A. d'avoir participé à l'évaluation de ce travail.

J'exprime également toute ma gratitude à M. Bruno Desruelle, responsable du domaine scientifique optique et photonique à la DGA, pour avoir suivi avec intérêt l'avancement de mes travaux de thèse.

Ma reconnaissance va ensuite spontanément à mes directeurs de thèse : Jean-Yves Natoli, professeur à l'Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, et Frank Wagner, maître de conférences à l'Université Paul Cézanne Aix-Marseille III. Je voudrais ici les remercier profondément pour leur aide, leur disponibilité, leur bonne humeur et leur soutien. Tout au long de ces trois années, ils ont su me faire partager leur motivation. J'espère que ce travail constituera la meilleure preuve de la confiance qu'ils m'ont accordée.

Mes remerciements s'adressent également à Mireille Commandré, professeur à l'Ecole Centrale Marseille et responsable de l'équipe MAP<sup>2</sup>, pour m'avoir accueillie dans son équipe et m'avoir fait bénéficier de conditions de travail très favorables. Son expérience, son enthousiasme et ses conseils ont été très précieux tout au long de cette thèse.

Ce travail n'aurait pas été le même sans la bonne collaboration avec la société Cristal

Laser dont je tiens à remercier en particulier Dominique Lupinski, Marc-André Herrmann, Fred Theodore, Hervé Albrecht et Adrien Holvoet-Vermaut. Je les remercie pour les nombreux cristaux envoyés et pour nos fructueux échanges.

Une partie de cette thèse a été consacrée à l'étude de la tenue au flux laser de composants pour le projet spatial ChemCam. J'ai particulièrement apprécié de pouvoir participer à ce projet. Je tiens à remercier en particulier M. Éric Durand de la société Thales Laser et M. Benoît Faure du CNES.

J'ai apprécié également les différentes collaborations, notamment avec le CEA (merci à Bertrand Bertussi pour nos discussions sur le KDP) et avec la société CILAS Marseille (merci à Catherine Grezes-Besset et Hélène Krol).

Je souhaite également remercier Laetitia Abel-Tiberini, maître de conférences à l'Ecole Centrale Marseille, Hugues Giovannini et Hélène Perbet, professeurs à l'IUT Aix-Marseille III, pour m'avoir permis d'y effectuer des vacances qui m'ont beaucoup appris.

J'exprime enfin toute ma sympathie aux autres membres du groupe "Photonique de Puissance" avec qui j'ai eu grand plaisir à travailler durant ces trois années de thèse : Laurent Gallais, Hassan Akhouayri, Jérémie Capoulade et Stéphanie Palmier. Un merci particulier à Alessandra Ciapponi qui m'a si gentiment supportée dans le bureau. Je lui souhaite bonne chance pour la fin de sa thèse et pour la suite.

Je remercie également l'ensemble de l'Institut Fresnel, et tout particulièrement Jean-Pierre Spinelli pour les nombreuses pièces mécaniques réalisées.

Un grand merci aux doctorants à qui je souhaite bonne chance pour la suite de leur thèse, en particulier Marie Duchêne, Nadine Renard, Stéphane Reyné, Benoit Bussière.

Je voudrais exprimer également toute ma reconnaissance aux différents stagiaires qui ont participé à ce projet.

Mes remerciements vont aussi à l'Institut Franco-Allemand de recherches de Saint-Louis (ISL) pour me permettre de poursuivre mes travaux sous une orientation nouvelle.

J'adresse un énorme merci à mes amis qui m'ont toujours entourée dans les bons moments comme dans ceux plus difficiles : en particulier à Marie (en Alsace) et Karine (à Marseille), merci d'avoir toujours été là.

Pour finir, je ne saurais oublier de remercier de tout cœur l'ensemble de ma famille qui m'a toujours soutenue. J'adresse un grand merci en particulier à mes parents et à mon frère.

*Un merci tout spécial aux nombreux cristaux qui se sont sacrifiés au nom de la science...*

# Notations utilisées

|             |   |
|-------------|---|
| LIDT        | Seuil d'endommagement laser (Laser Induced Damage Threshold)  |
| Fluence $F$ | Densité d'énergie par unité de surface ( $\text{J}/\text{cm}^2$ )   |
| KTP         | Cristal non linéaire de formule $\text{KTiOPO}_4$   |
| RTP         | Cristal non linéaire de formule $\text{RbTiOPO}_4$  |
| LBO         | Cristal non linéaire de formule $\text{LiB}_3\text{O}_5$  |
| KDP         | Cristal non linéaire de formule $\text{KH}_2\text{PO}_4$  |
| DKDP        | Cristal non linéaire de formule $\text{KD}_x\text{H}_{2-x}\text{PO}_4$  |
| Nd:KGW      | Cristal de KGW dopé au Nd. Matériau actif laser de formule $\text{Nd:KGd}(\text{WO}_4)_2$   |
| Nd:YAG      | Cristal de YAG dopé au Nd. Matériau actif laser de formule $\text{Nd:Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  |
| SHG         | Génération de seconde harmonique  |
| THG         | Génération de troisième harmonique  |
| OPO         | Oscillateur paramétrique optique  |
| X-cut       | Orientation de coupe du cristal selon l'axe X (direction d'irradiation selon X)<br><i>La même notation est appliquée pour les autres directions d'irradiation.</i>                      |
| Y-pol       | Polarisation du faisceau incident selon l'axe Y<br><i>La même notation est utilisée pour les autres orientations de polarisation.</i>   |
| $n$         | Nombre de sites testés pour une fluence donnée  |
| $k$         | Nombre de sites endommagés à une fluence donnée   |
| $p$         | Probabilité d'endommagement. <i>A partir d'une mesure de <math>n</math> et <math>k</math>, on obtient une probabilité d'endommagement <math>p</math> telle que <math>p = k/n</math></i> |
| $T$         | Seuil de claquage des défauts, seuil d'endommagement  |
| $\rho$      | Densité de précurseurs dans le matériau   |
| $P_c$       | Puissance critique d'autofocalisation   |





# Introduction

Les lasers de puissance occupent aujourd'hui une place privilégiée dans de nombreux secteurs industriels et de recherche. Ils sont utilisés dans des domaines aussi variés que l'industrie (découpe, soudure, micro-usinage, marquage,...) ou la médecine (ophtalmologie, dermatologie, chirurgie,...), avec pour chaque application des besoins spécifiques. Afin de répondre à de nouvelles applications, les sources lasers sont en constante évolution pour augmenter leur puissance d'émission et leur intégration.

Un des freins à cet essor technologique est notamment l'endommagement des composants optiques soumis à de forts flux laser. Lorsqu'elle devient importante, cette dégradation physique des composants peut engendrer une détérioration de leurs fonctions optiques. Dès le développement des lasers, la communauté scientifique s'est appliquée à étudier l'endommagement des optiques afin de mieux comprendre l'origine du phénomène et ainsi permettre l'amélioration de la tenue au flux des matériaux par la modification des procédés de fabrication. Le congrès "Laser-Induced Damage in Optical Components" qui a lieu chaque année depuis 1969 à Boulder (Colorado, Etats-Unis) illustre l'importance accordée à cette thématique.

L'émergence de grands projets d'installation laser de très forte puissance tels que le Laser MégaJoule en France et le National Ignition Facility aux Etats-Unis, destinés à l'étude de la fusion thermo-nucléaire par confinement inertiel, ont permis de stimuler fortement les recherches sur le sujet. La résistance des matériaux sous flux laser intense est également un point particulièrement critique dans le cadre d'applications spatiales, où le remplacement de composants endommagés est impossible. Dans le contexte de ces travaux de thèse, nous pouvons citer le projet spatial ChemCam, qui doit permettre l'analyse à distance des roches martiennes par spectrométrie du plasma à partir d'une source laser pulsée compacte et de forte puissance.

Dans une chaîne laser, les éléments clés, tels que les barreaux laser, les cristaux de conversion de fréquence ou les cellules électro-optiques sont particulièrement concernés par les phénomènes d'endommagement et de vieillissement sous flux. Ces cristaux constituent alors souvent une limitation à l'utilisation de faisceaux lasers intenses. Par ailleurs, des effets non linéaires (génération de seconde harmonique, autofocalisation) peuvent également conduire à diminuer leur tenue au flux.

L'endommagement laser des matériaux diélectriques en régime nanoseconde fait l'objet de nombreux travaux de thèses réalisés à l'Institut Fresnel [1, 2, 3, 4, 5, 6, 7] qui s'est doté depuis plus de 10 ans d'outils expérimentaux et théoriques permettant de caractériser et de mieux comprendre l'origine du phénomène. En revanche, peu d'études ont été réalisées à ce jour sur la tenue au flux des cristaux non linéaires, exceptés sur les cristaux de KDP dans le cadre d'études relatives au projet Laser MégaJoule.

Cette thèse s'attache donc à l'étude de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires. Cette étude a été réalisée dans le cadre de multiples collaborations entre l'Institut Fresnel et la société Cristal Laser (Messein, 54), spécialiste de la croissance des cristaux, le CNES, la société Thales Laser et le CEA. Le travail présenté sera consacré essentiellement à la compréhension de l'origine de l'endommagement dans les cristaux de KTP, RTP et LBO développés par la société Cristal Laser et utilisés principalement pour la conversion de fréquence (KTP, LBO) et pour le fonctionnement en cellule électro-optique (RTP). De plus, nous présenterons des résultats sur des cristaux de KDP et des barreaux laser de Nd:KGW, obtenus respectivement dans le cadre des projets Laser MégaJoule (CEA) et ChemCam (CNES/Thales Laser).

Le chapitre 1 est une introduction aux problématiques de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires. Nous nous intéresserons tout d'abord aux différents types de lasers de puissance et leurs applications les plus courantes. Puis, nous définirons l'endommagement laser et les enjeux de ce travail. Nous présenterons le contexte de cette étude à travers deux cas particuliers de projets de lasers de puissance pour lesquels la tenue au flux joue un rôle essentiel. Enfin, après une description des interactions laser-matière, nous aborderons les différentes origines possibles de l'endommagement dans les composants optiques.

Le chapitre 2 est consacré aux cristaux non linéaires. Nous discuterons dans un premier temps du rôle et du choix des cristaux dans les cavités laser, en nous attachant en particulier aux applications électro-optiques et de conversion de fréquence. Dans un second temps, nous nous intéresserons à la structure cristallographique, aux principales propriétés physiques et applications des cristaux étudiés. Pour finir, nous présenterons les différentes étapes de fabrication de ces cristaux, allant du procédé de croissance cristalline au traitement en couches minces optiques.

Le chapitre 3 présente la métrologie de l'endommagement laser. Nous y exposerons tout d'abord les procédures expérimentales de caractérisation de tenue au flux des composants. Nous détaillerons également un modèle statistique afin de permettre l'interprétation des mesures d'endommagement. Par la suite, nous décrirons le dispositif expérimental développé pour réaliser cette étude. Finalement, la validation de la métrologie sera réalisée au moyen d'une étude d'endommagement laser dans la silice et de tests de répétabilité pour les différents cristaux étudiés.

Le chapitre 4 est dédié aux problèmes de métrologie spécifiques aux cristaux non linéaires. Dans un premier temps, compte tenu des petites dimensions et de la forte valeur ajoutée des cristaux, nous aborderons différents aspects pour optimiser la mesure statistique d'endommagement. Dans un second temps, nous verrons que les tests de tenue au flux peuvent être perturbés par la présence d'effets dus à la biréfringence (aberrations, walk-off) ou par des phénomènes non linéaires (autofocalisation, génération de seconde harmonique). Nous montrerons que l'anisotropie des paramètres physiques des cristaux peut engendrer une anisotropie du seuil de tenue au flux laser.

Dans le chapitre 5, nous nous intéresserons à l'endommagement laser dans les cristaux de KTP et RTP. Appartenant à la même famille cristallographique, le KTP est connu pour la génération de seconde harmonique des lasers Nd:YAG, tandis que le RTP est plutôt utilisé pour des applications électro-optiques. Nous dresserons tout d'abord un bref état de l'art sur le problème de "gray-track" dans ces cristaux. Une étude multi-paramètres sera réalisée afin de mieux comprendre l'origine de l'endommagement laser. Nous nous intéresserons dans un premier temps à l'influence des procédés de croissance cristalline sur la tenue au flux laser. Puis, nous observerons le comportement de fatigue sous irradiation multiple aux deux longueurs d'onde d'utilisation de 1064 et 532 nm. Nous caractériserons également les effets de la polarisation et de la direction d'irradiation laser sur la tenue au flux de ces cristaux. Pour finir, nous étudierons l'effet du mélange de longueurs d'onde 1064 + 532 nm sur le seuil d'endommagement laser. Nous nous attacherons alors en particulier à l'étude de la tenue au flux dans les cas d'utilisation fonctionnelle de ces cristaux pour la génération de seconde harmonique et l'application en cellule de Pockels.

Enfin, le chapitre 6 traitera du cas d'un cristal à très haute tenue au flux laser avec l'étude de l'endommagement dans le cristal de LBO. De par son domaine de transparence allant jusqu'à 160 nm et son seuil d'endommagement particulièrement élevé, ce cristal est un matériau de choix pour des applications de puissance dans l'UV. Nous présenterons tout d'abord un état de l'art sur l'endommagement du LBO, centré en particulier sur l'effet des défauts. Puis, des tests préliminaires nous permettront de définir les points critiques du composant et les paramètres pertinents pour l'étude à mener. De la même manière que pour les cristaux de KTP et RTP, nous étudierons l'influence sur la tenue au flux laser de la longueur d'onde, de la fatigue, de la polarisation et de la direction d'irradiation, afin de permettre d'appréhender les mécanismes responsables de l'endommagement. Pour finir, nous nous intéresserons au cas particulier de la génération de seconde harmonique.



# Chapitre 1

## Problématique de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires

### Sommaire

---

|   |           |
|---|-----------|
| <b>1.1 Lasers de puissance et leurs domaines d'application</b> . . . . .                  | <b>10</b> |
| 1.1.1 Puissance laser : régime continu et régime pulsé . . . . .                          | 10        |
| 1.1.2 Lasers continus . . . . .   | 11        |
| 1.1.3 Lasers impulsionnels . . . . .  | 11        |
| 1.1.4 Cas de grands projets lasers . . . . .  | 13        |
| <b>1.2 Introduction à l'endommagement laser</b> . . . . .                                 | <b>14</b> |
| 1.2.1 Intérêt de l'étude de l'endommagement laser dans les cristaux . . . . .             | 14        |
| 1.2.2 Endommagement fonctionnel et endommagement physique . . . . .                       | 16        |
| <b>1.3 Cas particuliers de problématiques de tenue au flux laser</b> . . . . .            | <b>16</b> |
| 1.3.1 Projet spatial ChemCam . . . . .  | 17        |
| 1.3.2 Projet Laser MégaJoule . . . . .  | 19        |
| <b>1.4 Interaction laser-matière</b> . . . . .  | <b>22</b> |
| 1.4.1 Interaction thermique . . . . .   | 22        |
| 1.4.2 Interaction photoélectronique . . . . .   | 23        |
| <b>1.5 Origines et nature des centres précurseurs</b> . . . . .                           | <b>23</b> |
| 1.5.1 Validation de la présence de centres précurseurs de l'endommagement laser . . . . . | 24        |
| 1.5.2 Inclusions et impuretés . . . . .   | 24        |
| 1.5.3 Défauts structurels . . . . .   | 25        |
| 1.5.4 Contaminants de surface . . . . .   | 26        |
| 1.5.5 Rayures, fractures, rugosité et inhomogénéités de structure . . . . .               | 26        |
| 1.5.6 Défauts de croissance dans les couches minces optiques . . . . .                    | 27        |

---

## 1.1 Lasers de puissance et leurs domaines d'application

De nombreux types de lasers différents existent : lasers à solide, lasers à colorant, lasers à gaz, diodes laser, et plus récemment les lasers à fibre. Dans notre étude, nous nous intéressons uniquement aux lasers de puissance pour lesquels des endommagements sont susceptibles d'apparaître sur les optiques des systèmes, freinant ainsi les avancées technologiques. Certains de ces lasers sont devenus des outils incontournables de l'industrie (laser CO<sub>2</sub>, laser Nd:YAG, laser excimère), tandis que d'autres sont encore au stade du développement en laboratoire de recherche (laser à impulsions ultra-brèves). Cette partie présente de manière non exhaustive les principaux lasers de puissance existants associés à leurs applications les plus courantes. Nous concluons en présentant des grands projets actuels de lasers.

### 1.1.1 Puissance laser : régime continu et régime pulsé

Deux types de fonctionnement des lasers peuvent être distingués : le régime continu et le régime pulsé (figure 1.1). La puissance d'un laser est définie par la quantité d'énergie qu'il peut délivrer par unité de temps. Dans le cas d'un régime continu, la puissance ne dépasse que très rarement quelques dizaines de kilowatts. En revanche, dans le cas d'un régime pulsé, cette même énergie est concentrée dans une impulsion d'une durée plus ou moins courte selon les lasers (allant de la microseconde à la femtoseconde<sup>1</sup>). La puissance crête atteinte peut alors être extrêmement élevée (atteignant le pétawatt<sup>2</sup>).

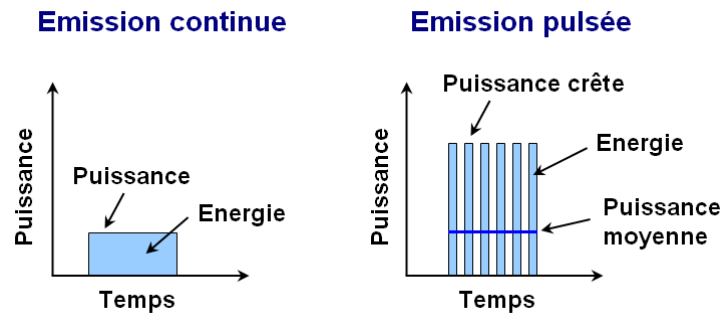


FIG. 1.1 – Représentation schématique de la puissance d'un laser en mode continu (à gauche) et en mode pulsé (à droite).

<sup>1</sup> Des impulsions d'une centaine d'attosecondes ont été obtenues très récemment (1 attoseconde = 10<sup>-18</sup> seconde)

<sup>2</sup> En mai 1996, le laser Nova au Lawrence Livermore National Laboratory (Etats-Unis) a atteint plus d'un pétawatt de puissance (1 pétawatt = 10<sup>15</sup> watt). En France, un laser pétawatt nommé "PETAL" est en cours de construction. Cet ensemble est considéré comme un "démonstrateur" destiné à tester les technologies qui seront utilisées pour le futur projet HiPER (cf. section 1.1.4).

## 1.1.2 Lasers continus

### 1.1.2.1 Laser à CO<sub>2</sub>

Le laser à CO<sub>2</sub> [8] émet dans l'infrarouge lointain (à 10,6 et 9,6  $\mu m$ ). Son milieu actif est constitué d'un mélange gazeux à basse pression composé de CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> et He. Le pompage est alors réalisé par décharge électrique. Ce type de laser fonctionne généralement en mode continu. Avec un rendement élevé (supérieur à 10 %), il peut fournir un faisceau laser atteignant des puissances de l'ordre de quelques dizaines de kilowatts.

De part la grande maîtrise de son fonctionnement et ses nombreuses applications, il est actuellement le laser de prédilection dans le milieu industriel. Il est utilisé pour le traitement de surface, la soudure et la découpe de métaux, matières plastiques et verres. Il présente néanmoins certains inconvénients :

- un encombrement souvent important malgré les efforts des constructeurs
- un couplage faible du rayonnement avec les métaux
- l'impossibilité d'utiliser un mode de transport du faisceau par fibre optique
- une focalisation limitée de part sa longueur d'onde élevée

Notons que ce type de laser est utilisé pour effectuer des "réparations" de dommages laser dans la silice par fusion / évaporation locale. Le principe de base est de fondre la partie endommagée par irradiation avec un laser à CO<sub>2</sub> afin de faire disparaître les fractures induites par l'endommagement laser et ainsi bloquer le processus de croissance sous flux [9].

Le laser à CO<sub>2</sub> peut également fonctionner en mode impulsionnel. Ses applications sont alors surtout militaires. Cependant, il est également utilisé dans le domaine civil pour le secteur médical (dentisterie, dermatologie), ou la détection de polluants atmosphériques par la technique LIDAR (Light Detection And Ranging).

## 1.1.3 Lasers impulsionnels

### 1.1.3.1 Laser Nd:YAG

Le laser Nd:YAG constitue un des types les plus communs de laser, émettant dans le proche infrarouge à 1064 nm. Notons qu'il est possible d'accéder aux harmoniques 532, 355 et 266 nm par conversion de fréquence. Le milieu amplificateur est un barreau de grenat d'aluminium et d'yttrium (Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>) dopé par des ions néodyme Nd<sup>3+</sup>. Le pompage optique est assuré par lampes flash ou diodes. Ces lasers fonctionnent essentiellement en mode impulsionnel (déclenché ou relaxé). En régime déclenché (Q-switched), ils délivrent des impulsions de puissance crête très élevée de l'ordre du gigawatt dont la durée d'impulsion varie de quelques nanosecondes à plus de 700 ns. En mode relaxé, les impulsions peuvent atteindre des énergies de quelques joules pour des durées d'impulsions de 0,1 à 20 ms.



Dans l'industrie, le laser Nd:YAG est massivement présent dans la métallurgie pour la découpe, le perçage et la soudure d'acier et de super-alliage. Il est également employé comme outil de gravure sur de nombreux métaux et plastiques ou pour le marquage subsurface dans les matériaux transparents, tels que les verres. D'autre part, ces lasers sont largement utilisés dans le domaine de la médecine esthétique : l'épilation par laser, l'élimination de tatouages, ou le traitement de lésions vasculaires mineures. Ces lasers sont aussi couramment utilisés en ophtalmologie comme moyen de traitement des post-cataractes ou de glaucome aigu.

### 1.1.3.2 Laser Excimère

Le laser excimère est un laser à gaz émettant uniquement en mode impulsionnel dans l'UV entre 157 nm et 351 nm selon le mélange gazeux utilisé. Le milieu est composé d'un gaz rare (Ar, Xe, Kr) et d'un halogène (F, Cl). Son fonctionnement repose sur la formation de molécules excitées [ $F_2$  ( $\lambda = 193$  nm), ArF ( $\lambda = 193$  nm), KrF ( $\lambda = 248$  nm), XeCl ( $\lambda = 308$  nm), XeF ( $\lambda = 351$  nm)] grâce à une décharge électrique. Les énergies délivrées sont de l'ordre du Joule et les durées d'impulsions varient entre 10 et 150 ns pour une fréquence d'émission pouvant atteindre quelques kHz.

Le laser excimère présente de nombreux avantages. Grâce à une longueur d'onde courte, et à des effets thermiques très limités, il permet de faire de la gravure avec une résolution spatiale sub-micronique. La figure 1.2 présente des masques en 3 dimensions obtenus par gravure d'une résine photosensible au moyen d'un laser KrF.

Ce type de laser est aussi très utilisé en chirurgie de l'œil pour corriger les troubles de la vision (myopie, presbytie, astigmatisme).

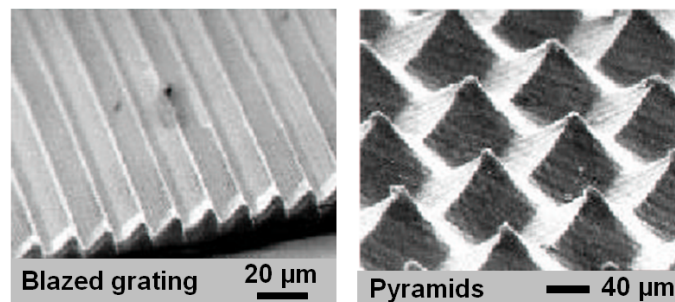


FIG. 1.2 – Gravure 3D de résine photosensible par laser excimère (KrF) [10].

Le principal défaut de ces sources est qu'elles présentent une stabilité limitée d'une impulsion à l'autre, ce qui freine leur développement industriel.

### 1.1.3.3 Laser Titane-Saphir

Le laser titane-saphir est le plus utilisé pour générer des impulsions en régime femtoseconde. Le milieu actif est un cristal de saphir dopé par des ions titane ( $\text{Ti}^{3+}:\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Il peut émettre sur un spectre allant de 700 à 1080 nm et est le plus souvent utilisé à 800 nm.

Contrairement aux lasers précédents, l'interaction laser-matière est athermique (cf. section 1.4.2) en régime femtoseconde, ce qui lui confère des propriétés très intéressantes pour des applications industrielles. En effet, le matériau n'étant plus chauffé par le laser, la découpe est plus précise et ses bords plus nets. La figure 1.3 illustre la comparaison du régime nanoseconde et femtoseconde par le perçage d'un trou dans une plaque en acier. Cette découpe "propre" est également très intéressante dans le domaine médical, en particulier pour la chirurgie de l'œil ou du cerveau, car elle n'altère pas le voisinage de la zone traitée.

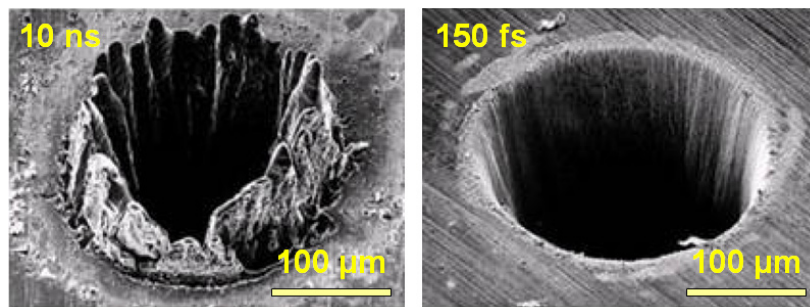


FIG. 1.3 – Comparaison du perçage d'une plaque d'acier effectué en régime nanoseconde (à gauche) et en régime femtoseconde (à droite).

### 1.1.4 Cas de grands projets lasers

Plusieurs grands projets internationaux d'installations lasers de très forte puissance sont actuellement en cours. Nous pouvons citer en particulier les lasers de puissance pour la fusion par confinement inertiel : en régime nanoseconde, les projets américain NIF (National Ignition Facility) [11, 12] et français LMJ (Laser MégaJoule) [13, 14, 15] lasers basés sur la technologie verre dopé au néodyme pompé par lampes flash (cf. section 1.3.2), et en régime picoseconde, le projet européen HiPER (High Power laser Energy Research facility) [16]. Dans le domaine des impulsions ultra-courtes, notons également les projets français ILE (Institut de la Lumière Extreme) et européen ELI (Extreme Light Infrastructure) pour l'étude de la physique à des énergies extrêmes [17, 18, 19].

Le laser est une technologie également utilisée depuis peu dans des programmes spatiaux. Ces lasers sont soumis à de fortes contraintes environnementales et à des conditions

extrêmes en terme de densité d'énergie (source compacte<sup>3</sup>) et de durée de vie. Nous pouvons notamment citer le projet spatial ChemCam (Chemistry Camera) pour l'analyse à distance de la composition des roches martiennes [20, 21] (cf. section 1.3.1) ou encore l'instrument spatial européen ALADIN (Atmospheric Laser Doppler Instrument) qui est un LIDAR Doppler embarqué sur satellite pour mesurer la vitesse du vent de haute altitude avec une précision de 2 m/s [22].

## 1.2 Introduction à l'endommagement laser

### 1.2.1 Intérêt de l'étude de l'endommagement laser dans les cristaux

Le développement de lasers de plus en plus puissants et compacts conduit à considérer la tenue au flux laser comme une spécification incontournable des composants optiques. Les cristaux non linéaires, tels que les barreaux laser (Nd:YAG, Nd:KGW), les cristaux de conversion de fréquence (KTP, KDP, LBO) ou les cellules électro-optiques (RTP, DKDP), constituent les principaux éléments optiques d'une chaîne laser. Ces matériaux sont parmi les plus concernés par les phénomènes d'endommagement et de vieillissement sous flux laser intense.

La figure 1.4 illustre quelques exemples d'endommagements laser obtenus sur des cristaux non linéaires observés par microscopie optique en contraste interférentiel. Elle présente également pour comparaison un dommage en volume d'un substrat de silice (figure 1.4(a)). Comme nous pouvons l'observer, les morphologies sont très différentes pour les divers cas (surface, traitement optique, volume) :

- (a) Brisure non orientée en volume d'une silice et visualisation des contraintes engendrées
- (b) Clivage selon les axes cristallins en volume d'un cristal de KTP
- (c) Propagation en face arrière d'un endommagement en volume dans un cristal de KDP
- (d) Écaillage en face arrière d'un cristal de KTP
- (e) Cratère et brûlure de plasma du traitement antireflet Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub> en face avant d'un cristal de RTP
- (f) Délamination de la couche miroir ZrO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> en face arrière d'un barreau de Nd:KGW

---

<sup>3</sup> Dans des systèmes lasers compacts, la densité d'énergie atteinte peut être très grande, car l'énergie est concentrée sur de très petites dimensions. Des problèmes d'endommagements de composants peuvent alors apparaître.

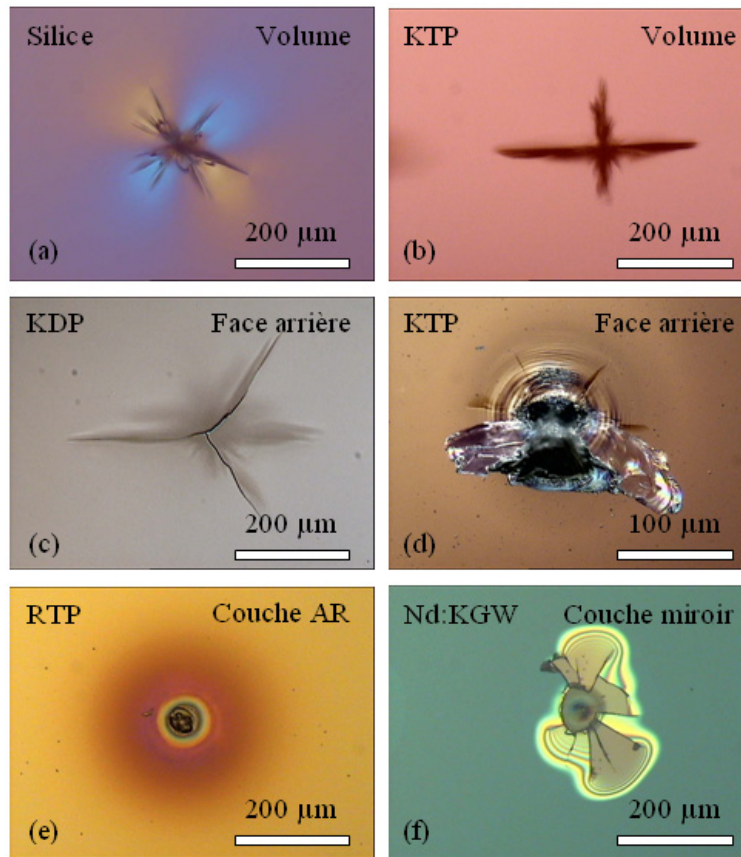


FIG. 1.4 – Morphologies d’endommagements par laser à 1064 nm de composants optiques : (a) Brisure non orientée en volume d’une silice et visualisation des contraintes engendrées, (b) Clivage selon les axes cristallins en volume d’un cristal de KTP, (c) Propagation en face arrière d’un endommagement en volume dans un cristal de KDP, (d) Écaillage en face arrière d’un cristal de KTP, (e) Cratère et brûlure de plasma du traitement antireflet  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  en face avant d’un cristal de RTP, (f) Délamination de la couche miroir  $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$  en face arrière d’un barreau de Nd:KGW.

Présentant généralement une assez faible tenue au flux laser, par rapport à la silice, les cristaux non linéaires apparaissent souvent comme les matériaux limitant l’utilisation de flux laser intenses. Par ailleurs, des effets non linéaires propres aux cristaux (génération de seconde harmonique, autofocalisation) peuvent constituer les mécanismes responsables de l’endommagement et ainsi diminuer leur tenue au flux (voir chapitre 4). Dans ce contexte, il est nécessaire de réaliser une étude systématique afin de mieux comprendre les phénomènes d’endommagement dans les cristaux dans l’objectif d’améliorer leur résistance au flux laser par la modification des procédés de fabrication. D’autre part, la caractérisation de la tenue au flux des composants permettra d’augmenter la fiabilité des nouveaux systèmes lasers en prenant en compte les seuils d’endommagement déterminés.

Nous pouvons dès à présent remarquer que, de par les propriétés spécifiques aux cristaux (non linéarité, biréfringence), l'étude de la tenue au flux laser est plus complexe que dans le cas de matériaux amorphes. De plus, ces composants sont très coûteux et souvent de petites dimensions, nécessitant alors l'optimisation de la mesure destructive de l'endommagement laser (voir chapitre 4).

### 1.2.2 Endommagement fonctionnel et endommagement physique

Du point de vue de l'utilisateur, l'endommagement laser fonctionnel d'un composant correspond à une modification permanente due à un flux laser intense de ses propriétés optiques (transmission, diffusion) généralement associée à une dégradation du front d'onde. Un changement permanent de l'indice de réfraction par exemple peut être considéré comme un dommage. Le critère d'endommagement ainsi défini dépend fortement des performances fixées par l'utilisateur. Une telle approche ne peut donc pas être retenue pour une étude systématique de l'endommagement. En revanche, ce critère a l'avantage de répondre à des spécifications nominales moins sévères qu'un endommagement physique pour des applications courantes de lasers de puissance.

L'endommagement fonctionnel est alors distingué de l'endommagement physique, défini comme la plus petite modification irréversible détectable d'un matériau causée par une irradiation laser, d'après la norme ISO 11254 établie en 2000 [23, 24]. La fonction optique n'est plus prise en compte, seule la modification physique du matériau importe. Ce critère est cependant dépendant de la sensibilité de la méthode de détection. Une modification visible par exemple avec un microscope à force atomique peut ne pas être détectable avec un microscope optique classique. En toute rigueur, les mesures de tenue au flux laser effectuées selon ce critère ne sont donc pas absolues, mais tendent à s'en rapprocher le plus possible. La norme ISO définit alors la limite détectable à la plus petite modification vue au microscope optique en mode Nomarski avec un grossissement  $\times 100$ . Nous retiendrons cette définition pour notre étude systématique de l'endommagement laser.

## 1.3 Cas particuliers de problématiques de tenue au flux laser

La résistance des matériaux sous flux laser intense est un point particulièrement critique dans le cadre d'applications spatiales, ainsi que dans des grands projets d'installation laser de très forte puissance. Nous les illustrerons respectivement par le projet spatial ChemCam et le projet Laser MégaJoule sur lesquels nous avons pu collaborer. Nous allons voir que pour chacun de ces deux cas de lasers de puissance, les problématiques de tenue au flux sont bien spécifiques.

### 1.3.1 Projet spatial ChemCam

L'étude de la tenue au flux des matériaux est particulièrement importante pour des lasers de puissance dans des applications spatiales, car le remplacement d'un composant optique endommagé est impossible une fois la mission lancée. Dans cette partie, nous discuterons des problématiques d'endommagement laser liées au projet spatial ChemCam (Chemistry Camera) mené par le CNES (Centre Nationale d'Études Spatiales).

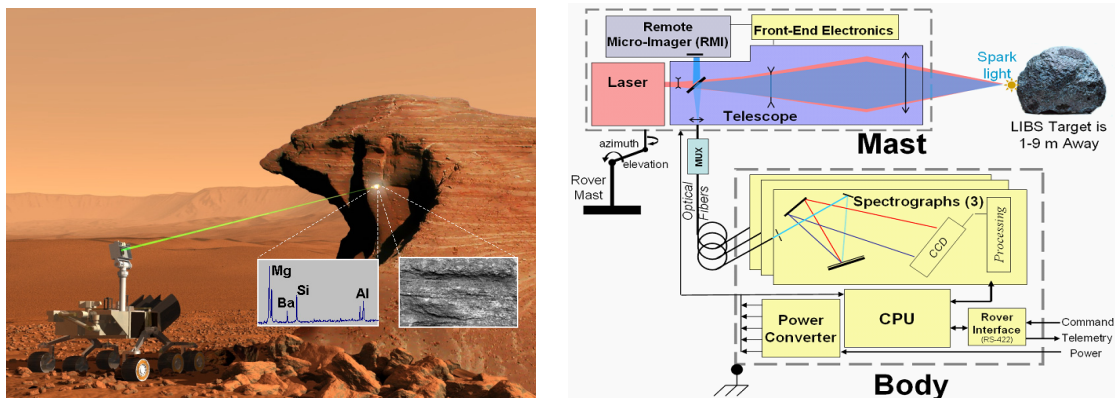


FIG. 1.5 – Vue d'artiste (*à gauche*) et schéma du fonctionnement (*à droite*) de l'instrument ChemCam. Il permettra l'analyse à distance de roches martiennes par spectrométrie du plasma à partir d'une source laser pulsée.

### Mission Mars Science Laboratory 2009

Le projet ChemCam fait partie de la mission Mars Science Laboratory 2009 (MSL-09) de la NASA (National Aeronautics and Space Administration). Cette mission destinée à l'exploration de la planète Mars a pour principaux objectifs de :

- Déterminer si la vie a pu exister sur Mars
- Caractériser le climat et la géologie de Mars
- Préparer l'exploration humaine

Pour mener à bien cette mission, un véhicule (rover)<sup>4</sup> équipé de dix instruments scientifiques sera lancé en septembre/octobre 2009 et arrivera sur Mars après un peu moins d'un an de croisière. Il permettra une exploration approfondie de la planète sur une zone de grande dimension (capacité de déplacement de 20 km). Pendant au minimum deux ans (correspondant à une année martienne<sup>5</sup>), il analysera les roches, les sols et l'atmosphère martiens.

<sup>4</sup> masse du rover : 775 kg / masse charge utile scientifique : 70 kg

<sup>5</sup> 1 an martien = 687 jours terrestres



## Instrument ChemCam

Un des instruments phare du rover est l'instrument ChemCam (Chemistry Camera) du CNES [20]. Il permettra de réaliser à distance l'analyse élémentaire des roches et des sols martiens (figure 1.5). Il met en oeuvre la technique LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy) d'analyse spectroscopique induite par ablation laser. Un laser de puissance pulsé tire sur une cible jusqu'à 9 mètres de distance, à une densité de puissance de  $1 \text{ GW/cm}^2$ . Il en résulte la fusion du matériau et l'apparition d'un plasma. La lumière issue du plasma est analysée par spectroscopie UV-visible (entre 250 et 800 nm). Ce dispositif est couplé à une micro-caméra pour former une image haute résolution de la cible autour de 750 nm.

Jamais embarquée sur Mars, cette nouvelle technique permettra d'une part de faire une première analyse sélective des roches environnantes sans déplacement du rover et d'autre part d'analyser des échantillons dans des endroits inaccessibles au rover tels que le fond de cratères très riche en sédiments.

## Laser ChemCam

Un des enjeux de cet instrument est le laser de puissance. Conçu par la société Thalès Laser, il s'agit d'un laser pulsé non injecté à 1067 nm délivrant 30 mJ pour une durée d'impulsion de 6-7 ns [21, 25]. Son mode de fonctionnement consiste en des séquences de tirs de 10 secondes à 10 Hz toutes les 5 minutes. Le schéma du design de la cavité est présenté sur la figure 1.6. Le milieu actif est un barreau de Nd:KGW pompé par une barrette de diodes à 808 nm. La commutation est effectuée grâce à une cellule électro-optique en RTP. L'amplification est effectuée par un mono-passage à travers 2 slabs de Nd:KGW également pompés par des diodes à 808 nm.

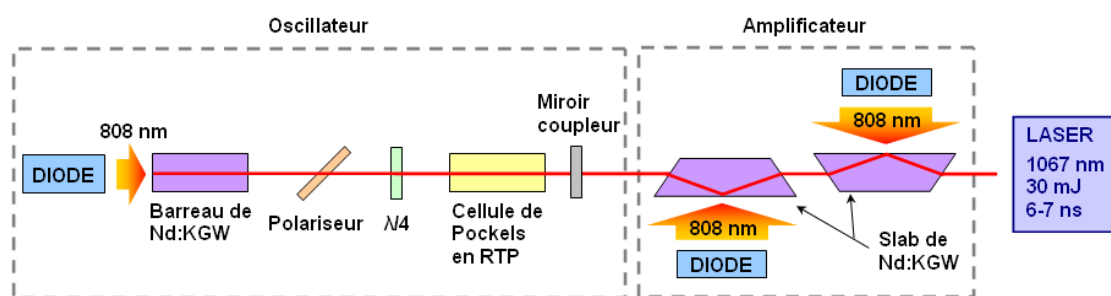


FIG. 1.6 – Schéma du design de la cavité du laser ChemCam.

Le choix technologique des cristaux pour ce projet s'est porté sur le RTP pour le fonctionnement en cellule électro-optique et sur le Nd:KGW pour le matériau à activité

laser (cf. annexe A). Le cristal de RTP a été choisi pour le fonctionnement en cellule de Pockels, car il permet la modulation de phase électro-optique à très basse tension (voir chapitre 2). Pour le matériau amplificateur, le cristal de Nd:KGW a été préféré au cristal plus connu de Nd:YAG pour sa large bande d'absorption, car les variations thermiques que voit le laser entraînent de fortes variations en longueur d'onde des diodes de pompage. De plus par rapport à son homologue, il présente une efficacité<sup>6</sup> quasiment deux fois plus grande et un seuil laser<sup>7</sup> plus bas [26].

#### Problématique de la tenue au flux laser

Pour des raisons de coût et de poids du système, les composants optiques sont de petites dimensions, typiquement d'une ouverture de  $5 \times 5$  mm. Cependant, cette miniaturisation augmente la densité d'énergie du faisceau traversant les optiques. Dans de telles conditions d'utilisation en puissance et en durée (2 ans), l'étude de la tenue au flux laser est un point important du projet. Elle doit en outre considérer l'ensemble des contraintes environnementales que subissent les composants lors de la mission [27] :

- irradiations gamma et protons (dose ionisante : 3,2 krad)
- contraintes thermiques (cycles entre  $-55^{\circ}\text{C}$  et  $+70^{\circ}\text{C}$  avec une pente de  $5^{\circ}\text{C}/\text{minute}$ )
- optiques sous vide pendant la croisière terre-mars pouvant engendrer une contamination (dégazage des colles)

Les problématiques de tenue au flux sont alors orientées sur l'influence de l'environnement et de la fatigue sous irradiation multiple ( $10^6$  tirs). Les composants critiques du laser sont les cristaux de Nd:KGW et de RTP ainsi que leurs traitements optiques. L'expertise de la tenue au flux laser que nous avons effectuée dans le cadre d'un contrat d'études CNES/Thalès Laser [28, 29, 30], a permis de déterminer leur seuil d'endommagement et leur comportement en fatigue. Cette caractérisation a abouti à des choix technologiques puis à la qualification<sup>8</sup> sous les contraintes environnementales et de vieillissement sous flux laser des composants retenus pour le modèle de vol. L'ensemble des verrous a pu être levé au cours de cette étude et les composants retenus ont été validés pour l'utilisation dans les conditions fonctionnelles.

#### 1.3.2 Projet Laser MégaJoule

Un autre exemple de laser de puissance pour lequel l'étude de la tenue au flux est essentielle est le projet Laser MégaJoule (LMJ) mené par le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique).

---

<sup>6</sup> L'efficacité est définie par le rapport entre la puissance de pompe et la puissance d'émission laser.

<sup>7</sup> Le seuil laser représente la puissance de pompe minimale pour l'apparition d'une émission laser.

<sup>8</sup> Test de qualification :  $10^5$  tirs laser à  $2,5 \text{ J}/\text{cm}^2$  après irradiation  $\gamma$  et cyclage thermique de  $-50^{\circ}\text{C}$  à  $+45^{\circ}\text{C}$



## Présentation du projet

Véritable challenge technologique, ce projet est une installation laser de très grande dimension, qui constituera avec son homologue américain, le NIF (National Ignition Facility), le laser le plus énergétique existant [15, 13]. Il permettra (mise en service prévue en 2011) de produire expérimentalement les conditions de température et de pression nécessaires à la fusion thermo-nucléaire par confinement inertiel. L'enjeu est d'apporter une énergie de 1,8 MJ en quelques nanosecondes à un mélange d'atomes de deutérium et de tritium contenu dans une capsule en or de quelques millimètres. Pour atteindre une telle énergie, 240 faisceaux lasers UV de section carrée de  $40 \times 40$  cm seront focalisés sur la cible. Cette énergie devra permettre de réaliser la fusion du mélange, libérant une énergie 10 fois supérieure à celle apportée.

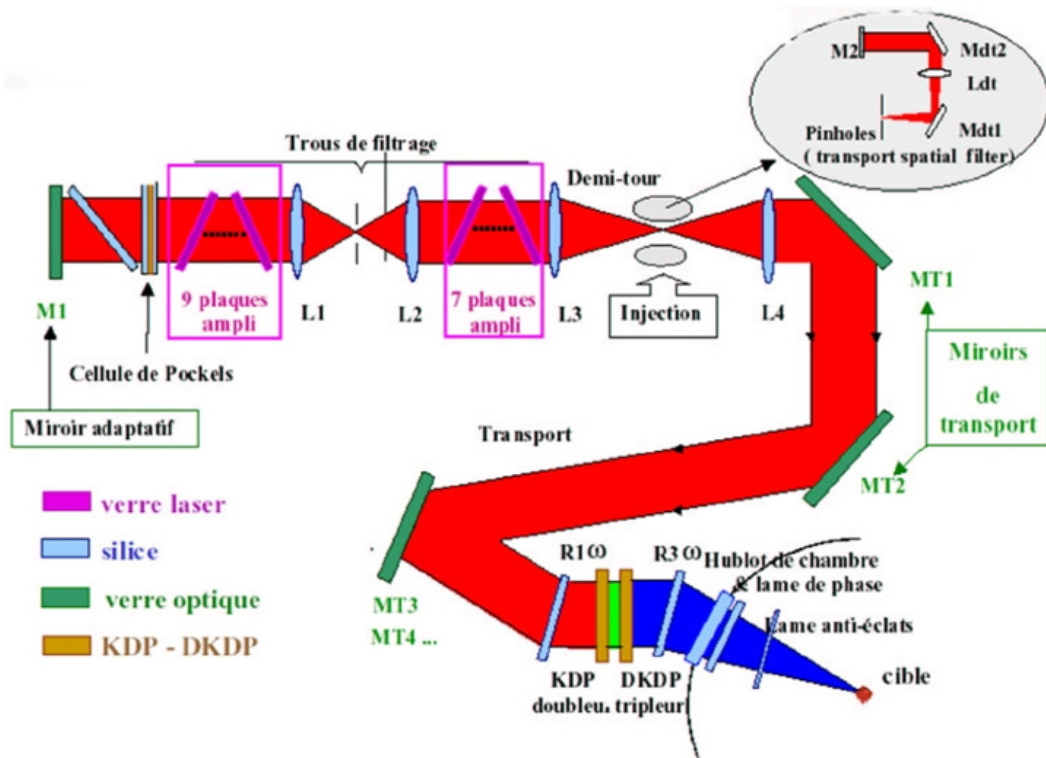


FIG. 1.7 – Schéma de l'architecture d'une ligne laser de la LIL (Ligne d'Intégration Laser), prototype du Laser MégaJoule.

La figure 1.7 présente l'architecture d'une des 240 lignes laser. La source laser est constituée d'un oscillateur monomode pompé par diode qui permet d'obtenir l'impulsion laser initiale à 1053 nm de très faible énergie (quelques nanojoules). Une série de 18 plaques amplificatrices (verre dopé au néodyme) permet ensuite d'augmenter considérablement

l'énergie du faisceau. Le faisceau laser de section  $40 \times 40$  cm possède alors une énergie de l'ordre de 15 à 20 kJ. Après une phase de transport, la dernière étape consiste à convertir ce faisceau infrarouge à 1053 nm en un rayonnement UV à 351 nm. Le faisceau UV est ensuite focalisé à travers des hublots de silice dans la chambre d'expérience maintenue sous vide.

|   |                      |
|---|----------------------|
| Plaques amplificatrices (verre dopé au néodyme) | 4 320                |
| Lampes Flash                                    | 10 800               |
| Cristaux de KDP et DKDP                         | 720                  |
| Verre (silice)                                  | 66 tonnes            |
| Surface des miroirs                             | 4 000 m <sup>2</sup> |

TAB. 1.1 – Quelques chiffres concernant les éléments optiques nécessaires pour le fonctionnement du Laser Megajoule.

Le tableau 1.1 donne un aperçu de l'ampleur du projet à travers le nombre et la dimension des composants optiques nécessaires pour le fonctionnement des 240 lignes du Laser MegaJoule, constituant un véritable challenge technologique. Le choix d'optiques de grandes dimensions est indispensable afin de diminuer au maximum la densité d'énergie du faisceau. En effet, aucun matériau ne permet actuellement de réaliser des performances semblables dans des dimensions plus réduites.

Notons qu'un prototype à l'échelle 1 nommé LIL (Ligne d'Intégration Laser) fonctionne déjà au CEA/CESTA. Il est constitué de quatre lignes lasers. Il permet à la fois d'évaluer les performances d'une telle architecture et de mettre en évidence les problèmes inhérents à ce type de laser de puissance, notamment en terme de tenue au flux des composants optiques.

### Problématique de la tenue au flux laser

Les énergies lasers atteintes dans ce projet sont considérables et engendrent nécessairement des problèmes de tenue au flux des optiques. Aujourd'hui, les avancées technologiques, notamment au niveau des traitements optiques des miroirs de transport, ont permis de résoudre un grand nombre de difficultés. Cependant, des problèmes d'endommagement laser demeurent en fin de chaîne laser (domaine UV), essentiellement au niveau des cristaux de KDP et DKDP pour la conversion de fréquence.

Ces cristaux sont utilisés dans ce projet pour la génération de seconde (KDP) et troisième harmonique (DKDP), ainsi que pour l'utilisation en cellule de Pockels (DKDP) (cf. annexe A).

| Longueur d'onde<br>(nm) | Durée d'impulsion<br>(ns) | Fluence moyenne<br>(J/cm <sup>2</sup> ) | Fluence maximale<br>(J/cm <sup>2</sup> ) |
|-------------------------|---------------------------|---|--|
| 1053                    | 5                         | 15                                      | 25                                       |
| 351                     | 3,7                       | 7                                       | 15                                       |

TAB. 1.2 – Spécifications requises pour les cristaux de KDP du Laser MegaJoule [31].

Les problématiques de tenue au flux sont très différentes que celles du projet ChemCam. L'enjeu n'est pas ici la résistance des cristaux dans des conditions extrêmes de durée et d'environnement. La principale difficulté réside dans la très haute densité d'énergie vue par les composants optiques lors d'un seul tir laser. Les spécifications requises pour les cristaux de KDP détaillées dans le tableau 1.2 montrent que les exigences de tenue au flux laser sont en limite des possibilités de ces cristaux. La seconde difficulté provient de la taille des composants (40 × 40 cm), car il est difficile de réaliser un composant sans défauts sur de telles dimensions. Or nous allons voir que ces défauts peuvent initier des endommagements sous flux laser (cf. section 1.5).

De par son ampleur, ce projet est un moteur pour l'étude de la tenue au flux laser des composants optiques, et particulièrement du cristal de KDP. De nombreuses études sont réalisées sur le sujet. Nous pouvons citer notamment les travaux de thèse entrepris à l'Institut Fresnel en collaboration avec le CEA par B. Bertussi [5] et J. Capoulade [7]. Dans la communauté internationale, notons également les études effectuées au Lawrence Livermore National Laboratory notamment par DeMange *et al.* [32] et Carr *et al.* [33].

## 1.4 Interaction laser-matière

L'interaction laser-matière dépend de nombreux paramètres liés non seulement au matériau irradié mais également à la source laser, tels que la longueur d'onde, la durée d'impulsion et l'intensité du faisceau incident. On peut distinguer principalement deux mécanismes conduisant à l'endommagement laser [34, 35, 36]. Pour une même longueur d'onde, par exemple, l'interaction peut être de nature thermique pour une durée d'impulsion de quelques nanosecondes ou photoélectronique pour une impulsion de quelques femtosecondes. Cependant, l'endommagement laser des matériaux optiques est souvent une combinaison complexe de ces interactions.

### 1.4.1 Interaction thermique

L'interaction thermique provient de l'absorption par le matériau de l'énergie du laser. Il se produit généralement pour des lasers continus, des lasers à durée d'impulsions longues ou à fort taux de répétition. Cet effet est prépondérant dans le cas des lasers émettant

dans l'infrarouge (laser à CO<sub>2</sub> et Nd:YAG, cf. section 1.1) et dans des gammes de puissance modérées ( $< 10 \text{ kW/cm}^2$ ). L'irradiation laser va chauffer le matériau pouvant ainsi conduire à une fusion ou une vaporisation rapide de celui-ci. Le matériau vaporisé est alors susceptible d'être ionisé engendrant un plasma dont la durée de vie peut atteindre quelques millisecondes. Durant cette période, le plasma peut alors à son tour chauffer le matériau.

Dans le cas des lasers impulsionnels utilisés dans des gammes de puissance élevées (supérieures à  $100 \text{ MW/cm}^2$ ) et de temps d'interaction inférieur à  $1 \mu\text{s}$ , les effets prédominants induits sont mécaniques. Le principal intervenant dans ce type d'interaction est le plasma, formé par la vaporisation d'une partie de la surface du matériau. Il engendre l'expansion de l'endommagement soit par onde de choc lorsque le plasma s'initie dans l'air (endommagement en face avant du composant), soit par pression lorsque celui-ci s'initie dans le volume du matériau (endommagement en face arrière du composant). L'absorption optique peut également générer des effets mécaniques par dilatation du matériau faisant ainsi apparaître des contraintes résiduelles.

### 1.4.2 Interaction photoélectronique

L'interaction photoélectronique est définie comme une perturbation des liaisons interatomiques due à l'excitation des électrons de valence par absorption d'au moins un photon. Cette absorption peut engendrer une modification du matériau irradié. Un claquage diélectrique a alors lieu lorsque le champ électrique est assez intense pour ioniser les atomes irradiés provoquant ainsi un phénomène d'avalanche électronique. Ce phénomène nécessite des photons de forte énergie (domaine UV par exemple) ou des défauts dans le matériau. Il se produit principalement en présence d'inhomogénéités de structure (surfactive et volumique) qui conduisent à une sur-intensification du champ électrique [37].

D'un point de vue applicatif, l'avantage d'un processus diélectrique par rapport à un effet thermique réside dans la possibilité de réaliser une interaction localisée, car le secteur traité correspond exactement à la zone irradiée. Cette interaction est donc recherchée dans la découpe laser par exemple (cf. section 1.1).

## 1.5 Origines et nature des centres précurseurs

L'origine de l'endommagement laser dans les composants optiques a fait l'objet de nombreuses études. Au cours de sa thèse, B. Bertussi [5] a particulièrement étudié les mécanismes initiateurs de l'endommagement laser en régime nanoseconde. En nous appuyant sur l'état de l'art réalisé, nous dressons ici un bref inventaire des défauts initiateurs de l'endommagement laser que nous pouvons rencontrer dans les cristaux non linéaires.

### 1.5.1 Validation de la présence de centres précurseurs de l'endommagement laser

Dans un matériau optique "parfait", exempt de défauts, l'endommagement laser devrait être la conséquence d'un processus photoélectronique [38]. D'après une étude théorique menée par Rubenchik et Feit, le seuil théorique d'endommagement laser en volume d'une silice supposée "idéale" est de  $450 \text{ J/cm}^2$  pour une irradiation à  $355 \text{ nm}$  [39]. Or expérimentalement, les tests de tenue au flux laser conduisent à des valeurs d'endommagement dix fois plus faibles dans la meilleure silice réelle disponible (cf. paragraphe 3.4.1). Cette différence ne peut s'expliquer que par la présence de défauts initiateurs dans le matériau, appelés aussi précurseurs de l'endommagement laser. L'endommagement n'est alors plus provoqué par un claquage diélectrique du matériau. Il peut être soit de nature photoélectronique avec des électrons de départ du processus d'avalanche qui sont fournis par les impuretés, soit engendré par des contraintes thermo-mécaniques dues à l'absorption et donc l'échauffement de ces centres précurseurs et de la matrice environnante conduisant à un dommage catastrophique.

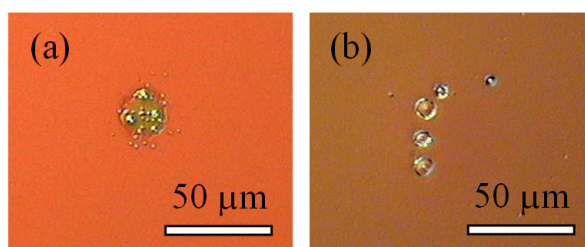


FIG. 1.8 – Morphologie d'endommagements de monocouches de  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  (a) et de  $\text{SiO}_2$  (b) déposées sur un substrat de BK7 et irradiées à  $1064 \text{ nm}$  avec un faisceau de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre. Différents précurseurs sont révélés sous le spot d'irradiation.

La présence de centres précurseurs est également compatible avec l'observation des morphologies des endommagements laser. Certains dommages réalisés en irradiant un composant avec un large faisceau à une fluence légèrement supérieure au seuil d'endommagement révèlent plusieurs cratères distincts dans la zone d'irradiation. Ceci est surtout observable dans le cas de couches minces optiques, comme présenté sur la figure 1.8. Une telle morphologie est la signature de plusieurs précurseurs présents sous le spot laser.

Nous allons voir ci-dessous que ces défauts peuvent être de plusieurs natures.

### 1.5.2 Inclusions et impuretés

Des inclusions ou impuretés peuvent s'introduire dans le volume de composants lors de leur fabrication, en particulier dans les cristaux lors de la phase de croissance. Ces inclusions sont généralement de taille nanométrique à micrométrique. Des défauts de plus

grande taille sont en effet rarement observés dans le volume de matériaux de qualité optique. Ces défauts présentent un fort coefficient d'absorption, comme par exemple dans le cas d'inclusions métalliques. L'endommagement laser est alors généralement provoqué par des contraintes thermo-mécaniques. Une partie de l'impulsion laser incidente est absorbée par l'inclusion conduisant à une augmentation brutale de sa température, ce qui provoque ainsi l'échauffement du matériau environnant par conduction thermique. L'ensemble de la matrice environnante devient absorbante, et s'échauffe jusqu'à produire des contraintes mécaniques [40] pouvant engendrer l'endommagement du matériau.

Les mécanismes d'endommagement liés à ces particules absorbantes font l'objet d'études théoriques détaillées depuis plusieurs années. Hopper *et al.* [41] furent les premiers à calculer l'élévation locale de température due à une inclusion métallique soumise à une irradiation laser nanoseconde. Depuis, différentes équipes travaillent sur le sujet afin de déduire précisément les mécanismes mis en jeu lors de l'irradiation [39, 42, 43].

L'étude des mécanismes de l'endommagement initiés par des défauts absorbants a également été menée grâce à l'inclusion de défauts modèles dans des matériaux optiques. Nous pouvons citer plusieurs publications sur la compréhension des mécanismes réels de l'endommagement à partir d'inclusions de billes d'or de quelques dizaines de nanomètres de diamètre dans de la silice<sup>9</sup>, en particulier les travaux de Papernov *et al.* qui furent les premiers à utiliser des inclusions d'or pour simuler la présence de défaut absorbants dans les composants optiques [44, 45] ou encore les études menées en France par le CEA/DAM en collaboration avec l'Institut Fresnel [46, 47, 48].

### 1.5.3 Défauts structurels

L'existence de zones dont la structure atomique et électronique est modifiée peut initier un endommagement laser par absorption du flux lumineux incident. Dans une étude sur la silice, Skuja *et al.* ont pu associer des pics de forte absorption à des défauts de structures dans le volume du matériau, appelés "centres colorés" [49]. L'absorption locale peut alors induire une forte augmentation de la température du matériau, et provoquer un endommagement si les contraintes thermo-mécaniques sont trop fortes. Ces défauts structurels, sont en général créés par l'irradiation laser elle-même, et le plus souvent ne sont pas stables à température ambiante (durée de vie de quelques millisecondes [50]). Néanmoins dans certaines conditions (en particulier selon la température et le type de matériau), il est possible de mettre en évidence des centres colorés stables dans le temps [51]. Ces défauts peuvent jouer un rôle important lors d'une sollicitation du matériau en tirs répétés. Des centres colorés sont présents dans de nombreux cristaux, tels que le KTP ou le LBO. Nous discuterons par la suite de leur rôle dans l'endommagement laser de ces cristaux (cf. chapitres 5 et 6).

---

<sup>9</sup> Les billes d'or sont généralement déposées sur un substrat de silice super-polie, puis recouvertes d'une couche mince de SiO<sub>2</sub>.

### 1.5.4 Contaminants de surface

Des contaminants peuvent venir "polluer" la surface de composants optiques. Ils peuvent être métalliques, diélectriques ou organiques, et ont deux origines principales :

#### Résidus de découpe et polissage

Des contaminants métalliques ou diélectriques, dont la taille varie entre quelques nanomètres et quelques dizaines de nanomètres, peuvent provenir des étapes de découpe et de polissage des optiques (cf. section 2.3.2) [52]. Les contaminants métalliques sont issus des outils utilisés pour la découpe (Cu, Al), alors que la présence de contaminants diélectriques est plutôt due à l'utilisation d'éléments abrasifs lors du polissage (notamment  $\text{CeO}_x$ , diamant,  $\text{SiO}_2$ ). Ce dépôt de contaminants est facilité par l'existence en surface de micro-craquelures engendrées par les premières étapes de polissage. Il se forme alors une couche dite de "passage" de quelques dizaines de nanomètres [53] contenant les contaminants issus des outils de découpe et des liquides de polissage (cf. section 2.3.2).

#### Contamination particulaire et organique des composants lors de leur utilisation

La seconde source importante de contamination de surface provient de l'utilisation et du vieillissement d'une installation laser. Il s'agit la plupart du temps de contaminants métalliques (de taille micrométriques) provenant de la structure mécanique du laser, ou organiques provenant de l'atmosphère environnante et de l'utilisateur de l'installation.

Différents travaux sur ces contaminants métalliques [54] et organiques [55] ont permis de confirmer l'influence de ces défauts dans l'endommagement laser des matériaux. L'étude de ces contaminations est toujours d'actualité. Nous pouvons en particulier citer les récents travaux de thèse de S. Palmier sur l'impact de la pollution particulaire sur la tenue au flux d'une chaîne laser de puissance [56].

### 1.5.5 Rayures, fractures, rugosité et inhomogénéités de structure

La présence d'inhomogénéités de structure dans les matériaux optiques peut entraîner des augmentations locales du champ électrique incident [57]. Ces sur-intensifications du champ favorisent les mécanismes d'avalanche électronique pouvant conduire au claquage diélectrique du matériau. Notons qu'il ne s'agit ici généralement plus de défauts absorbants causant un dommage par un processus thermo-mécanique.

Ces défauts sont des rayures, des fractures, des rugosités ou des inhomogénéités de structures en volume telles que des micro-bulles d'air. Dans la majorité des cas, ces défauts se trouvent en surface et apparaissent généralement lors des étapes de découpe et de polissage. La figure 1.9 illustre un cas où les rayures de polissage sont à l'origine de l'endommagement laser du composant irradié (cf. section 2.3.2).



Bloembergen [37] est l'un des premiers à avoir quantifié ce phénomène en 1973, montrant que la présence de rayures en surface ou de bulles d'air en volume peut engendrer une élévation locale de l'intensité du champ électrique d'un facteur 2 à 1000 selon la géométrie des défauts considérés. Plus récemment, nous pouvons citer les travaux de Salleo *et al.* [58] et de Bercegol *et al.* [59] portant sur l'endommagement laser à 355 nm initié par des rayures micrométriques en surface de silice.

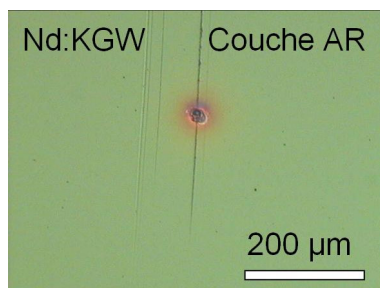


FIG. 1.9 – Dommages du traitement antireflet (AR)  $\text{MgF}_2 / \text{SiO}_2$  d'un barreau de Nd:KGW causés par une rayure. Sur plusieurs sites irradiés à la même fluence, aucun endommagement du traitement n'est apparu excepté lorsque le faisceau laser irradie la rayure.

### 1.5.6 Défauts de croissance dans les couches minces optiques

Des défauts de croissance des couches minces appelés "nodules" peuvent être à l'origine de l'endommagement des traitements optiques. Ces nodules sont le plus souvent initiés par la présence de défauts sur la surface du substrat au moment du dépôt. Ces impuretés peuvent être des résidus de polissage ou des contaminants de surface issus de la préparation du substrat (nettoyage). Des agrégats projetés à partir de la cible durant le dépôt peuvent également jouer le rôle d'initiateurs à la formation de nodules. Le recouvrement de ces défauts par des couches successives entraîne une déformation visible de la surface.

De nombreuses études ont mis en évidence le rôle de ces nodules dans l'endommagement laser des couches diélectriques. Nous pouvons citer en particulier les travaux de Kozłowski *et al.* [60, 61] ou la thèse de M. Poulingue [62].

De part les contraintes thermo-mécaniques pouvant exister au niveau du défaut lors de l'irradiation, le nodule peut être éjecté. A forte fluence, la formation d'un cratère peut être suivie d'une brûlure plasma de la couche diélectrique environnante. Ceci constitue alors une amorce possible à la croissance de l'endommagement sous irradiation multiple.

Les nodules peuvent aussi être à l'origine d'une sur-intensification importante du champ électrique incident et donc entraîner une diminution du seuil de claquage [63].





# Chapitre 2

## Cristaux non linéaires pour l'utilisation laser

### Sommaire

---

|            |   |           |
|------------|---|-----------|
| <b>2.1</b> | <b>Rôle des cristaux dans les cavités laser</b>                               | <b>30</b> |
| 2.1.1      | Place et choix des cristaux   | 30        |
| 2.1.2      | Cas de l'utilisation en cellule électro-optique                               | 31        |
| 2.1.3      | Cas de la conversion de fréquence   | 32        |
| <b>2.2</b> | <b>Structure, principales propriétés et applications des cristaux étudiés</b> | <b>33</b> |
| 2.2.1      | Cristaux de KTP ( $\text{KTiOPO}_4$ ) et RTP ( $\text{RbTiOPO}_4$ )           | 34        |
| 2.2.2      | Cristaux de LBO ( $\text{LiB}_3\text{O}_5$ )                                  | 37        |
| <b>2.3</b> | <b>Étapes de fabrication des cristaux</b>                                     | <b>39</b> |
| 2.3.1      | Croissance cristalline  | 39        |
| 2.3.2      | Usinage et polissage des cristaux   | 41        |
| 2.3.3      | Nettoyage et stockage   | 43        |
| 2.3.4      | Traitements en couches minces optiques  | 43        |

---

## 2.1 Rôle des cristaux dans les cavités laser

### 2.1.1 Place et choix des cristaux

Les cristaux non linéaires sont des composants clés pour le fonctionnement d'une chaîne laser, comme l'illustre la figure 2.1. Une grande variété de cristaux existe pour diverses applications à différentes longueurs d'ondes. La recherche de nouveaux matériaux est continue pour pouvoir répondre à des applications devenant de plus en plus exigeantes, notamment en terme de puissance laser. Nous pouvons citer par exemple le développement récent des borates (CLBO, GdCOB, YCOB,...) pour la génération de fréquences dans les domaines du visible et de l'UV [64].

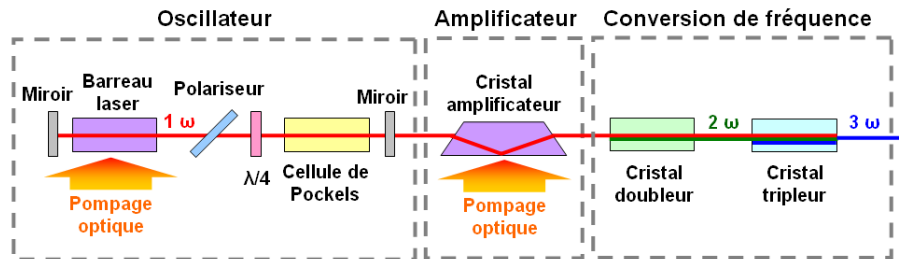


FIG. 2.1 – Exemple d'une cavité laser illustrant le rôle clé des cristaux non linéaires. Tous les composants sont des cristaux, exceptés les miroirs et le polariseur.

Contrairement à des matériaux comme la silice, les cristaux non linéaires sont des milieux anisotropes pour lesquels la vitesse de propagation de la lumière n'est pas homogène dans toutes les directions. Dans ces milieux biréfringents, l'indice de réfraction est alors défini par rapport aux axes optiques du cristal à travers un ellipsoïde. Un rayon lumineux incident est décomposé en deux ondes (modes propres) dont les polarisations sont orthogonales qui se propagent dans le cristal avec des vitesses et parfois des directions différentes. Pour plus de détails, nous pouvons nous référer au livre de Saleh et Teich [65].

Selon les matériaux ou leur direction de coupe, les cristaux permettent de réaliser des fonctions optiques très différentes. Ils peuvent être employés comme milieu laser (Nd:YAG, Nd:KGW,...), oscillateur paramétrique optique (LBO, KTP,...), cellule de Pockels (KDP, RTP,...), convertisseur de fréquence (KDP, KTP, LBO,...).

Le choix des matériaux pour l'application souhaitée dépend de nombreux critères. Dans le cas par exemple du doublage de fréquence d'un laser Nd:YAG pulsé de haute puissance, les paramètres importants sont une efficacité de conversion élevée, des conditions d'accord de phase les moins restrictives possibles (large acceptation angulaire, thermique et spectrale), des propriétés chimiques et physiques favorables (dureté, conductivité thermique, hygroscopie,...), une croissance cristalline aisée, une bonne résistance au flux laser,...

Nous voyons ainsi que chaque application va donner lieu à un jeu de paramètres qui seront déterminants pour le choix optimal du cristal. Nous allons décrire succinctement les cas de l'utilisation en cellule électro-optique et de la conversion de fréquence, qui nous intéresseront dans la suite de ces travaux de thèse.

### 2.1.2 Cas de l'utilisation en cellule électro-optique

Une cellule électro-optique ou cellule de Pockels est une lame à retard contrôlée par l'application d'un champ électrique permettant d'introduire une biréfringence proportionnel à l'amplitude du champ. L'intérêt de ce dispositif est alors la modulation de la polarisation qui combinée avec un polariseur va permettre la modulation de l'intensité lumineuse traversant la cellule avec un temps caractéristique très court de l'ordre de la nanoseconde.

Les principaux cristaux utilisés sont le KDP ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ), DKDP ( $\text{KD}_x\text{H}_{2-x}\text{PO}_4$ ),  $\text{LiNbO}_3$ , BBO ( $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ) et RTP ( $\text{RbTiOPO}_4$ ) [66, 67, 68]. La comparaison de ces cristaux pour l'utilisation en cellule de Pockels est détaillée dans le tableau 2.1.

| Cristal          | Domaine de transparence ( $\mu\text{m}$ ) | Coefficient E-O (pm/V)             | Pertes d'insertion (en %) | Taux d'extinction à $0,63 \mu\text{m}$ | LIDT ( $\text{MW}/\text{cm}^2$ ) à $1,06 \mu\text{m}$ , 10 ns |
|------------------|---|------------------------------------|---------------------------|--|---|
| KDP              | 0,18 - 1,45                               | $r_{63} = 10,6$                    | 4 %                       | $> 1000:1$                             | 600   |
| DKDP             | 0,2 - 2,1                                 | $r_{63} = 23,6$                    |                           |  |   |
| $\text{LiNbO}_3$ | 0,4 - 5,5                                 | $r_{22} = 6,8$                     | $< 1 \%$                  | $> 400:1$                              | 100   |
| BBO              | 0,19 - 3,5                                | $r_{22} = 2,2$                     | $< 2 \%$                  | $> 500:1$                              | 5000  |
| RTP              | 0,35 - 4,5                                | $r_{e1} = 30,2$<br>$r_{e2} = 23,6$ | $< 1 \%$                  | 800:1                                  | 1800  |

TAB. 2.1 – Comparaison des cristaux de KDP, DKDP,  $\text{LiNbO}_3$ , BBO et RTP pour l'utilisation en cellule de Pockels [66, 68].

Les cristaux de KDP et DKDP présentent l'intérêt d'avoir une bonne homogénéité optique, un excellent taux d'extinction. Grâce à un coefficient effectif électro-optique (E-O) très élevé, le DKDP a l'avantage de nécessiter une faible tension de fonctionnement. De plus, des cristaux de grandes dimensions sont possibles par un procédé de croissance rapide. Les principaux inconvénients de ces cristaux sont leur hygroscopie nécessitant une protection contre l'humidité et leur relativement faible seuil de tenue au flux laser (LIDT).

Le  $\text{LiNbO}_3$  est un cristal non hygroscopique. La cellule présente de très faibles pertes ( $< 1 \%$ ) et une basse tension de fonctionnement malgré un coefficient électro-optique assez faible. Néanmoins, ce cristal a un taux d'extinction médiocre et un seuil d'endommagement très faible. Par ailleurs, il est sensible au phénomène de résonance piézoélectrique, limitant son utilisation à des fréquences inférieures à 1 kHz.

Le cristal de BBO est un matériau de choix pour des applications électro-optiques de puissance, grâce à une résistance au flux laser très élevée. De plus sa gamme de transparence allant jusqu'à  $0,19 \mu m$ , le rend particulièrement intéressant pour des applications dans le domaine UV. La cellule présente un bon taux d'extinction et des pertes relativement faibles. Aucun effet de résonance piézoélectrique n'est constaté jusqu'à 6 kHz. Cependant, avec un coefficient électro-optique faible, la tension nécessaire au fonctionnement est très élevée, limitant l'ouverture de la cellule à de petites dimensions. D'autre part, ce cristal est hygroscopique.

Le cristal de RTP est particulièrement intéressant pour des applications à très basse tension de fonctionnement, de part ses coefficients électro-optiques très élevés. Par ailleurs, il peut être utilisé à très fort taux de répétition jusqu'à des fréquences de 100 kHz, sans effet de résonance piézoélectrique. De plus, il n'est pas hygroscopique, a de très faibles pertes et un très bon coefficient d'extinction. Cependant, sa biréfringence thermique nécessite d'être compensée par l'utilisation de deux cristaux tournés de  $90^\circ$  autour de l'axe optique (cf. figure 2.3).

### 2.1.3 Cas de la conversion de fréquence

La génération de seconde harmonique est un effet non linéaire d'ordre 2. Deux photons de l'onde fondamentale incidente à la fréquence  $\omega$  interagissent pour créer un photon à la fréquence double  $2\omega$ . Pour permettre la génération de seconde harmonique, deux types de configurations d'accord de phase angulaire sont possibles : soit les deux vecteurs propres de polarisation incidents sont parallèles, dans ce cas l'accord de phase est dit de type I ; soit ces deux vecteurs sont orthogonaux, l'accord de phase est alors de type II.

Le rendement de conversion est défini comme le rapport entre l'intensité de l'onde de seconde harmonique générée  $I_{2\omega}$  et l'intensité de l'onde fondamentale incidente  $I_\omega$ . Ce rendement est d'autant meilleur que l'efficacité de conversion du cristal (donnée par  $d_{\text{eff}}$ ) est importante, que la distance d'interaction est longue et que l'intensité de l'onde fondamentale est élevée ( $I_{2\omega} \propto (I_\omega)^2$ ).

La génération de troisième harmonique à travers un seul milieu est peu efficace (effet non linéaire d'ordre 3). Un processus en deux étapes est alors préféré. Une partie de l'onde fondamentale incidente est convertie en une onde de seconde harmonique à l'aide d'un cristal doubleur ( $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ ). Ces deux ondes sont ensuite mélangées dans un cristal tripleur pour produire une onde de troisième harmonique ( $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$ ).

Pour la conversion de fréquence des lasers Nd:YAG, les cristaux les plus connus à ce jour sont KDP ( $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ), KTP ( $\text{KTiOPO}_4$ ), LBO ( $\text{LiB}_3\text{O}_5$ ), BBO ( $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$ ), CLBO ( $\text{CsLiB}_6\text{O}_{10}$ ),  $\text{KNbO}_3$ ,  $\text{LiNbO}_3$ , GdCOB,...

Les cristaux les plus fréquemment employés pour la génération de seconde harmonique sont le KDP, KTP, BBO et LBO [69]. La comparaison de ces cristaux est détaillée dans le

tableau 2.2.

| Cristal | Domaine de transparence ( $\mu m$ ) | Biréfringence | $d_{\text{eff}}$ (pm/V) | LIDT (GW/cm <sup>2</sup> ) à 1064 nm |
|---------|-------------------------------------|---------------|-------------------------|--------------------------------------|
| KDP     | 0,2 - 1,5                           | 0,034         | 0,33                    | 1,0                                  |
| KTP     | 0,35 - 4,5                          | 0,0077        | 5,26                    | 0,44                                 |
| BBO     | 0,19 - 3,5                          | 0,113         | 1,72                    | 8,0                                  |
| LBO     | 0,16 - 2,6                          | 0,039         | 1,40                    | -                                    |

TAB. 2.2 – Comparaison des cristaux de KDP, KTP, BBO et LBO pour la génération de seconde harmonique [69].

Le cristal de KDP présente l'intérêt d'avoir une très bonne qualité optique, une biréfringence assez faible et un excellent rendement de conversion malgré un coefficient effectif non linéaire faible. En revanche, ce cristal est hygroscopique et son seuil d'endommagement (LIDT) est assez faible.

Le cristal de KTP a l'avantage d'être non hygroscopique, de posséder le coefficient non linéaire le plus élevé, une grande gamme de transparence allant de 0,35 à 4,5  $\mu m$  et une biréfringence très faible. Cependant, son coefficient d'absorption est élevé, limitant son efficacité de conversion. En outre, son inconvénient majeur est sa susceptibilité au gray-track (cf. section 5.2) limitant sa résistance au flux laser.

Le cristal de BBO possède une très bonne qualité optique, une résistance au flux laser très élevée et son domaine de transparence s'étend de 0,19  $\mu m$  dans l'UV jusqu'à 3,4  $\mu m$  dans l'infrarouge. Il présente donc un avantage notable pour des applications de puissance dans le domaine UV. En revanche, les inconvénients de ce cristal sont sa très grande biréfringence et son hygroscopie.

Très proche du BBO, le cristal de LBO possède également une excellente tenue au flux laser, ainsi qu'une gamme de transparence allant dans l'UV jusqu'à 0,16  $\mu m$ . Ceci en fait aussi un matériau de choix dans le cas d'utilisation de puissance dans l'UV. Cependant, ce cristal est légèrement hygroscopique et a le rendement de conversion le plus faible.

## 2.2 Structure, principales propriétés et applications des cristaux étudiés

Dans les chapitres 5 et 6, nous étudierons plus spécifiquement la tenue au flux laser des cristaux de KTP, RTP et LBO. Nous nous intéressons donc dans cette partie à la structure de ces cristaux, ainsi qu'à leurs principales propriétés et applications.

## 2.2.1 Cristaux de KTP ( $\text{KTiOPO}_4$ ) et RTP ( $\text{RbTiOPO}_4$ )

### 2.2.1.1 Structure cristallographique

Les cristaux de phosphate de potassium et de titanyle ( $\text{KTiOPO}_4$  ou KTP) et de phosphate de rubidium et de titanyle ( $\text{RbTiOPO}_4$  ou RTP) appartiennent à la même famille cristalline  $\text{MTiOPO}_4$  où  $M = \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$  ou  $\text{Tl}$  [70, 71, 72]. Tous les membres de cette famille sont orthorhombiques et cristallisent dans le groupe d'espace non centro-symétrique  $\text{Pna}2_1$  et dans le groupe de point  $\text{mm}2$ . 64 atomes sont organisés dans une cellule unité ( $8 \times \text{MTiOPO}_4$ ).

La structure cristalline a une ossature tridimensionnelle construite sur le coin d'un octaèdre de  $\text{TiO}_6$  et d'un tétraèdre de  $\text{PO}_4$ . Les ions potassium  $\text{K}^+$  ou rubidium  $\text{Rb}^+$  (respectivement pour KTP ou RTP) occupent l'espace libre dans la structure (cf. figure 2.2). L'attrait principal de la structure est la présence de liaisons Ti-O anormalement courtes, impliquant que l'octaèdre de  $\text{TiO}_6$  est déformé comparé à un octaèdre régulier. Ces liaisons sont importantes car elles sont responsables des forts coefficients non linéaires de ces matériaux [73, 74]. Par ailleurs, la présence de canaux selon l'axe Z dans lesquels les ions  $\text{K}^+$  peuvent facilement se déplacer sous l'influence d'un champ électrique engendre une forte conductivité ionique le long de cette direction.

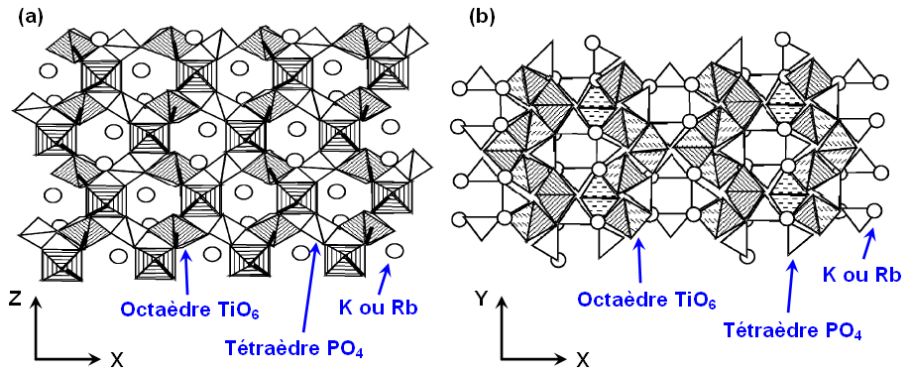


FIG. 2.2 – Structure des cristaux de KTP et RTP [72]. (a) Projection dans le plan (X, Z). (b) Projection dans le plan (X, Y). Les lignes en gras représentent les liaisons courtes Ti-O.

### 2.2.1.2 Principales propriétés physiques

Comme ils appartiennent à la même famille, les cristaux de KTP et de RTP ont des propriétés physiques et optiques très similaires. Ces deux cristaux sont biaxiaux et présentent des indices de réfraction très proches (l'indice moyen est de 1,8 à 1064 nm). Ils couvrent une large gamme de transparence qui s'étend de 0,35 à 4,5  $\mu\text{m}$ . Ils présentent une

faible biréfringence, une excellente stabilité thermique et ne sont pas hygroscopiques. Ils possèdent de très forts coefficients optiques non linéaires, ce qui en fait des matériaux de choix pour de nombreuses applications. L'inconvénient majeur de ses cristaux est leur susceptibilité au gray-track (cf. section 5.2), qui limite leur résistance au flux laser. L'ensemble des caractéristiques est donné en annexe A.

### 2.2.1.3 Applications

Ces cristaux peuvent être utilisés pour la conversion de fréquence, les applications électro-optiques et dans les oscillateurs paramétriques optiques (OPO). Le cristal de KTP est particulièrement connu pour la génération de seconde harmonique des lasers Nd:YAG. Quant au RTP, grâce à ses très bonnes propriétés électro-optiques, il est surtout employé dans les cellules de Pockels. Cependant, dans certains cas, l'utilisation du RTP au lieu du KTP ou inversement peut être préférable [75, 76]. Par exemple, le RTP est employé pour la SHG dans le cas de régime quasi-continu sous une puissance moyenne élevée, car il est moins sensible au gray-track et possède une plus grande acceptation thermique que le KTP [77].

Le KTP est l'un des cristaux non linéaires les plus importants pour la génération de seconde harmonique pour une longueur d'onde du fondamental entre 1,0 et 1,3  $\mu\text{m}$ . Il est notamment utilisé dans des lasers continus à faible puissance et dans des lasers chirurgicaux dans le domaine de l'ophtalmologie ou la dermatologie. Il peut aussi être servir d'OPO entre 1,53 et 3,0  $\mu\text{m}$ . Il est alors employé dans des instruments à la longueur d'onde de 1,57  $\mu\text{m}$  dite de sécurité oculaire.



FIG. 2.3 – Cellule de Pockels en RTP. Deux cristaux tournés de  $90^\circ$  autour de l'axe optique sont nécessaires pour la compensation thermique.

Le RTP permet le doublage de fréquence pour une longueur d'onde du fondamentale entre 1,04 et 1,14  $\mu\text{m}$ . Il est notamment employé dans des lasers continus jaune/vert pour des applications scientifiques. Il est également utilisé comme OPO de puissance pompé à 1064 nm [67]. L'intérêt du cristal de RTP tient surtout dans ses propriétés électro-



## 2.2. STRUCTURE, PRINCIPALES PROPRIÉTÉS ET APPLICATIONS DES CRISTAUX ÉTUDIÉS

optiques. Il permet la modulation de phase électro-optique à très basse tension<sup>1</sup> avec un bon coefficient d'extinction. Il peut également être utilisé dans des cellules de Pockels à fort taux de répétition (jusqu'à 100 kHz). Cependant, sa biréfringence thermique nécessite d'être compensé par l'utilisation de deux cristaux tournés de 90° autour de l'axe optique (cf. figure 2.3).

### 2.2.1.4 Configurations d'utilisation

Selon les applications souhaitées, les cristaux sont coupés dans la "boule" de croissance<sup>2</sup> selon des directions différentes. Les angles de coupe des cristaux de KTP pour les principales utilisations sont présentés en figure 2.4.

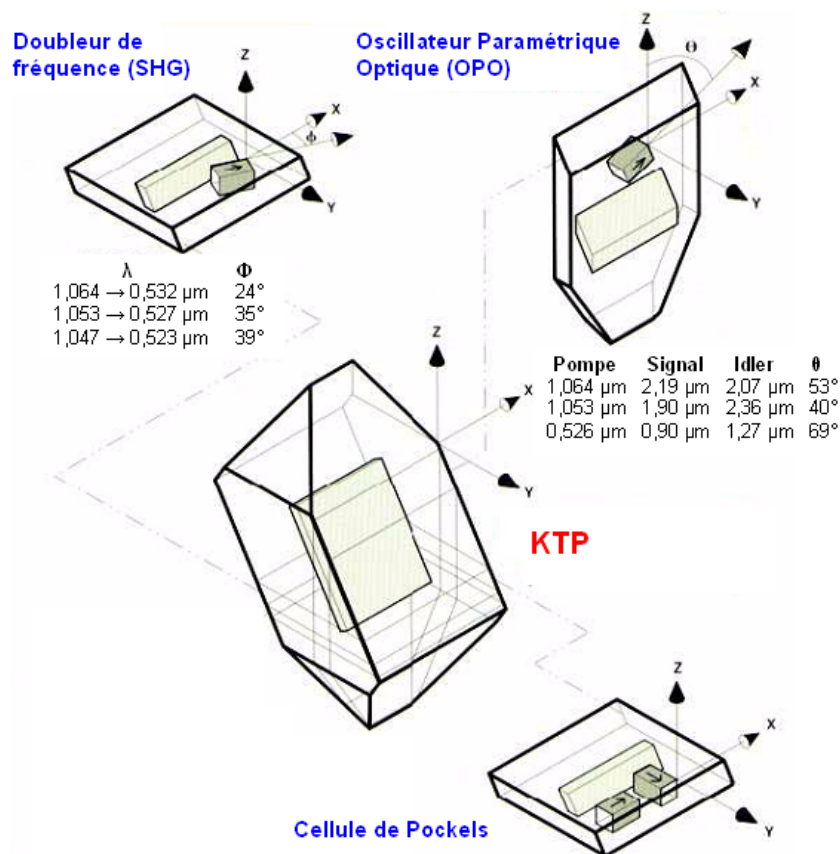


FIG. 2.4 – Directions de coupe des cristaux de KTP pour les utilisations suivantes : doubleur de fréquence, oscillateur paramétrique optique et cellule de Pockels.

<sup>1</sup> Pour une cellule assemblée de deux cristaux Y-cut de dimensions 4×4×10 mm, la tension demi-onde est approximativement de 1400 V à 1064 nm [67].

<sup>2</sup> Terme employé en cristallographie pour désigner le cristal obtenu en sortie du four de croissance

Dans la suite de ces travaux, nous nous intéresserons aux applications principales des cristaux de KTP et RTP, à savoir respectivement la génération de seconde harmonique de type II à 1064 nm et l'utilisation en cellule électro-optique.

Dans le cas du KTP pour la SHG de type II à 1064 nm, la direction de propagation est à  $23,5^\circ$  de l'axe X dans le plan (X, Y) (cf. figure 2.4). Cette direction est alors définie dans la suite comme l'axe SHG. La polarisation du faisceau incident à 1064 nm est linéaire et à  $45^\circ$  de l'axe Z.

Pour l'utilisation en cellule de Pockels, deux orientations du RTP sont possibles : X-cut et Y-cut, ce qui signifie que la direction de propagation est respectivement selon l'axe X ou Y. Dans les deux cas, la polarisation du faisceau incident doit être à  $45^\circ$  de l'axe Z. Le champ électrique est toujours appliqué selon la direction Z (cf. figure 2.5). Notons que la tension de fonctionnement est 30 % plus faible pour la configuration Y-cut que X-cut.

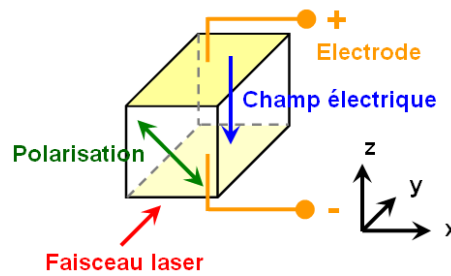


FIG. 2.5 – Schéma d'un cristal de RTP Y-cut pour l'utilisation en cellule de Pockels : la propagation de la lumière est selon l'axe Y. La polarisation du faisceau incident est à  $45^\circ$  de l'axe Z. Le champ électrique est selon l'axe Z.

## 2.2.2 Cristaux de LBO ( $\text{LiB}_3\text{O}_5$ )

### 2.2.2.1 Structure cristallographique

Comme les cristaux de KTP et RTP, le triborate de lithium ( $\text{LiB}_3\text{O}_5$  ou LBO) a une structure orthorhombique et appartient au groupe d'espace non centro-symétrique  $\text{Pna}2_1$  et au groupe de point  $\text{mm}2$ . 36 atomes sont organisés dans une cellule unité ( $4 \times \text{LiB}_3\text{O}_5$ ).

Le LBO est formé par des groupes  $(\text{B}_3\text{O}_7)^{5-}$  [78], liés dans un réseau de chaînes interconnectées en hélice qui parcourent la structure selon la direction Z. Les ions  $\text{Li}^+$  sont localisés dans les interstices de la structure (cf. figure 2.6). Une relativement grande conductivité ionique est observée selon l'axe Z (jusqu'à un facteur  $10^4$  entre l'axe Z et les axes X, Y), provenant de la mobilité des ions  $\text{Li}^+$  dans les canaux formés par la structure [79]. Les groupes  $\text{B}_3\text{O}_7$  sont non-planaires, car les atomes de Bore sont trois ou quatre fois coor-

donnés aux atomes d'oxygène [80]. Le réseau compact de ces groupes de  $B_3O_7$  et la petite taille des ions  $Li^+$  a l'avantage d'en faire un cristal présentant très peu d'inclusions [78].

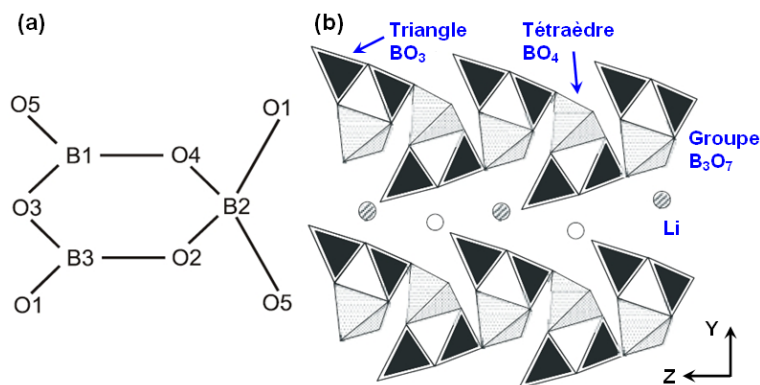


FIG. 2.6 – (a) Structure du groupe  $B_3O_7$  [80]. (b) Structure du cristal de LBO en projection dans le plan (Y, Z) [79].

### 2.2.2.2 Principales propriétés physiques

Le LBO est un cristal biaxial [81]. Son indice de réfraction moyen est de 1,6 à 1064 nm. Ses principaux avantages sont une large bande spectrale transparente allant dans l'UV jusqu'à  $0,16 \mu m$  et ne restant pas restrictif dans l'infrarouge (transparent jusqu'à  $3,2 \mu m$ ), une faible absorption et un seuil de dommage très élevé. Il possède de très bonnes propriétés mécaniques et chimiques. En revanche, il a l'inconvénient d'être légèrement hygroscopique. Il a des coefficients non linéaires relativement faibles par rapport au KTP, et un coefficient de dilatation élevé. Plus de caractéristiques sont présentées en annexe A.

### 2.2.2.3 Applications

Le LBO est utilisé pour la génération de seconde harmonique à des longueurs d'onde du fondamental entre  $0,6$  et  $1,3 \mu m$ . Son seuil d'endommagement très élevé en fait un matériau de choix pour des applications laser de puissance [81]. De par sa gamme de transparence allant jusqu'à  $160$  nm et sa très bonne résistance au flux laser, il présente un avantage évident pour les applications dans le domaine UV. Il permet alors la génération de troisième harmonique (THG) à  $1,06 \mu m$  et la génération de quatrième harmonique à  $1,06 \mu m$  et  $1,32 \mu m$  avec cependant une faible efficacité. Il est également utilisé comme oscillateur paramétrique optique.

### 2.2.2.4 Configurations d'utilisation

Dans cette étude, nous nous intéresserons uniquement à la génération de seconde et de troisième harmonique de type II pour une longueur d'onde du fondamental à 1064 nm.

Dans le cas du LBO pour la SHG de type II à 1064 nm, la direction de propagation est à  $22,2^\circ$  de l'axe Z dans le plan (Y, Z) (cf. figure 2.7). Cette direction de coupe du LBO sera notée SHG-cut. La polarisation du faisceau incident à 1064 nm est linéaire et à  $45^\circ$  de l'axe X.

Pour le fonctionnement en THG de type II à 1064 nm, l'angle de coupe du cristal est à  $42,5^\circ$  de l'axe Z dans le plan (Y, Z) (cf. figure 2.7). Cette direction du LBO sera notée THG-cut. Le faisceau incident à 1064 nm est polarisé selon l'axe X, et la polarisation du faisceau à 532 nm est orthogonale à celle du fondamental. Le faisceau émis en sortie à 355 nm est polarisé selon l'axe X.

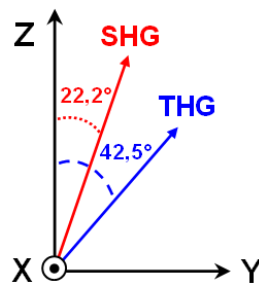


FIG. 2.7 – Directions de coupe des cristaux de LBO dans le plan (Y, Z) pour l'utilisation en SHG et THG à 1064 nm.

## 2.3 Étapes de fabrication des cristaux

Différentes étapes de fabrication sont nécessaires à l'élaboration du composant fini : la croissance cristalline, l'ébauchage, le polissage, le nettoyage et le dépôt de traitements optiques. L'ensemble de ces étapes aura des répercussions sur la tenue au flux laser du composant final. Nous allons les présenter succinctement dans le cadre des cristaux de notre étude.

### 2.3.1 Croissance cristalline

La croissance cristalline est bien évidemment l'étape la plus importante de la chaîne de production. De nombreux procédés de croissance existent selon les cristaux à réaliser. Nous présentons ici les méthodes de croissance utilisées pour synthétiser les cristaux de KTP, RTP et LBO.

#### 2.3.1.1 Croissance de KTP et RTP

Les cristaux de KTP et RTP sont des cristaux à fusion non congruente, c'est-à-dire que les phases liquide et solide ne présentent pas la même composition chimique, rendant

impossible l'utilisation de techniques de croissance à partir de bain fondu de type Czochralski. Pour synthétiser ces cristaux, deux procédés de croissances peuvent être utilisés : la croissance hydrothermale et la méthode des flux.

La croissance hydrothermale s'effectue en milieu aqueux à haute température et haute pression [82]. Elle consiste à sceller un germe et les différents composants dans un autoclave. La croissance s'effectue à pression et température constantes.

La méthode la plus courante est une croissance par flux pour KTP [83, 84] et RTP [85, 86]. Cette technique s'effectue à haute température mais à la pression atmosphérique. Elle consiste à dissoudre le composé à cristalliser nommé soluté dans un solvant minéral fondu appelé flux. La cristallisation est obtenue autour d'un germe en diminuant la solubilité du soluté par refroidissement lent et contrôlé du bain.

Un creuset en platine contenant les réactifs est placé dans le four de croissance et chauffé à environ 1050°C. Après homogénéisation, la phase liquide obtenue est refroidie pour atteindre la température de début de cristallisation du cristal. Un germe est mis en place et commence alors la cristallisation par le refroidissement lent du four (0,5 - 5 °C par jour). L'évolution de la croissance est suivie par la prise de masse du cristal, et contrôlée par la vitesse de refroidissement du four et la vitesse de rotation du cristal dans le bain liquide. Après 5 à 8 semaines, un cristal appelé "boule" de croissance est obtenue dont le poids peut atteindre plusieurs centaines de grammes.

Trois variantes de la croissance par flux peuvent être utilisées : le germe est soit en immersion dans le bain (SSSG : submerged-seeded solution growth), soit en surface (TSSG : top-seeded solution growth), avec ou sans tirage [76].

Comparé à la croissance hydrothermale, cette méthode des flux est la plus facilement exploitable, car elle s'effectue à pression atmosphérique. En revanche, l'avantage de la croissance hydrothermale [87] est de présenter généralement une meilleure uniformité, une conductivité ionique plus faible et une meilleure résistance des cristaux au gray-track. La différence de résistance peut s'expliquer par le fait qu'une croissance par flux nécessite la présence d'un solvant dans lequel le KTP est dissous et des molécules du solvant peuvent contaminer le cristal, alors que la croissance hydrothermale se fait uniquement dans une solution aqueuse sans adjonction de solvant.

Dans notre étude, les cristaux de KTP et RTP ont été obtenus exclusivement par la croissance des flux selon la technique TSSG. La croissance "standard" est réalisée à partir d'un flux de formule chimique  $K_6P_4O_{13}$  (noté K6) et  $Rb_6P_4O_{13}$  (noté R6) pour les cristaux de KTP et RTP respectivement. Les procédés de croissance peuvent induire des problèmes de tenue au flux laser des cristaux obtenus. Nous allons étudier cet aspect en section 5.6.

### 2.3.1.2 Croissance du LBO

Le LBO a été développé pour la première fois en 1989 [78]. Comme les cristaux de KTP et RTP, il s'agit également d'un cristal à fusion non congruente. Sa croissance est effectuée par la méthode des flux [88] à partir d'un flux  $B_2O_3$  ou  $MoO_3$  par la technique TSSG [89]. Le flux  $B_2O_3$  présente l'inconvénient d'avoir une forte viscosité rendant la croissance difficile, tandis que pour le flux  $MoO_3$  ( $MoO_3/Li_2O$ ) la viscosité est faible, mais il peut engendrer l'incorporation de molybdène dans le cristal [90, 91].

### 2.3.2 Usinage et polissage des cristaux

A partir de la "boule" de croissance obtenue, les cristaux sont découpés en parallélépipède de différentes dimensions selon leurs applications futures. Plusieurs étapes sont ensuite nécessaires à la préparation des surfaces optiques [92], permettant d'obtenir de très faible rugosité de surface, de l'ordre de 1 nm RMS.

Le procédé classiquement utilisé consiste en une action abrasive de la surface grâce à des disques en rotation et l'utilisation de particules abrasives en suspension dans un liquide, qui permet de travailler sur une couche hydratée en surface du cristal (pour des matériaux non hygroscopiques ou faiblement). Plusieurs étapes sont réalisées (doucissage, polissage, procédé de finition), utilisant des particules de plus en plus fines. Les tailles varient de quelques centaines de microns pour les premières étapes jusqu'à quelques nanomètres pour l'ultime passage nécessaire à l'obtention d'une surface de très faible rugosité.

Dès la découpe et les premières étapes d'abrasion, des contraintes mécaniques importantes engendrent l'apparition de micro-craquelures formant une sous-couche endommagée sur une épaisseur allant jusqu'à une centaine de microns. Des contaminants provenant des liquides de polissage peuvent entrer plus ou moins profondément à l'intérieur des micro-craquelures et constituer en surface une couche superficielle ou couche de passage [93] (cf. figure 2.8).

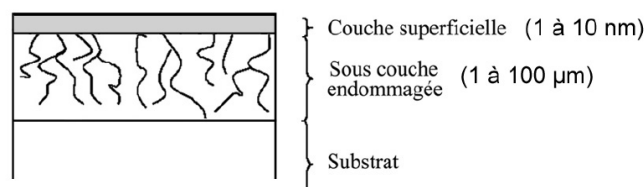


FIG. 2.8 – État de surface d'un composant optique après les étapes de polissage mettant en évidence la formation d'une couche de passage.

Ces étapes de découpe et polissage sont donc particulièrement critiques pour la tenue au flux laser de la surface des cristaux. En effet, les microcraquelures peuvent favoriser une

surintensification de la densité d'énergie. D'autre part, les résidus de polissage piégés dans les micro-craquelures, peuvent être absorbants à la longueur d'onde du laser et jouer le rôle de centres précurseurs de l'endommagement. L'amélioration de la tenue au flux de surface nécessite donc de réduire autant que possible la sous-couche endommagée et d'éliminer l'influence de la couche superficielle sur la tenue au flux à la longueur d'onde d'intérêt. Une caractérisation de différentes méthodes de polissage en terme de tenue au flux laser est possible et permet de sélectionner le meilleur procédé. De telles études ont été effectuées sur le polissage de substrat de silice [52, 94, 95, 96].

Nous présentons brièvement les différents étapes nécessaires à la préparation des surfaces dans le cadre des cristaux étudiés ici. Notons que le polissage du cristal de LBO requiert certaines précautions, car il est sensible à l'humidité. Pour un aspect plus général sur la préparation des surfaces en lien avec la tenue au flux laser, nous nous référerons à l'état de l'art réalisé dans la thèse de H. Krol [6].

### Ébauchage

Après obtention de la "boule" de croissance, les cristaux sont tout d'abord découpés en parallélépipèdes de dimensions et d'orientations différentes selon les applications souhaitées. L'ébauchage est réalisé à l'aide de scies diamantées.

### Doucissage

Le doucissage est la première étape d'abrasion de la surface dont l'objectif est de réduire la rugosité du composant. Cette étape est réalisée au moyen d'abrasifs tel que des oxydes d'aluminium (alumine), grenats, carbure de silicium,... Le rodage des cristaux étudiés par la suite est effectué par des abrasifs d'alumine dont la taille des particules est comprise entre 10 et 20  $\mu m$ .

### Polissage

L'étape de polissage permet d'obtenir la rugosité finale du composant. Elle est réalisée avec des polissoirs en résine, tissus ou téflon. Les abrasifs de polissage sont très nombreux, nous pouvons notamment citer les oxydes de fer, de cérium, de zirconium, d'aluminium, des poudres de diamants, grenats,... Les cristaux de notre étude sont polis à l'aide d'un liquide contenant des particules de diamants de taille moyenne inférieure à 1  $\mu m$ , et un agent tensio-actif.

### Polissage de finition

Afin d'améliorer la rugosité et la tenue au flux laser des surfaces, différents procédés de polissage de finition ont été développés [6]. Le polissage mécano-chimique utilisé ici permet



de diminuer de manière douce la rugosité de surface et d'effacer au mieux les rayures résiduelles du polissage mécanique, sans induire de nouvelles contraintes. Cette technique emploie un abrasif sous forme de gel et un polissoir doux (un feutre par exemple). L'abrasif utilisé ici est un gel de silice colloïdale avec des tailles de particules inférieures à 100 nm.

### 2.3.3 Nettoyage et stockage

Après les différentes étapes de polissage et avant le dépôt du traitement optique, un nettoyage approprié de la surface des cristaux est nécessaire pour enlever au mieux les résidus de polissage et autres pollutions éventuelles. Cette étape de nettoyage permet alors d'améliorer la tenue au flux de la surface en réduisant le nombre de centres précurseurs de l'endommagement [94].

Différentes techniques de nettoyage peuvent être employées. Le nettoyage peut être réalisé de façon manuel ou automatisé. La procédure manuelle repose essentiellement sur l'utilisation de papier optique et d'alcool. Cette technique très efficace nécessite cependant une certaine dextérité de l'opérateur afin de garantir une bonne reproductibilité. Le nettoyage peut également être effectué au moyen de chaînes de nettoyage automatisées. Ces chaînes utilisent principalement des bains lessiviels et l'effet des ultrasons. La tenue au flux de surface d'un composant optique peut être améliorée en optimisant les paramètres de la chaîne de nettoyage. De tels travaux sont présentés dans la thèse de H. Krol [6]. De plus, cette technique automatisée permet de traiter plusieurs pièces simultanément, et de garantir une bonne reproductibilité et un suivi des nettoyages réalisés. Cependant dans certains cas, le nettoyage manuel demeure plus efficace.

Le stockage est également un point très important concernant la pollution des composants. L'influence de différents procédés de stockage sur la contamination en surface de substrats de silice a été étudiée par H. Krol [6]. Trois types d'emballages différents ont été considérés : une boîte à membrane en polyuréthane, un sachet plastique et du papier optique. Il ressort de l'étude que le stockage dans la boîte à membrane est celui qui engendre le moins de pollution particulaire en surface de l'échantillon. Notons qu'il s'agit du seul cas où les faces optiques ne sont pas en contact avec l'emballage. Remarquons toutefois que cette étude a également mis en évidence que la manipulation des composants est bien plus polluante que le stockage en emballage adapté.

Dans l'ensemble de nos travaux, les cristaux testés seront donc stockés par ce procédé et des précautions seront prises concernant la manipulation des échantillons.

### 2.3.4 Traitements en couches minces optiques

L'utilisation des cristaux dans les cavités laser nécessite la réalisation de traitements antireflet sur les surfaces afin de diminuer les pertes d'énergie par réflexion sur le cristal. Par ailleurs, selon les fonctions souhaitées, des traitements différents peuvent également être déposés. Il est alors possible de réaliser des composants monolithiques, comme par



exemple une cavité OPO avec dépôt des couches miroirs sur le cristal lui-même.

Les traitements sont réalisés par des empilements diélectriques de couches minces. Différentes technologies de dépôt et matériaux peuvent être employés. Comme matériaux utilisés couramment, nous pouvons notamment citer  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{HfO}_2$ ,  $\text{MgF}_2$ ,...

Les principales techniques de dépôt utilisées sont [6] :

### **Évaporation par canon à électrons (EBD : Electron Beam Deposition)**

Dans cette technique, les matériaux à déposer sont vaporisés à l'aide d'un faisceau d'électrons. Les substrats sont chauffés à une température de l'ordre de 200 à 250°C. La croissance des couches se fait sous forme de colonnes, ce qui conduit à l'élaboration de couches poreuses, sensibles à l'environnement extérieur (absorption d'eau).

### **Évaporation assistée**

Afin de rendre les couches plus compactes, la technique d'évaporation peut être assistée par un faisceau d'ions (IAD : Ion Assisted Deposition) ou par plasma (IP : Ion Plating), permettant d'apporter une énergie complémentaire. Le dépôt assisté par faisceau d'ions est réalisé à température ambiante. L'assistance se fait par un canon à ions dirigé vers les substrats. Dans le cas de la technique d'évaporation assistée par plasma, le plasma réparti dans toute la chambre de dépôt interagit avec le matériau évaporé, augmentant ainsi l'énergie du dépôt. Les couches obtenues par ces techniques assistées sont alors plus denses, les rendant moins sensibles à l'environnement.

### **Pulvérisation ionique (IBS : Ion Beam Sputtering)**

Le dépôt par pulvérisation ionique est réalisé à température ambiante. Une source d'ions énergétiques est utilisée pour bombarder la cible de matériaux à déposer. Le matériau ainsi pulvérisé se condense sur les substrats. Cette méthode permet d'obtenir des couches denses. Pour améliorer encore la compacité des couches, cette technologie de dépôt peut être assistée par un faisceau ionique. Cette variante est alors appelée DIBS (Dual Ion Beam Sputtering). Le second faisceau ionique dirigé vers le substrat permet d'apporter une énergie supplémentaire durant le dépôt du matériau. Les couches DIBS présentent ainsi l'avantage d'être insensibles à l'environnement extérieur. En revanche, leur forte compacité entraîne la formation de contraintes mécaniques pouvant être gênantes, notamment pour la tenue au flux laser.

Le choix des matériaux, de la technologie de dépôt et du design de l'empilement va dépendre des applications du composant à réaliser.

Les traitements optiques peuvent constituer une limitation à la tenue au flux des composants. De nombreuses études sont dédiées spécifiquement à la compréhension des phénomènes d'endommagement dans les différents traitements optiques. Nous pouvons notamment citer les travaux effectués dans l'équipe par L. Gallais *et al.* sur l'influence des différentes techniques de dépôt sur l'endommagement laser [97, 98].



# Chapitre 3

## Métrologie de l'endommagement laser

### Sommaire

---

|            |  |           |
|------------|--|-----------|
| <b>3.1</b> | <b>Méthodologie de caractérisation de la tenue au flux laser . . .</b>     | <b>48</b> |
| 3.1.1      | Approche statistique . . . . .   | 48        |
| 3.1.2      | Approche globale : procédure Raster-scan . . . . .                         | 50        |
| <b>3.2</b> | <b>Modèle statistique de l'endommagement laser . . . . .</b>               | <b>51</b> |
| 3.2.1      | Différents modèles de présence de précurseurs . . . . .                    | 51        |
| 3.2.2      | Développement du modèle gaussien . . . . .                                 | 54        |
| 3.2.3      | Analyse et interprétation des courbes d'endommagement . . . . .            | 54        |
| 3.2.4      | Influence des différents paramètres sur la courbe de probabilité . . . . . | 56        |
| 3.2.5      | Cas de plusieurs classes de précurseurs dans le matériau . . . . .         | 57        |
| 3.2.6      | Conclusion sur l'intérêt du modèle gaussien . . . . .                      | 59        |
| <b>3.3</b> | <b>Dispositif expérimental de mesure de tenue au flux laser . . . . .</b>  | <b>60</b> |
| 3.3.1      | Présentation du banc . . . . .   | 60        |
| 3.3.2      | Détection des endommagements . . . . .                                     | 61        |
| 3.3.3      | Caractérisation des sources laser . . . . .                                | 63        |
| 3.3.4      | Incertitude sur la mesure de fluence . . . . .                             | 70        |
| <b>3.4</b> | <b>Validation du dispositif expérimental . . . . .</b>                     | <b>71</b> |
| 3.4.1      | Test de la métrologie sur la silice . . . . .                              | 71        |
| 3.4.2      | Répétabilité des mesures dans les cristaux . . . . .                       | 73        |

---

## 3.1 Méthodologie de caractérisation de la tenue au flux laser

L'étude systématique de la tenue au flux laser des composants optiques requiert le suivi de procédures bien définies. Le principe général des mesures consiste à irradier le matériau à différentes fluences et une analyse des zones testées permet de conclure quant à la présence ou non d'endommagements. Deux approches différentes peuvent alors être envisagées : une approche statistique ou une approche globale.

### 3.1.1 Approche statistique

L'approche statistique consiste à caractériser la tenue au flux des matériaux par leur probabilité d'endommagement en fonction de la fluence appliquée. Le caractère statistique des mesures est expliqué par la présence de défauts dans le matériau comme nous l'avons vu au paragraphe 1.5. Dans un matériau "idéal", la courbe de probabilité d'endommagement serait une fonction échelon de par le caractère déterministe de l'avalanche électronique : il suffit de fournir assez d'énergie pour provoquer un endommagement et ceci quelque soit le site irradié. En revanche, l'existence d'une distribution aléatoire de centres précurseurs dans le matériau entraîne nécessairement une dispersion dans les probabilités d'endommagement obtenues expérimentalement<sup>1</sup> (cf. figure 3.1). En effet, la probabilité d'endommagement revient à la probabilité de rencontre d'un précurseur par le faisceau laser pour une fluence d'irradiation supérieure au seuil de claquage du défaut.

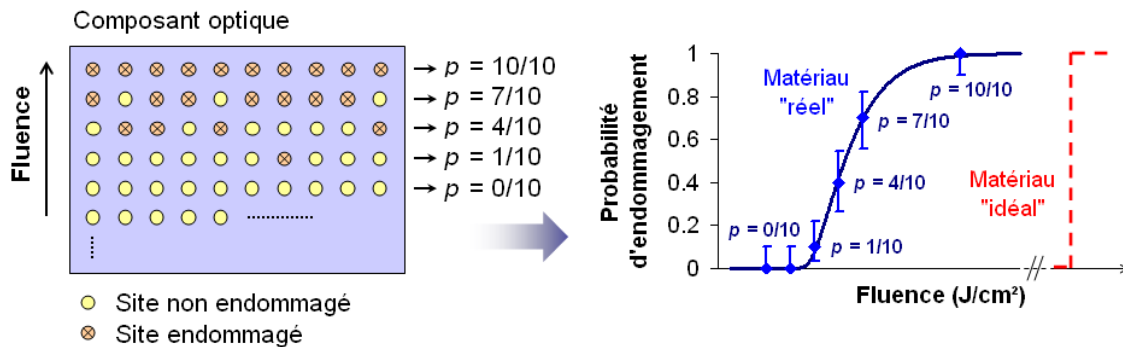


FIG. 3.1 – Principe d'une mesure statistique de tenue au flux laser :  $n$  sites sont testés pour chaque fluence (ici  $n = 10$ ). La probabilité d'endommagement  $p$  du matériau est alors donnée par  $p = k/n$  avec  $k$  le nombre de sites endommagés. Cette approche permet d'obtenir une courbe de probabilité d'endommagement du composant en fonction de la fluence d'irradiation laser.

<sup>1</sup>Notons qu'en régime femtoseconde, ce comportement tend à redevenir déterministe [99].

Pour effectuer cette mesure statistique de l'endommagement laser, les sites testés doivent être indépendants (aucune influence d'un site sur l'autre). Pour cela, la distance entre les sites doit être convenablement déterminée (voir section 4.2.2). Différents modes de test existent. Les deux procédures principales (1-on-1 et S-on-1) sont définies rigoureusement par des normes ISO [23, 24] facilitant les comparaisons des résultats obtenus par différentes équipes.

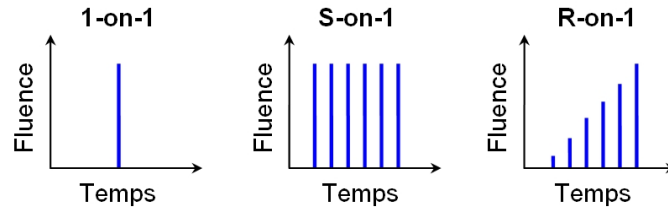


FIG. 3.2 – Représentation schématique de l'énergie vue par un site pour les différentes procédures de test : 1-on-1, S-on-1 et R-on-1.

### 3.1.1.1 Procédure 1-on-1

La procédure 1-on-1 est définie par la norme ISO 11254-1 [23]. Pour une fluence donnée,  $n$  sites indépendants sont irradiés successivement. Chaque site est irradié par un seul tir laser (figure 3.2). Une observation appropriée permet d'identifier chaque site comme endommagé ou non. La probabilité d'endommagement  $p$  du matériau à cette fluence est alors calculée par le rapport du nombre de sites endommagés  $k$  sur le nombre de sites testés  $n$  (figure 3.1). Une courbe de probabilité d'endommagement du matériau peut être obtenue en reproduisant cette procédure pour différentes valeurs de fluence. Ce mode de test est couramment utilisé, car il apparaît comme étant le plus simple à interpréter. En effet, contrairement aux procédures S-on-1 et R-on-1 explicitées ci-dessous, aucun "effet mémoire" du matériau n'est sollicité.

### 3.1.1.2 Procédure S-on-1

La procédure S-on-1 est définie par la norme ISO 11254-2 [24]. Comme dans le cas du mode 1-on-1,  $n$  sites indépendants sont irradiés pour différentes fluences. En revanche, chaque site est irradié par des tirs répétés à fluence constante jusqu'à endommagement ou jusqu'à ce que le nombre maximal de tirs  $S$  soit atteint (figure 3.2). Chmel [100] met en avant l'effet "mémoire" de certains matériaux vis à vis des tirs laser successifs. L'accumulation de tirs peut fragiliser le composant et induire un claquage à des fluences d'irradiation plus faibles que le seuil obtenu en mono-coup. On parle de *fatigue* du matériau. Le seuil de tenue au flux varie alors avec le nombre de tirs. Cet effet a notamment été observé en volume dans la silice à 1064 et 355 nm [101]. Remarquons que des études S-on-1 sur des cristaux de KDP [5] ont mis en évidence un effet de fatigue à 1064 nm et quasiment aucun

effet à 355 nm.

Ce mode de test est donc très intéressant pour étudier le comportement de fatigue des matériaux. Il permet en particulier de déterminer le seuil d'endommagement fonctionnel des composants sous tirs cumulés, primordial pour leur utilisation.

### 3.1.1.3 Procédure R-on-1

La procédure R-on-1 consiste à irradier sous tirs répétés  $n$  sites indépendants avec une rampe d'énergie jusqu'à endommagement (figure 3.2). Chaque site testé donne une valeur du seuil d'endommagement. Ce test permet donc de limiter la taille de la zone irradiée. Cette méthode est alors intéressante pour l'étude de composants de petites dimensions, tels que les cristaux non linéaires. Notons qu'une courbe de probabilité R-on-1 peut également être obtenue par ces mesures en traçant la probabilité d'endommagement cumulée en fonction de la fluence. En revanche, l'interprétation des résultats n'est pas aisée à cause des paramètres supplémentaires mis en jeu (fluence initiale, pente de la rampe de fluence,...). De plus, aucune norme ne définit à ce jour ces paramètres, rendant très difficiles les comparaisons des résultats issus de mesures différentes. Ces paramètres peuvent modifier la tenue au flux laser des composants par des "effets mémoire" du matériau. Sur certains composants, le seuil d'endommagement obtenu peut être supérieur à celui en mode 1-on-1. Cette augmentation du seuil de tenue au flux par pré-irradiation laser à des fluences plus faibles que la valeur de seuil est appelé *conditionnement laser*. Le mode R-on-1 est donc notamment utilisé pour caractériser l'aptitude au conditionnement des matériaux.

Peu de matériaux sont identifiés comme possédant cette propriété. Nous pouvons notamment citer les travaux de Wolfe *et al.* qui ont conduit au dépôt d'un brevet en 1995 sur le conditionnement d'empilements diélectriques à 1064 nm [102]. Concernant la silice, des procédures de conditionnement ont permis de limiter l'apparition d'endommagements en surface lors d'irradiation à 355 nm [103, 104, 105]. Différentes études montrent également la faisabilité du conditionnement dans l'UV des cristaux de KDP [106, 107]. Notons que la mise en oeuvre d'une procédure de conditionnement du KDP est prévue dans le projet NIF.

### 3.1.2 Approche globale : procédure Raster-scan

L'approche globale de la caractérisation de l'endommagement laser consiste à irradier l'ensemble du composant afin de révéler tous les défauts présents. Cependant, dans le cas d'optiques de grandes dimensions, le faisceau laser de test ne peut pas toujours être de taille similaire au composant à tester. Une procédure dite "Raster-scan", schématisée sur la figure 3.3, a été développée pour simuler un faisceau de grande dimension au moyen d'un faisceau plus petit. Elle consiste à irradier de façon quasi uniforme la surface optique par recouvrement de faisceaux laser. Les dommages initiés sont ensuite comptés et associés à

la fluence d'irradiation, permettant de représenter la densité de dommages en fonction de la fluence (cf. figure 3.3).

Par ailleurs, L. Lamagnère *et al.* [108] expose également une mesure statistique permettant d'obtenir des densités de dommages indépendantes de la forme, de la dimension et des fluctuations du faisceau laser de test.

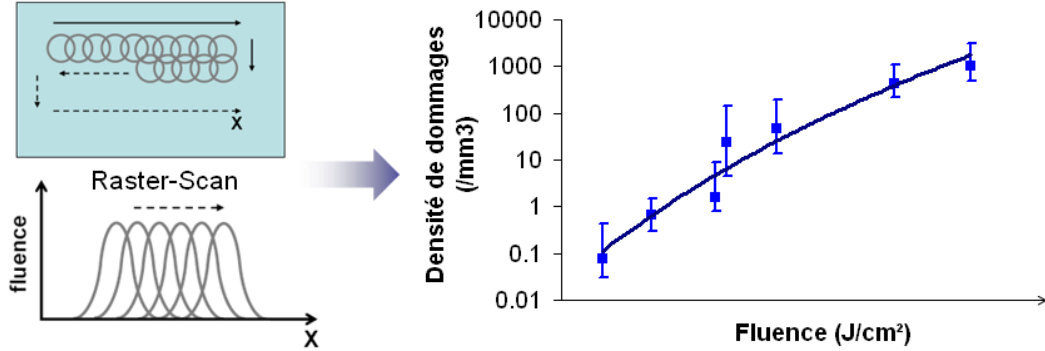


FIG. 3.3 – Schéma de principe d'une irradiation laser d'un composant optique en mode Raster-scan au moyen d'un faisceau gaussien. Représentation de la densité de dommages en fonction de la fluence.

Cette approche globale a l'avantage de tenir compte de l'ensemble des défauts des composants et en particulier de révéler des défauts présents en très faible densité. Elle permet donc d'obtenir le seuil fonctionnel de tenue au flux laser des optiques. Notons que la mise en place d'une telle procédure n'est pas adaptée ici à l'étude multi-paramètres de différents matériaux sans connaissance a priori en tenue au flux laser qui sont coûteux et de petites dimensions. Par la suite, seule l'approche statistique sera utilisée.

## 3.2 Modèle statistique de l'endommagement laser

Les mesures statistiques effectuées selon la procédure 1-on-1 décrite précédemment permettent d'obtenir la probabilité d'endommagement laser d'un composant en fonction de la fluence appliquée. Plusieurs modèles ont été développés pour pouvoir interpréter ces courbes de tenue au flux laser [109, 110, 111, 112, 113, 114, 115, 116, 43]. Nous décrivons en particulier le modèle gaussien [116] utilisé dans la suite de notre étude.

### 3.2.1 Différents modèles de présence de précurseurs

Comme nous l'avons vu, l'endommagement laser est généralement lié à la présence de défauts dans le matériau. Les modèles que nous allons présenter sont basés sur l'interaction entre des centres précurseurs responsables de l'endommagement laser et un faisceau laser.



Chaque défaut est caractérisé par son seuil propre de claquage. Les défauts possédant des seuils d'endommagement voisins forment une population appelée aussi classe de précurseurs. Notons que plusieurs classes de défauts peuvent être présentes dans un matériau. Nous nous intéressons dans cette partie au cas d'une seule population de défauts.

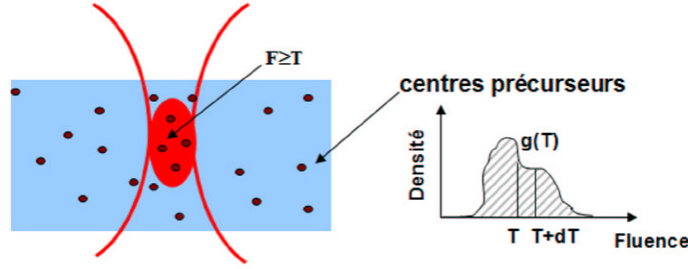


FIG. 3.4 – Représentation des centres précurseurs de l'endommagement laser dans un matériau optique et de leur fonction de répartition  $g(T)$ .

La probabilité d'endommagement du matériau à une fluence donnée  $F$  correspond à la probabilité de présence d'au moins un défaut sous le faisceau d'irradiation, recevant une densité d'énergie supérieure au seuil d'endommagement  $T$ . Si nous supposons que ces défauts sont isolés et distribués de façon aléatoire dans le matériau, alors cette probabilité suit une loi de Poisson telle que :

$$P(F) = 1 - \exp[-N(F)] \quad (3.1)$$

avec  $N(F)$  le nombre de centres précurseurs présents sous le spot d'irradiation et pouvant conduire à un endommagement pour une fluence  $F$ , qui est donné par :

$$N(F) = \int_0^F g(T) V_T(F) dT \quad (3.2)$$

où  $V_T(F)$  correspond au volume d'irradiation pour lequel la fluence  $F$  est supérieure au seuil de claquage  $T$  des défauts (cf. figure 3.4). Dans le cas d'un faisceau laser gaussien, son expression analytique est [4] :

$$V_T(F) = \frac{4\pi w_0^2 z_R}{3} (U^3 + U - \arctan U) \quad \text{avec} \quad U = \sqrt{\frac{F}{T_0} - 1} \quad (3.3)$$

où  $w_0$  et  $z_R$  représentent respectivement le waist et la distance de Rayleigh du faisceau laser.

La densité de défauts est spécifiée par la fonction de répartition  $g(T)$ . Celle-ci définit le nombre de défauts par unité de volume pouvant initier l'endommagement pour des fluences comprises entre  $T$  et  $T + dT$  (cf. figure 3.4).

Le premier modèle statistique développé à l'Institut Fresnel par Natoli *et al.* [114, 115] est un modèle dit "dégénéré". Il est basé sur l'hypothèse simplificatrice que tous les défauts d'une même classe s'endommagent à une fluence donnée. La fonction de répartition  $g(T)$  est alors représentée par un dirac centré en  $T = T_0$  (figure 3.5).

Cependant, ce modèle ne décrivait pas parfaitement l'allure des courbes d'endommagement expérimentales. Il a donc été affiné par la suite par Krol *et al.* [6, 116] pour donner lieu à un modèle "gaussien"<sup>2</sup>. Ce modèle considère que tous les défauts de même type ne s'endommagent pas nécessairement tous à la même fluence. Il est en effet physiquement très probable qu'au sein d'une même classe, les défauts n'aient pas tous la même taille ni la même absorption. La nature et la répartition des centres précurseurs étant a priori inconnues, Krol *et al.* ont choisi de décrire la répartition de leurs seuils de claquage par une fluctuation autour d'une valeur moyenne suivant une loi normale (figure 3.6).

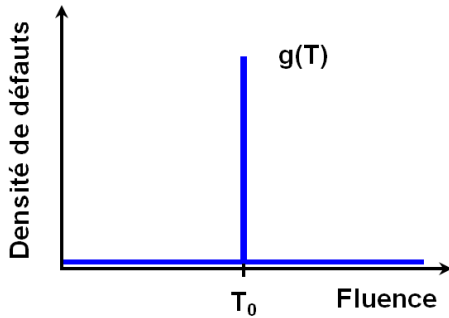


FIG. 3.5 – Distribution unique de défauts ayant un seuil d'endommagement laser  $T_0$ .

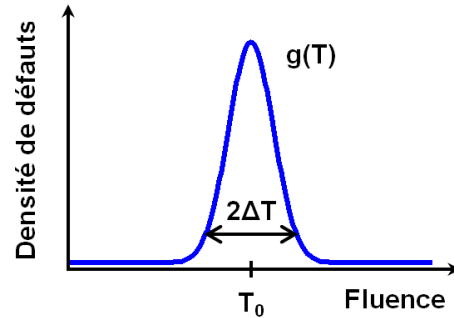


FIG. 3.6 – Distribution gaussienne de défauts autour du seuil d'endommagement  $T_0$  et ayant un écart-type  $\Delta T$ .

Gallais *et al.* [43, 7] ont proposé récemment un modèle permettant de déterminer des caractéristiques physiques des précurseurs telles que leur nature, la gamme de tailles et leur densité. Ce modèle repose sur le couplage entre un modèle statistique d'endommagement laser et un modèle thermique basé sur l'absorption de la lumière par les nano-précurseurs. Ce modèle a été validé dans le cas de couches minces optiques de  $\text{HfO}_2$  et a mis en évidence l'initiation de l'endommagement par des clusters métalliques de Hf.

Cependant, pour utiliser ce modèle, il est nécessaire d'avoir une connaissance a priori sur les précurseurs pouvant initier l'endommagement dans le matériau. Au vu de la complexité et de la diversité des cristaux étudiés ici, ce modèle n'est pas adapté car les hypothèses sur la nature des précurseurs éventuels seraient trop nombreuses. Dans la suite de ces travaux, nous utiliserons donc le modèle gaussien.

<sup>2</sup>La comparaison des modèles "dégénéré" et "gaussien" est détaillée dans [6].

### 3.2.2 Développement du modèle gaussien

Le modèle gaussien repose sur l'hypothèse que la fonction  $g(T)$  suit une loi gaussienne définie par trois paramètres : la valeur moyenne du seuil d'endommagement  $T_0$ , l'écart-type de ce seuil d'endommagement  $\Delta T$  pris à  $1/e^2$ , et la densité  $\rho$  obtenue par normalisation de  $g(T)$ . La fonction  $g(T)$  prend alors la forme suivante :

$$g(T) = \frac{2\rho}{\Delta T\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T-T_0}{\Delta T/2}\right)^2\right] \quad \text{avec} \quad \rho = \int_0^\infty g(T) dT \quad (3.4)$$

Nous calculons ici le cas où les centres précurseurs sont situés en volume du matériau pour permettre d'appliquer par la suite ce modèle à l'étude de la tenue au flux en volume des cristaux. Notons que l'endommagement laser peut aussi être initié par des défauts en surface ou dans le traitement optique du composant irradié. Pour ces cas, les calculs restent très similaires et sont détaillés dans [6, 116]. Dans le cas d'une surface, il suffit de considérer une surface d'interaction  $S_T(F)$  au lieu du volume  $V_T(F)$ . Pour un endommagement d'un traitement optique, il faut tenir compte de l'épaisseur des couches et de la répartition de la densité d'énergie dans l'empilement diélectrique. Cette dernière est obtenue par les codes classiques de modélisation du champ électromagnétique dans des couches minces [117].

Ainsi, dans le cas de centres précurseurs en volume, et en tenant compte des équations (3.1), (3.2) et (3.4), nous obtenons :

$$N(F) = \frac{2\rho}{\Delta T\sqrt{2\pi}} \int_0^F \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T-T_0}{\Delta T/2}\right)^2\right] V_T(F) dT \quad (3.5)$$

$$P(F) = 1 - \exp\left\{-\frac{2\rho}{\Delta T\sqrt{2\pi}} \int_0^F \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T-T_0}{\Delta T/2}\right)^2\right] V_T(F) dT\right\} \quad (3.6)$$

Comme le montre l'équation (3.6), la probabilité d'endommagement  $P(F)$  dépend des paramètres  $\rho$ ,  $T_0$  et  $\Delta T$ . L'ajustement des points expérimentaux par la fonction  $P(F)$  permet alors de déduire les valeurs suivantes caractéristiques des centres précurseurs de l'endommagement laser :

- leur densité  $\rho$ ,
- leur seuil d'endommagement moyen  $T_0$ ,
- l'écart-type  $\Delta T$  de ce seuil.

### 3.2.3 Analyse et interprétation des courbes d'endommagement

Les mesures effectuées selon la procédure 1-on-1 et le modèle gaussien nous permettent de tracer des courbes de probabilité d'endommagement des composants optiques. La figure

3.7 montre une courbe de tenue au flux laser que nous avons obtenue à 1064 nm dans un cristal de KDP. Nous observons un bon accord du modèle gaussien avec les points expérimentaux. Le calcul des barres d'erreurs sur les probabilités expérimentales est détaillé dans le paragraphe 4.2.3.

La courbe de tenue au flux laser est caractérisée par les paramètres suivants :

- le **seuil bas** ou **LIDT** (Laser Induced Damage Threshold) défini par la fluence la plus grande pour laquelle la probabilité d'endommagement est nulle ( $P=0$ ),
- le **seuil haut** correspondant à la fluence au-dessus de laquelle l'endommagement est certain ( $P=1$ ),
- la **penste** représentant la densité de précurseurs présents dans le matériau.

La courbe de répartition des précurseurs (encart de la figure 3.7) est issue du modèle gaussien. Elle est donnée par une distribution gaussienne des seuils d'endommagement autour de la valeur moyenne  $T_0$  avec un écart-type  $\Delta T$ .

Dans cet exemple, le seuil de tenue au flux du KDP à 1064 nm est de  $15 \text{ J/cm}^2$  avec un écart-type de  $2 \text{ J/cm}^2$ . La densité de précurseurs obtenue est de  $5500 \text{ précurseurs/mm}^3$ .

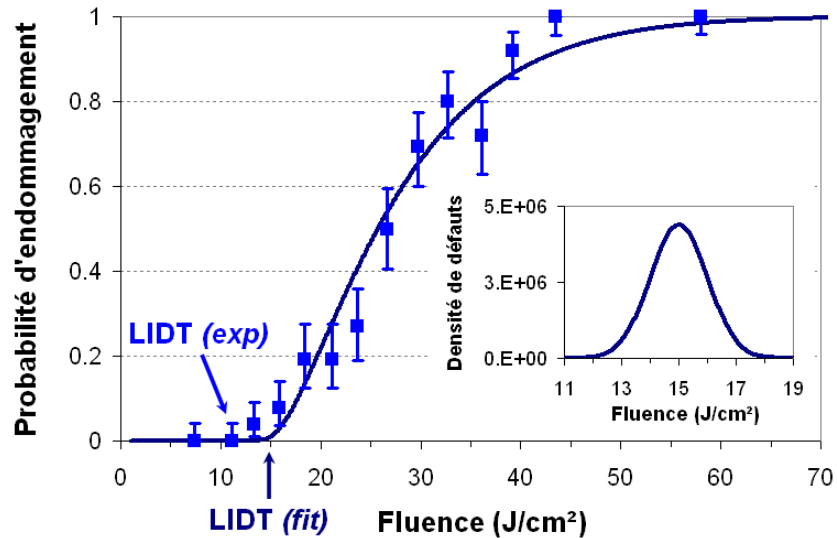


FIG. 3.7 – Courbe d'endommagement laser en volume du cristal de KDP (SHG-cut), irradié en mode 1-on-1, à 1064 nm, avec un faisceau de  $24 \mu\text{m}$  de diamètre. En encart, la répartition des défauts est issue du fit par le modèle gaussien.

L'ajustement d'une courbe expérimentale par le modèle gaussien permet ainsi de caractériser les précurseurs dans le matériau par leur seuil de tenue au flux laser  $T_0$ , l'écart-type de ce seuil  $\Delta T$  et leur densité de présence  $\rho$ .

### 3.2.4 Influence des différents paramètres sur la courbe de probabilité

Les équations (3.3) et (3.6) indiquent que la probabilité d'endommagement  $P(F)$  dépend des quatre paramètres suivants :  $\rho$ ,  $T_0$ ,  $\Delta T$  et  $w_0$ . Nous allons étudier leur influence sur la courbe de probabilité d'endommagement. Rappelons que nous considérons ici le cas d'une seule classe de précurseurs dans le matériau.

Comme nous l'avons vu précédemment,  $T_0$  est la valeur moyenne des seuils d'endommagement d'une classe de précurseurs. Son rôle essentiel sur le décalage en fluence de la courbe d'endommagement est donc évident.

Le paramètre  $\Delta T$  représente la distribution des seuils des précurseurs (au sein d'une même classe) autour de  $T_0$ . Il possède surtout une influence sur la partie de la courbe d'endommagement proche du seuil bas [6]. Un  $\Delta T$  élevé traduit le fait qu'il existe dans le matériau des précurseurs présentant des seuils d'endommagement très dispersés, et donc notamment qu'un certain nombre de précurseurs présente un seuil de claquage à des fluences bien plus basses que le seuil  $T_0$ . Le seuil bas de la courbe diminue alors quand  $\Delta T$  augmente.

Regardons à présent l'influence de la densité de précurseurs  $\rho$  sur la probabilité d'endommagement. La simulation numérique de  $P(F)$  pour différentes valeurs de  $\rho$  (figure 3.8(a)) montre que la pente de la courbe d'endommagement augmente avec le paramètre  $\rho$ . En effet, la probabilité de présence d'un précurseur sous le spot laser est d'autant plus grande que la densité de précurseurs est importante.

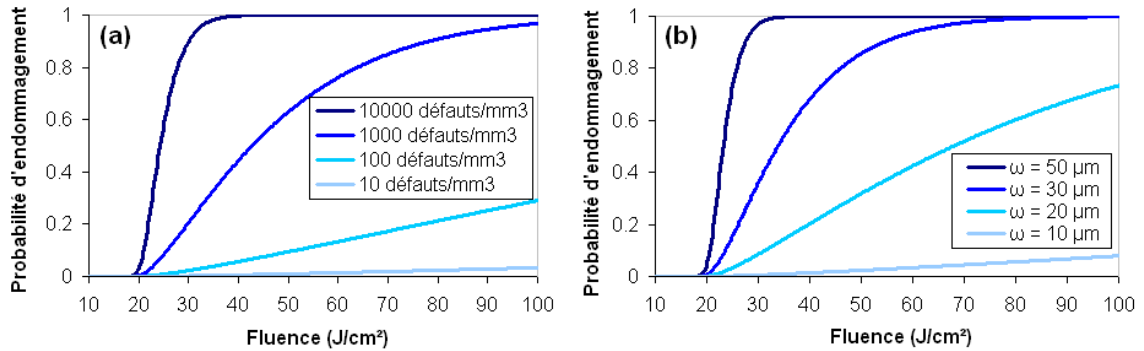


FIG. 3.8 – (a) Influence de la densité de précurseurs  $\rho$  sur la courbe de probabilité d'endommagement. Les paramètres suivants sont fixés arbitrairement :  $T_0 = 20 \text{ J/cm}^2$ ,  $\Delta T = 2 \text{ J/cm}^2$  et  $w_0 = 12 \mu\text{m}$ . (b) Influence de la taille du faisceau d'irradiation  $w_0$  sur la courbe de probabilité d'endommagement pour un matériau contenant un seul type de précurseurs. Les paramètres suivants sont fixés arbitrairement :  $T_0 = 20 \text{ J/cm}^2$ ,  $\Delta T = 2 \text{ J/cm}^2$  et  $\rho = 50 \text{ défauts/mm}^3$ .

La figure 3.8(b) illustre l'influence de la taille du faisceau de test sur la probabilité d'endommagement. De la même manière que le paramètre  $\rho$ , quand le rayon du faisceau  $w_0$  augmente, la pente de la courbe augmente également. Pour une densité donnée de précurseurs, la probabilité de rencontre d'un défaut par le faisceau de test est en effet d'autant plus élevée que la taille du faisceau est grande. Cet effet peut être vérifié expérimentalement en testant un composant avec des tailles de faisceau différentes.

### 3.2.5 Cas de plusieurs classes de précurseurs dans le matériau

Nous avons considéré jusqu'à présent le cas de matériaux possédant une seule population de défauts. Cependant dans de nombreux composants, différents types de précurseurs sont présents. Chaque classe de précurseurs  $C_i$  est caractérisée par un seuil moyen de claquage  $T_i$  et une densité propre  $\rho_i$ .

#### 3.2.5.1 Généralités dans le cas de deux populations de défauts

Prenons l'exemple d'un composant présentant deux types de précurseurs  $C_1$  et  $C_2$ . Les précurseurs de classe  $C_1$  ont un seuil  $T_1$  et une densité  $\rho_1$ , et les précurseurs de classe  $C_2$  possèdent un seuil  $T_2$  et une densité  $\rho_2$  tels que :  $\rho_1 < \rho_2$  et  $T_1 < T_2$ .

Lors des mesures statistiques de tenue au flux, trois cas peuvent alors se présenter selon les tailles de faisceau laser choisies par rapport aux densités des précurseurs présents dans le matériau :

- **Cas (a)** : Soit le faisceau de test est fortement focalisé, suffisamment pour que les défauts  $C_1$  de densité faible soient difficilement détectables avec un échantillonnage réaliste. Dans ce cas, la probabilité d'intercepter le précurseur  $C_1$  sera donc très faible, presque nulle. La courbe d'endommagement laser révélera alors uniquement les précurseurs  $C_2$  présents en plus grande densité. (voir figure 3.9, *rond bleu*)
- **Cas (b)** : Soit le faisceau de test est très large, suffisamment pour rencontrer les précurseurs  $C_1$  avec une très grande probabilité. Comme les précurseurs  $C_1$  ont un seuil de claquage plus faible que les précurseurs  $C_2$ , la courbe de probabilité fera apparaître uniquement les précurseurs  $C_1$  en masquant les précurseurs  $C_2$ . En effet, lorsque la fluence atteindra le seuil de claquage  $T_2$ , la probabilité d'endommagement sera déjà à 1. (voir figure 3.9, *triangle rouge*)
- **Cas (c)** : Soit le faisceau de test est moyennement focalisé, c'est-à-dire qu'il est suffisamment large pour que la probabilité de rencontre des précurseurs  $C_1$  soit non négligeable et suffisamment focalisé pour que les précurseurs  $C_2$  ne soient pas masqués par les précurseurs  $C_1$ . Dans ce cas, la courbe d'endommagement montrera à la fois les précurseurs  $C_1$  et  $C_2$  et une rupture de pente sur la courbe sera observée. (cas de la figure 3.10)

### 3.2.5.2 Cas du cristal de KDP

Nous avons mesuré la tenue au flux laser en mode 1-on-1 à 355 nm dans le volume du cristal de KDP avec deux tailles de faisceau de test : en faisceau "focalisé" (diamètre au waist :  $24 \mu\text{m}$ ) et "parallèle" (diamètre au waist :  $104 \mu\text{m}$ ). Remarquons qu'en faisceau parallèle, les endommagements apparaissent dans le volume du matériau, la surface ayant un seuil d'endommagement supérieur à celui du volume.

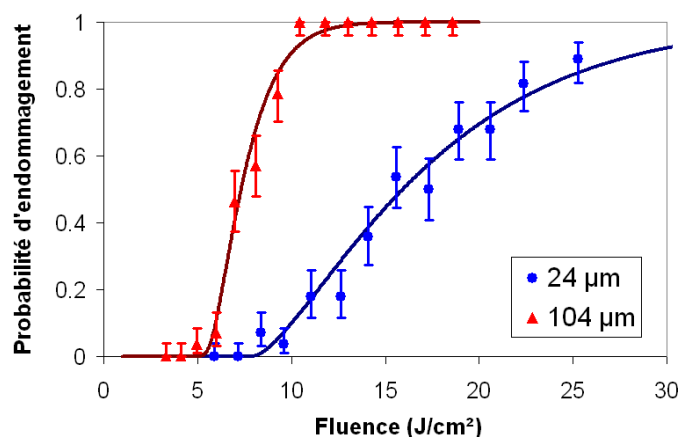


FIG. 3.9 – Courbe de probabilité d'endommagement laser en volume du cristal de KDP (SHG-cut), irradié en mode 1-on-1 à 355 nm avec un faisceau de  $24 \mu\text{m}$  (rond bleu) et de  $104 \mu\text{m}$  (triangle rouge) de diamètre au waist. Les deux tailles de faisceau semblent révéler deux types de précurseurs différents qui ne présentent pas les mêmes seuils de claquage.

D'après les courbes de probabilité d'endommagement de la figure 3.9, il semblerait que deux types de précurseurs soient révélés dans le KDP à  $3\omega$ . En effet, le faisceau focalisé révèle un type de précurseurs possédant un seuil de claquage de  $8,3 \text{ J/cm}^2$  et présents en forte densité ( $1200 \text{ précurseurs/mm}^3$ ). En faisceau parallèle, une deuxième classe de précurseurs est mise en évidence. Ces derniers sont présents en très faible densité ( $15 \text{ précurseurs/mm}^3$ ) mais possèdent un seuil plus faible ( $5,4 \text{ J/cm}^2$ ). Ces mesures confirment les résultats obtenus par Capoulade *et al.* [7, 118]. D'autre part, la présence de deux populations de précurseurs a également été montrée par des mesures en densité de dommages par De-Mange *et al.* [119]. Notons qu'une autre représentation en densité de dommages peut nous amener à ne pas discriminer deux types de défauts dans le cristal de KDP à  $3\omega$  [120].

### 3.2.5.3 Exemple d'un traitement antireflet

La mise en évidence de deux classes de précurseurs est claire dans le cas d'une taille de faisceau de test interceptant les deux types de précurseurs et faisant ainsi apparaître deux pentes distinctes dans la courbe de probabilité d'endommagement (**cas (c)**).

La figure 3.10 présente une courbe de tenue au flux laser en mode 1-on-1 d'un traitement antireflet déposé sur un substrat de silice irradié à 1064 nm avec un faisceau de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre.

Dans ce cas, nous observons clairement deux populations de précurseurs : un premier type de précurseurs qui possède un seuil de claquage à faible fluence ( $25 \text{ J/cm}^2$ ) et qui est présent en faible densité ( $35 \text{ précurseurs/mm}^2$ ), et un second type ayant un seuil d'endommagement plus élevé ( $60 \text{ J/cm}^2$ ) mais présent en plus forte densité ( $600 \text{ précurseurs/mm}^2$ ). L'observation de ces deux pentes avec le même faisceau de test permet de statuer de manière évidente quant à la présence de deux types de précurseurs dans le composant.

En outre, dans cet exemple, il est possible de préciser l'origine des deux classes de défauts. Le premier type de précurseurs provient de l'empilement de couches minces, tandis que le seuil de claquage du second correspond au seuil d'endommagement de la surface du substrat en silice (cf. tableau 3.5).

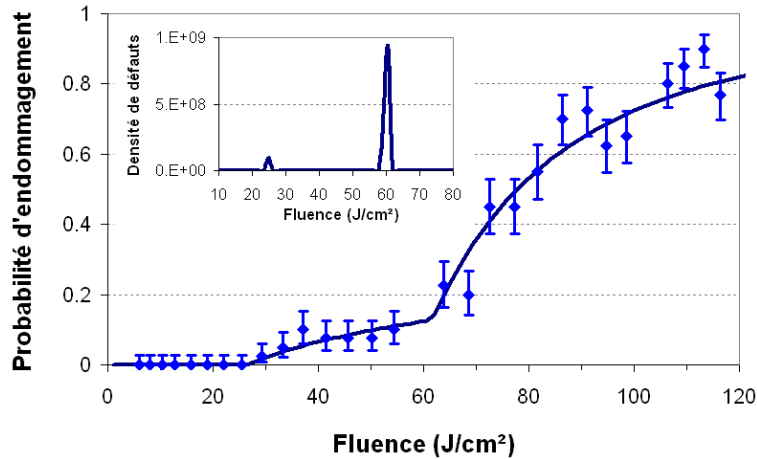


FIG. 3.10 – Courbe de tenue au flux laser d'un traitement antireflet déposé sur un substrat de silice, irradié en mode 1-on-1 à 1064 nm avec un faisceau de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre. La courbe d'endommagement et la répartition des précurseurs (en encart) révèlent deux types de défauts présents sur le composant possédant des seuils de claquage et des densités propres.

### 3.2.6 Conclusion sur l'intérêt du modèle gaussien

Le modèle gaussien développé est adapté à une étude fine de la tenue au flux laser des matériaux. Il permet l'interprétation des courbes expérimentales de probabilité d'endommagement obtenues selon la procédure 1-on-1 sans nécessiter de connaissance a priori sur les précurseurs responsables de l'endommagement présents dans les composants testés. Le modèle permet alors de déterminer le nombre de types de précurseurs différents (avec une taille de faisceau adaptée), de caractériser leurs seuils de claquage  $T_i$  et leurs densités de



présence  $\rho_i$  dans le matériau.

Ce modèle sera utilisé par la suite pour interpréter les mesures d'endommagement laser réalisées sur les différents cristaux.

### 3.3 Dispositif expérimental de mesure de tenue au flux laser

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, l'interaction laser-matière est un phénomène très complexe de par la multiplicité des mécanismes pouvant intervenir. L'endommagement laser d'un matériau dépend ainsi de nombreux paramètres fixés par les conditions du test : longueur d'onde d'irradiation, durée d'impulsion, nombre de tirs, fréquence de répétition, taille du faisceau. Il n'existe donc pas de valeur absolue de tenue au flux laser pour un matériau donné. C'est pourquoi la description et la maîtrise des conditions de test sont très importantes. L'étude bibliographique sur l'influence de ces paramètres de tirs sur la mesure de l'endommagement laser est détaillée dans la thèse de B. Bertussi [5].

#### 3.3.1 Présentation du banc

Le dispositif expérimental décrit en figure 3.11 permet de réaliser des mesures de tenue au flux laser en régime pulsé nanoseconde aux longueurs d'onde du laser Nd:YAG : au fondamental 1064 nm et à ses harmoniques 532 nm et 355 nm.

L'énergie des impulsions laser est contrôlée par une lame demi-onde ( $\lambda/2$ ) fixée sur un moteur rotatif suivi d'un cube polariseur Glan-Laser. Une lame de prélèvement envoie alors une partie du faisceau incident sur un détecteur pyroélectrique (Ophir PE 10) permettant de mesurer l'énergie à chaque tir laser. Une autre partie du faisceau est également prélevée afin de mesurer en temps réel le profil spatial du faisceau focalisé.

Finalement, le faisceau laser est focalisé plus ou moins fortement sur l'échantillon à l'aide d'une lentille plan-convexe pour les faisceaux faiblement focalisés ou d'un objectif de microscope pour les faisceaux fortement focalisés. Typiquement, nous pouvons obtenir des tailles de faisceau de l'ordre de quelques micromètres à une centaine de micromètres. Les tests sont effectués en incidence normale. Notons qu'un léger tilt permet cependant de s'affranchir des problèmes dus à la réflexion. Le réglage de la focalisation est assurée manuellement par déplacement de la lentille sur une platine de translation. La focalisation sur les surfaces est optimisée en cherchant à maximiser la probabilité d'endommagement [6].

L'échantillon est fixé sur une platine motorisée XY de façon à pouvoir le déplacer dans le plan orthogonal à la direction d'irradiation laser afin d'adresser une matrice de sites. Les endommagements sont détectés par diffusion grâce à une source fibrée et une caméra munie d'un microscope. La détection est automatisée par traitement d'images (comparaison de l'image du site avant et après tir laser).

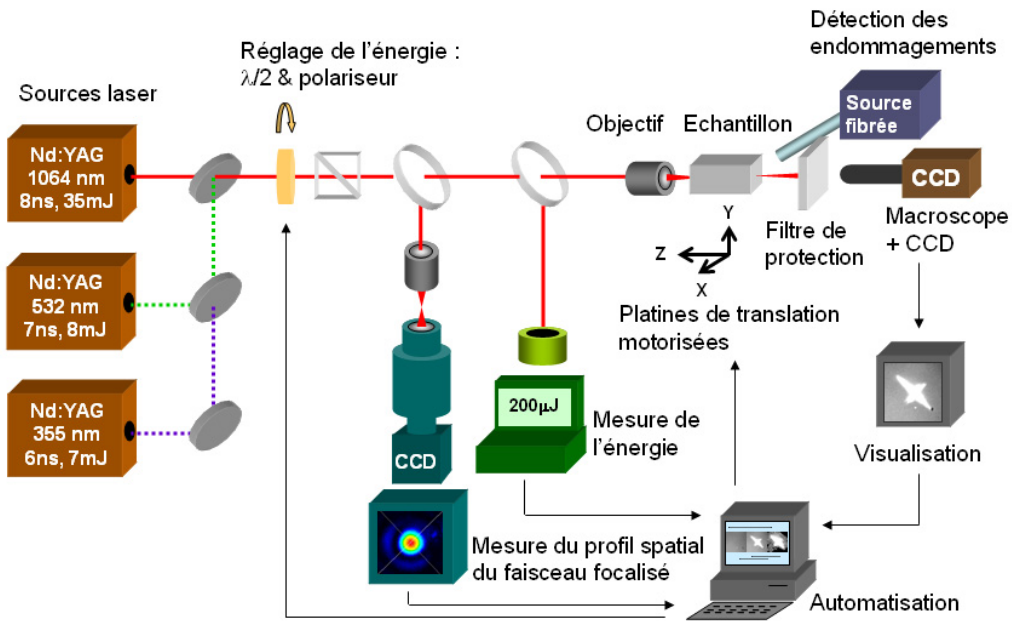


FIG. 3.11 – Schéma du dispositif expérimental de tenue au flux laser.

L'ensemble du banc de mesure est entièrement automatisé à l'aide d'un programme développé avec le logiciel LabVIEW qui contrôle :

- le pilotage des sources laser
- la rotation de la lame demi-onde pour faire varier l'énergie du faisceau d'irradiation
- l'acquisition de l'énergie pour chaque impulsion
- la position de l'échantillon pour réaliser la matrice de sites
- l'acquisition et le traitement des images de la caméra pour la détection des dommages

Ce programme permet la mesure de tenue au flux laser selon les procédures 1-on-1, S-on-1 et R-on-1. L'automatisation du banc garantit une bonne répétabilité des mesures et rend possible les études sous irradiation multiple avec un grand nombre de tirs pour lesquelles le temps de test est très long (typiquement 55 h pour une matrice de 10 fluences et 20 sites/fluence avec  $S = 10\,000$  tirs/site à 10 Hz).

### 3.3.2 Détection des endommagements

La détection de l'endommagement est un point important de la métrologie. Différentes techniques peuvent être utilisées selon les composants testés et les tailles de faisceaux choisies [114]. Dans le cas où l'endommagement a lieu dans un plan donné du composant (lorsque le faisceau est fortement focalisé ou lorsque l'endommagement a lieu en surface), l'échantillon peut être observé in-situ par microscopie optique. Selon l'objectif utilisé, cette

technique permet de visualiser des endommagements de petites dimensions (inférieurs au micron), néanmoins sur une profondeur de champ très courte.

Ce type de dispositif ne convient alors pas à l'étude des cristaux. En effet, le point faible des cristaux est souvent leur tenue au flux en volume. Pour des raisons détaillées dans le chapitre 4, un grand nombre de mesures est effectué en faisceau parallèle. Ainsi, ces tests conduisent à des endommagements pouvant apparaître à n'importe quelle profondeur en volume dans le composant. La volonté de pouvoir détecter de la même manière des endommagements en surface et dans l'ensemble du volume des cristaux nous a donc amené au choix d'un autre type de dispositif de détection possédant une grande profondeur de champ avec néanmoins une sensibilité importante.

L'observation des sites irradiés est alors assurée par une caméra CCD haute sensibilité (Cohu 4910, 0,02 lux) munie d'un zoom à focale variable (Edmund VZM 450i) possédant une grande profondeur de champ grâce à un diaphragme intégré. Ce dispositif présente une longue distance de travail (90 mm) permettant l'observation à travers des composants optiques épais et a un grossissement maximum de 180 fois. Les endommagements sont détectés in-situ par rétro-diffusion grâce à une lampe halogène fibrée de forte puissance (1500 W) qui vient éclairer l'échantillon. Un filtre de protection coupant les longueurs d'onde des sources laser est placé devant le dispositif de visualisation afin de ne pas endommager la caméra qui se trouve sur l'axe optique du laser de puissance.

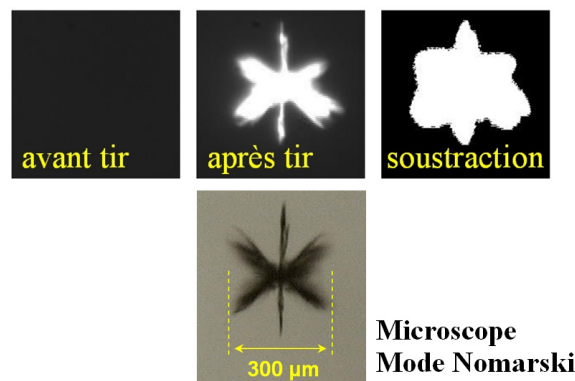


FIG. 3.12 – Détection in-situ d'un endommagement par soustraction des images prises avant et après irradiation laser du site. Comparaison avec l'observation ex-situ au microscope en mode Nomarski. Cas d'un dommage à 1064 nm dans un cristal de LBO.

L'automatisation de la détection est effectuée par traitement d'images en comparant l'image du site irradié prise avant et après tir laser (figure 3.12). Notons que contrairement à une technique classique de diffusion par un laser sonde (He-Ne) collectée par une photodiode, ce dispositif présente l'avantage de donner approximativement la morphologie et la

localisation des dommages.

Avec un tel dispositif, nous sommes capables de détecter des endommagements de l'ordre d'une dizaine de micromètres sur les 10 mm d'épaisseur des cristaux étudiés. Cette détection a été validée par la comparaison avec l'observation par microscopie optique sur des endommagements effectués en volume et en surface de la silice.

La morphologie des endommagements sera observée ex-situ avec un microscope (Carl Zeiss AxioTech) pouvant travailler en champ clair, champ sombre ou contraste interférentiel (mode Nomarski). La surface des composants pourra également être caractérisée par profilométrie optique ou microscopie à force atomique.

Notons que dans le cas d'études d'endommagement dans des liquides, un microphone permet de détecter l'onde acoustique provenant du claquage des impuretés contenus dans le liquide [114]. Cette technique de détection du claquage est en particulier utilisée pour caractériser les liquides de polissage et de nettoyage [52]. Elle peut également être employée dans le cas d'endommagement de surface causant un très faible cratère (mauvaise détection à l'imagerie) mais une grande brûlure de plasma (bonne détection de l'onde acoustique).

#### 3.3.3 Caractérisation des sources laser

De manière à maîtriser au mieux tous les paramètres entrant en jeu lors d'un test de tenue au flux laser, une bonne connaissance des impulsions laser est primordiale. Les profils spatiaux et temporels du faisceau de test doivent être rigoureusement mesurés et les sources laser doivent être les plus stables possibles (aussi bien spatialement que temporellement) entre chaque impulsion. Nous allons donc présenter ici une caractérisation approfondie des sources laser utilisées pour les mesures.

##### 3.3.3.1 Spécifications principales

Deux sources lasers impulsives Nd:YAG (Quantel Brilliant Ultra GRM) permettent d'avoir accès aux longueurs d'onde à 1064 nm et 355 nm. La source à 532 nm est obtenue par doublage de fréquence du laser infrarouge à l'aide d'un cristal de KTP (SHG-cut, dimension 10×10×10 mm, sans traitement antireflet) placé juste après la cavité laser à 1064 nm suivi d'un filtre coupant l'infrarouge. Les caractéristiques principales de ces sources sont reportées dans le tableau 3.1.

Notons que pour toute l'étude de tenue au flux des cristaux en irradiation multiple, la fréquence d'utilisation des lasers sera de 10 Hz. L'influence de la cadence de tirs sur la probabilité d'endommagement fait l'objet de différentes études [100, 121]. B. Bertussi [5] a notamment mis en évidence l'influence de la fréquence d'irradiation sur la silice. En revanche, sur les cristaux de KDP, il a montré qu'il n'y a pas d'effets de fréquence dans la gamme 0,1 à 10 Hz. Cette étude du comportement en fréquence sur les cristaux ne sera

pas réalisée ici. L'intérêt serait de travailler dans des gammes de fréquence supérieures à 10 Hz, typiquement 100 Hz et au-delà.

|                               |                  |                  |                  |
|-------------------------------|------------------|------------------|------------------|
| Longueur d'onde               | 1064 nm          | 532 nm           | 355 nm           |
| Durée d'impulsion effective   | $8,0 \pm 1,1$ ns | $6,5 \pm 0,9$ ns | $5,8 \pm 0,8$ ns |
| Énergie maximale              | 35 mJ            | 8 mJ             | 7 mJ             |
| Fréquence de répétition       | 1 à 10 Hz        |                  |                  |
| Polarisation                  | linéaire         |                  |                  |
| Monomode temporel (injection) | non              |                  |                  |

TAB. 3.1 – Caractéristiques principales des sources laser Nd:YAG.

La caractérisation complète des trois sources laser est effectuée ci-après. Nous avons choisi de l'illustrer avec le laser à 532 nm, car il s'agit d'une source infrarouge modifiée pour la génération de seconde harmonique, qui n'a jamais été spécifiée. L'ensemble des figures 3.13 à 3.19 présente alors les mesures obtenues sur la source laser à 532 nm à une fréquence de 10 Hz en faisceau focalisé avec une lentille plan-convexe de focale 100 mm donnant un diamètre au waist de  $23 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ .

### 3.3.3.2 Stabilité en énergie

L'étude statistique de l'endommagement laser nécessite d'irradier un nombre  $n$  de sites à la même fluence. Lors de mesures S-on-1,  $S$  tirs à fluence constante doivent en plus être réalisés sur chaque site. Pour que ces études soient possibles, les lasers utilisés doivent donc présenter une grande stabilité en énergie au cours du temps. Afin d'estimer la stabilité des sources, nous avons mesuré l'énergie de 1000 impulsions consécutives à une cadence de 10 Hz (figure 3.13). Les résultats obtenus pour les trois sources sont reportés dans le tableau 3.2.

|                             |         |        |        |
|-----------------------------|---------|--------|--------|
| Longueur d'onde             | 1064 nm | 532 nm | 355 nm |
| Écart-type relatif          | 1,5 %   | 2,8 %  | 3,5 %  |
| Variation maximale relative | 7,5 %   | 9,4 %  | 12,2 % |

TAB. 3.2 – Stabilité en énergie des sources laser Nd:YAG à 10 Hz.

La stabilité en énergie des sources laser est acceptable (écart-type inférieur à 4 %). En outre, pour la procédure 1-on-1, l'enregistrement de l'énergie pour chaque impulsion permet d'autoriser l'existence de quelques fluctuations (variation maximale autour de 10 %) au cours de la campagne de mesure. Il est en effet possible de tenir compte de ces fluctuations lors du calcul statistique.

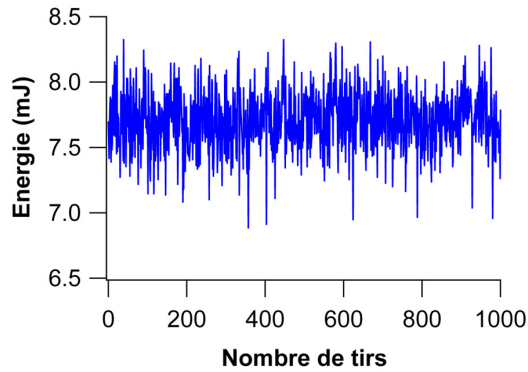


FIG. 3.13 – Stabilité en énergie de la source laser à 532 nm à 10 Hz.

### 3.3.3.3 Mesure du profil temporel

La durée des impulsions [122] et la forme de leur profil temporel [123] jouent un rôle important dans les mécanismes d'endommagement laser. Les interactions laser-matière ne suivent pas les mêmes processus qu'il s'agisse d'impulsions courtes ou longues. Pour des durées d'impulsion laser supérieures à 10 ps, l'effet de leur durée sur le seuil d'endommagement suit généralement une loi d'échelle empirique en  $\sqrt{\tau}$  [34, 122]. Cette dépendance temporelle est caractéristique de l'interaction thermique ayant lieu.

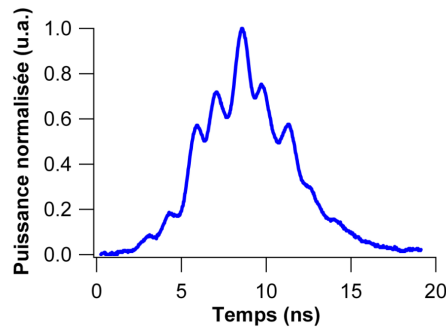


FIG. 3.14 – Profil temporel de la source laser à 532 nm.

La connaissance précise de la largeur temporelle de l'impulsion est donc indispensable pour comparer les résultats obtenus avec différents lasers. De plus, les cavités lasers utilisées ne sont pas monomodes longitudinales. Il convient alors de caractériser les fluctuations de puissance par rapport au profil gaussien. Le profil temporel est mesuré à l'aide d'une photodiode rapide (Newfocus 1437M, temps de montée: 17 ps, bande passante: 25 GHz) connectée à un oscilloscope (Tektronix DPO 7254, bande passante: 2.5 GHz, fréquence

d'échantillonnage: 40 GS/s). Avec de telles caractéristiques, la limitation éventuelle de la mesure du signal viendrait de l'oscilloscope et non de la photodiode rapide. Le profil temporel du laser à 532 nm présenté sur la figure 3.14 est représentatif de ceux obtenus pour les trois sources.

La fréquence maximale du signal mesuré obtenue par Transformée de Fourier ( $F_{max} = 1,4$  GHz) est inférieure à la bande passante et à plus de  $10 \times$  la fréquence d'échantillonnage de l'oscilloscope (critère pratique pour un bon échantillonnage du signal, plus sévère que le théorème de Nyquist-Shannon). Dans de telles conditions, le signal mesuré correspond donc bien à la forme exacte de l'impulsion temporelle.

Au vu de l'allure du profil temporel, il a fallu se demander si les pics de puissance observés pouvaient induire des artefacts de mesure, c'est-à-dire s'ils pouvaient conduire à un endommagement alors que la fluence moyenne reste inférieure au seuil de claquage. Cette interrogation récurrente dans la communauté a été dissipée dans notre cas en comparant nos courbes de probabilité d'endommagement de la silice avec celles obtenues à l'aide d'un laser injecté (monomode temporel). En effet, l'écart entre les deux résultats reste inférieur à 20 %, ce qui est relativement correct pour des mesures effectuées sur des bancs différents (incertitude de 13 % sur la détermination absolue de la fluence, cf. section 3.3.4).

Néanmoins, nous avons essayé de tenir compte au mieux des fluctuations en observant le comportement du profil sur plusieurs impulsions. Les résultats obtenus sur 100 mesures (tableau 3.3) montre que les fluctuations restent acceptables pour les trois lasers (écart-type autour de 14 %).

|                             |         |        |        |
|-----------------------------|---------|--------|--------|
| Longueur d'onde             | 1064 nm | 532 nm | 355 nm |
| Durée d'impulsion effective | 8,0 ns  | 6,5 ns | 5,8 ns |
| Écart-type relatif          | 13,9 %  | 13,3 % | 14,6 % |

TAB. 3.3 – Mesure de la durée d'impulsion des sources laser Nd:YAG à 10 Hz sur 100 tirs.

La durée d'impulsion est donnée en durée effective d'impulsion comme définie dans la norme ISO [23] :

$$\tau_{eff} = \frac{\int P(t)dt}{P_{Max}} \quad (3.7)$$

où  $\tau_{eff}$  est la durée effective,  $P(t)$  la puissance en fonction du temps et  $P_{Max}$  la puissance maximale de l'impulsion laser.

Nous observons que la durée d'impulsion augmente avec la longueur d'onde du laser. Cette légère différence entre les trois sources pourra être corrigée grâce à la loi en  $\sqrt{\tau}$

(généralement constatée dans le domaine nanoseconde) lors des comparaisons des mesures effectuées aux trois longueurs d'onde.

### 3.3.3.4 Détermination du profil spatial

Pour chaque impulsion laser, la fluence d'irradiation vue par l'échantillon est donnée grâce à la connaissance de l'énergie et de la taille du faisceau focalisé. La détermination précise du diamètre au waist du faisceau de test est donc indispensable. Le profil spatial du faisceau focalisé est mesuré à l'aide d'une caméra CCD 14 bits (Dataray WinCamD UCD-23) munie d'un vidéomicroscope avec un objectif adapté à la taille du faisceau observé<sup>3</sup>. La figure 3.15 montre l'allure du profil au waist du faisceau laser à 532 nm focalisé avec une lentille plan-convexe de focale 100 mm donnant un diamètre au waist de  $23 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ .

L'utilisation de différents objectifs de focalisation ou de lentilles plan-convexes permet d'obtenir des faisceaux de diamètre typiquement compris entre 10 et  $200 \mu\text{m}$  pour les trois longueurs d'onde de travail. La taille maximale est limitée par l'énergie des sources laser (densité d'énergie capable d'induire un endommagement).

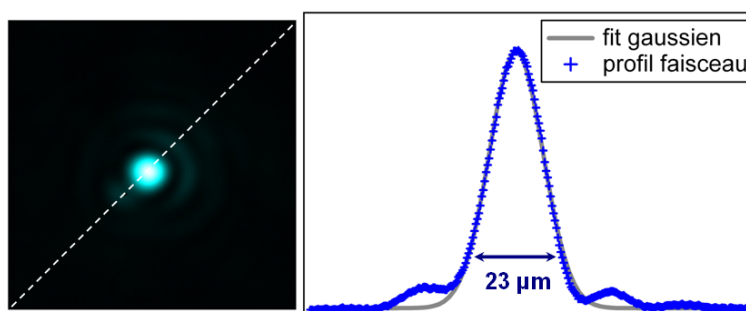


FIG. 3.15 – Profil spatial au waist du faisceau laser à 532 nm focalisé avec une lentille plan-convexe de focale 100 mm donnant un diamètre au waist de  $23 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ .

La mesure du diamètre du faisceau dans différents plans en  $Z$  autour de la focale permet de tracer l'allure de la caustique du faisceau (figure 3.16). Nous observons que la caustique n'est pas symétrique : le faisceau diverge plus rapidement qu'il ne converge, car le mode de propagation du laser n'est pas gaussien (cavité GRM). La caractérisation de la caustique nous permet donc de définir la profondeur de champ réelle du faisceau de test.

Comme le montre la figure 3.15, le profil spatial du faisceau focalisé n'est pas parfaitement gaussien. Une partie non négligeable de l'énergie de l'impulsion laser se trouve dans

<sup>3</sup>D'autres techniques de mesure du diamètre du faisceau peuvent être employées comme la technique du couteau de Foucault.



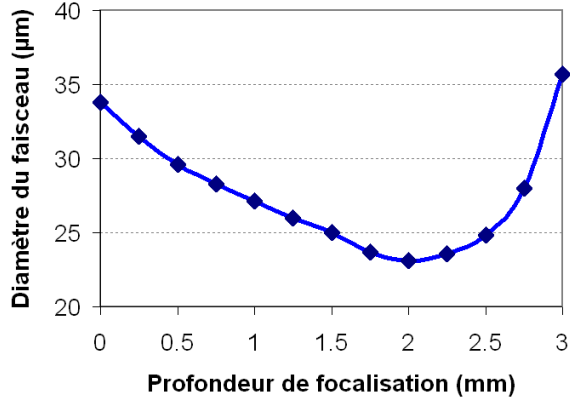


FIG. 3.16 – Caustique du faisceau laser focalisé à 532 nm (diamètre au waist de 23  $\mu\text{m}$ ).

les "pieds" de la distribution. Or la mesure de l'énergie est effectuée grâce au détecteur pyroélectrique qui mesure l'énergie totale du faisceau. Dans ces conditions, la mesure du diamètre du faisceau à  $1/e^2$  revient à surestimer les fluences d'irradiation. En effet, la taille réelle du faisceau est plus importante que celle d'un faisceau gaussien idéal. Pour remédier à ce problème de métrologie, la norme ISO 11254 [23] définit une surface effective  $S_{\text{eff}}$  du faisceau. Cette surface effective lie l'énergie totale du faisceau (celle que l'on mesure) à la fluence maximale (celle que l'on cherche). Dans le cas d'un faisceau gaussien, elle correspond à la moitié de la surface du faisceau prise à  $1/e^2$ . Dans le cas d'un faisceau quelconque, nous pouvons la déterminer en analysant l'image du faisceau focalisé.  $S_{\text{eff}}$  est alors définie par :

$$S_{\text{eff}} = E_T \frac{S_{\text{pixel}}}{E_M} \quad (3.8)$$

où  $E_T$  est la somme des valeurs de tous les pixels de l'image,  $S_{\text{pixel}}$  représente la surface d'un pixel et  $E_M$  est la valeur maximale de l'ensemble des pixels.

Par la suite, les fluences seront toujours calculées en tenant compte des surfaces effectives. Cependant, les tailles des faisceaux seront données avec les diamètres au waist à  $1/e^2$  pour être conforme à la taille du faisceau entrant en jeu lors de l'endommagement.

La figure 3.17 illustre un endommagement en face avant d'une silice dont la taille est identique au diamètre mesuré à  $1/e^2$ . Ce type "d'empreinte du faisceau" peut être utilisé pour une mesure du diamètre du faisceau à condition d'utiliser un matériau avec une transformation bien connue [124].

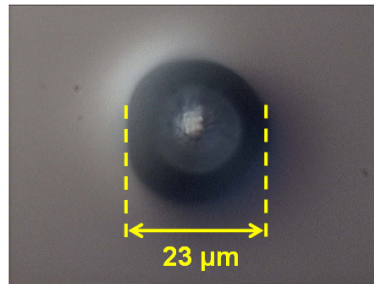


FIG. 3.17 – "Empreinte" du faisceau laser à 532 nm focalisé en face avant d'une silice (diamètre au waist de  $23 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ ). Image au microscope optique en mode Nomarski.

### 3.3.3.5 Stabilité spatiale du faisceau

De la même manière que pour la stabilité en énergie, il convient de caractériser la stabilité de la distribution spatiale du faisceau. La figure 3.18 représente l'évolution du diamètre au waist du faisceau laser à 532 nm sur 1000 tirs. Nous obtenons dans ce cas un faisceau de diamètre  $23,2 \pm 0,7 \mu\text{m}$ . L'erreur commise sur la mesure du diamètre est tout à fait acceptable puisque la variation maximale est inférieure à 3 %.

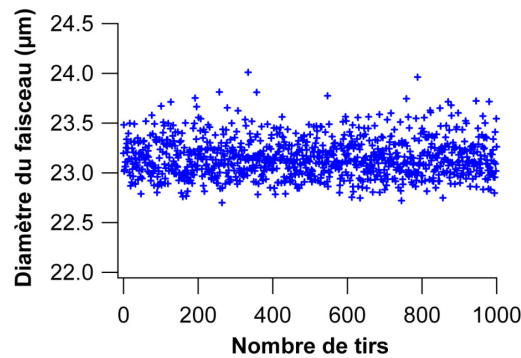


FIG. 3.18 – Mesure de la stabilité du diamètre du faisceau laser à 532 nm sur 1000 tirs successifs à 10 Hz (diamètre au waist  $23 \mu\text{m}$ ).

Dans les chapitres 5 et 6, nous allons étudier le comportement de différents cristaux sous tirs laser cumulés. Le dépointage du faisceau laser focalisé doit alors être négligeable par rapport à la taille du faisceau d'irradiation pour éviter toute erreur d'interprétation des résultats. Le dépointage est donc un paramètre important à considérer. La figure 3.19 présente le dépointage sur 1000 tirs successifs du faisceau laser à 532 nm focalisé à un diamètre de  $23 \mu\text{m}$ . Les résultats des mesures pour les trois sources lasers sont reportés dans le tableau 3.4.

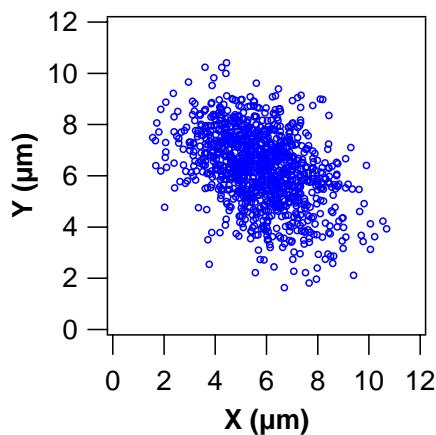


FIG. 3.19 – Mesure de la position du faisceau laser à 532 nm focalisé à un diamètre de 23  $\mu\text{m}$  sur 1000 tirs successifs.

|  |         |        |        |
|--|---------|--------|--------|
| Longueur d'onde  | 1064 nm | 532 nm | 355 nm |
| Écart-type relatif<br>(dépointage par rapport au diamètre) | 2,5 %   | 6,4 %  | 4,7 %  |
| Variation maximale relative                                | 7,9 %   | 19,5 % | 15,6 % |

TAB. 3.4 – Dépointage des sources laser Nd:YAG sur 1000 tirs.

Nous remarquons que pour les trois longueurs d'onde, le dépointage est acceptable (écart-type inférieur à 7 %). L'erreur de positionnement du faisceau à 532 nm est un peu plus importante qu'à 1064 et 355 nm, provenant sans doute de la génération de fréquence en externe en comparaison aux sources commerciales optimisées. Notons que le dépointage relatif est indépendant de la taille du faisceau.

### 3.3.4 Incertitude sur la mesure de fluence

Après avoir caractérisé la stabilité des sources laser, nous cherchons à présent à déterminer l'erreur commise sur les valeurs de densité d'énergie dans les courbes d'endommagement. La fluence  $F$  est obtenue grâce à la mesure de l'énergie  $E$  à chaque tir et du rayon  $r$  du faisceau laser au waist, telle que :

$$F = \frac{E}{\pi r^2} \quad (3.9)$$

L'erreur sur la mesure de la fluence est donnée par la relation suivante :

$$\frac{\Delta F}{F} = 2 \frac{\Delta r}{r} + \frac{\Delta E}{E} \quad (3.10)$$

Les fluctuations en énergie des sources sont prises en compte par la mesure d'énergie à chaque impulsion. La précision de calibration du détecteur (Ophir PE 10) est de  $\pm 3\%$  à 1064 nm et de  $\pm 7\%$  à 532 et 355 nm. Il s'agit d'une erreur systématique liée à la calibration qui n'est pas à prendre en compte dans le cas de mesures comparatives. D'autre part, nous avons mesuré une erreur aléatoire de  $\pm 3\%$  sur la détermination de la taille du faisceau. L'erreur sur la densité d'énergie est donc de  $\pm 6\%$  dans le cas de mesures comparatives et de  $\pm 13\%$  dans le cas de mesures absolues (calculée avec l'erreur de calibration la plus élevée).

En effectuant plusieurs mesures sur un même composant, nous obtenons une erreur légèrement inférieure à l'incertitude théorique déterminée. Dans le cas de deux mesures effectuées successivement, nous avons évalué la dispersion des valeurs de fluence à seulement 2 %. Dans le cas de mesures effectuées après des modifications du banc (changement de focale ou de longueur d'onde), nous obtenons les mêmes valeurs à une incertitude de 7 %. Cet écart-type sera donc à considérer lors des comparaisons des résultats. Dans la suite, afin de conserver une bonne lisibilité des courbes de probabilité d'endommagement, les barres d'erreur en fluence ne seront pas représentées, car elles sont moins importantes que les barres d'erreur en probabilité d'endommagement (dont le calcul est détaillé en section [4.2.3](#)).

## 3.4 Validation du dispositif expérimental

### 3.4.1 Test de la métrologie sur la silice

Pour valider le dispositif expérimental développé avec une nouvelle méthode de détection, nous testons un matériau standard et comparons les résultats obtenus avec ceux issus de la littérature. Nous réalisons alors une étude de tenue au flux laser aux trois longueurs d'onde 1064, 532 et 355 nm en volume et surface de la silice Suprasil. Les différents types de silice sont expliqués en annexe [A](#). Les mesures effectuées sont comparées aux données provenant de la littérature (tableaux [3.5](#) et [3.6](#)) et notamment aux résultats obtenus précédemment à l'Institut Fresnel [[4](#), [5](#)] sur d'autres dispositifs expérimentaux utilisant les mêmes sources lasers à 1064 et 355 nm.

| Longueur d'onde                       | 1064 nm              | 532 nm               | 355 nm               |
|---------------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| silice synthétique [125]              | 29 J/cm <sup>2</sup> | 23 J/cm <sup>2</sup> | 14 J/cm <sup>2</sup> |
| silice Suprasil "superpolie" [5, 101] | 65 J/cm <sup>2</sup> | non réalisé          | 20 J/cm <sup>2</sup> |

TAB. 3.5 – Valeurs de seuil de tenue au flux laser en mode 1-on-1 en surface de la silice synthétique issues de la littérature.

| Longueur d'onde           | 1064 nm                | 532 nm                 | 355 nm                |
|---------------------------|------------------------|------------------------|-----------------------|
| silice Suprasil I [121]   | 110 GW/cm <sup>2</sup> | 90 GW/cm <sup>2</sup>  | 35 GW/cm <sup>2</sup> |
| silice Corning 7940 [121] | 110 GW/cm <sup>2</sup> | 110 GW/cm <sup>2</sup> | 40 GW/cm <sup>2</sup> |
| silice Suprasil [5, 101]  | 100 J/cm <sup>2</sup>  | non réalisé            | 47 J/cm <sup>2</sup>  |
| silice Suprasil [4]       | 115 J/cm <sup>2</sup>  | non réalisé            | 48 J/cm <sup>2</sup>  |

TAB. 3.6 – Valeurs de seuil de tenue au flux laser en mode 1-on-1 en volume de la silice synthétique issues de la littérature.

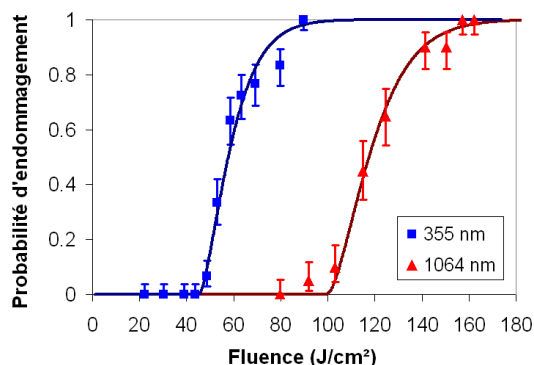


FIG. 3.20 – Courbes d'endommagement laser à 1064 nm et 355 nm de la silice Suprasil en volume, mode 1-on-1, diamètre faisceau 24  $\mu\text{m}$ .

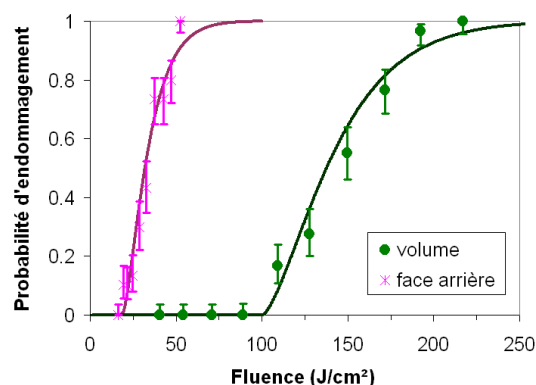


FIG. 3.21 – Courbes d'endommagement laser à 532 nm de la silice Suprasil en volume et en face arrière, mode 1-on-1, diamètre faisceau 23  $\mu\text{m}$ .

La figure 3.20 présente les résultats obtenus en volume de la silice à 1064 et 355 nm avec un faisceau de 24  $\mu\text{m}$  de diamètre. Le seuil de tenue au flux à 1064 nm est de 100 J/cm<sup>2</sup> et à 355 nm de 45 J/cm<sup>2</sup>, ce qui est tout à fait conforme aux données de la littérature et notamment à celles obtenues précédemment à l'Institut Fresnel pour des tailles de faisceau similaires (tableau 3.6). Entre le proche infrarouge et l'UV, nous observons une diminution

du seuil d'endommagement en fonction de la longueur d'onde d'irradiation. Les précurseurs responsables de l'endommagement laser ne sont pas nécessairement les mêmes aux différentes longueurs d'onde ou peuvent avoir des comportements différents, notamment en terme d'absorption [126].

La figure 3.21 présente les résultats en volume et en surface de la silice à 532 nm avec un faisceau de 23  $\mu\text{m}$  de diamètre. Le seuil obtenu en volume est de 100 J/cm<sup>2</sup> et en face arrière de 19 J/cm<sup>2</sup>. Ces seuils sont tout à fait similaires à ceux de la littérature. Nous précisons toutefois que le seuil d'endommagement des surfaces fluctue beaucoup selon les qualités de polissage [52]. Les "meilleurs polis" donnent des seuils de tenue au flux autour de 60 J/cm<sup>2</sup> à 1064 nm [5]. Remarquons que les seuils obtenus en volume à 1064 et 532 nm sont identiques. Il semblerait dans la silice que le même type de précurseurs soit responsable de l'endommagement à ces deux longueurs d'onde.

Cette étude sur la silice a permis de valider le dispositif expérimental développé. Par la suite, pour chaque modification sur le banc de mesure (changement de focale ou de longueur d'onde), nous réaliserons une courbe d'endommagement laser dans la silice. Cette procédure nous permet à la fois de vérifier la métrologie et de situer les valeurs de tenue au flux des cristaux par rapport à celles obtenues sur la silice, considérée comme matériau de référence.

### 3.4.2 Répétabilité des mesures dans les cristaux

Le caractère destructif des mesures d'endommagement empêche d'effectuer des mesures sur la même zone de test. La validation de l'étude de la tenue au flux laser des cristaux avec ce dispositif expérimental nécessite donc de vérifier la répétabilité des mesures dans les cristaux. Les courbes d'endommagement obtenues sur un même cristal doivent être identiques à l'incertitude de mesure près, afin de pouvoir effectuer des campagnes de mesures dans lesquelles les variables sont maîtrisées.

Par ailleurs, les cristaux sont souvent de très petites dimensions, ce qui nécessite parfois d'effectuer une courbe d'endommagement à partir de plusieurs échantillons. Nous devons alors nous assurer de la répétabilité des mesures entre deux cristaux similaires pour pouvoir fusionner les données provenant des différents cristaux. Les tests de répétabilité sont réalisés sur les cristaux non linéaires étudiés ici : KTP, RTP et LBO. La discussion sur l'homogénéité de ces cristaux sera effectuée dans les chapitres 5 et 6.

La figure 3.22 présente les courbes d'endommagement laser en mode 1-on-1 et S-on-1 (avec S=200) sur deux cristaux différents de KTP issus de la même boule de croissance. Le nombre de sites testés par fluence est de 20. Nous observons une très bonne répétabilité des mesures dont l'incertitude est incluse dans l'erreur commise sur la mesure de la probabilité. Le calcul des barres d'erreurs est présenté dans le paragraphe 4.2.3.

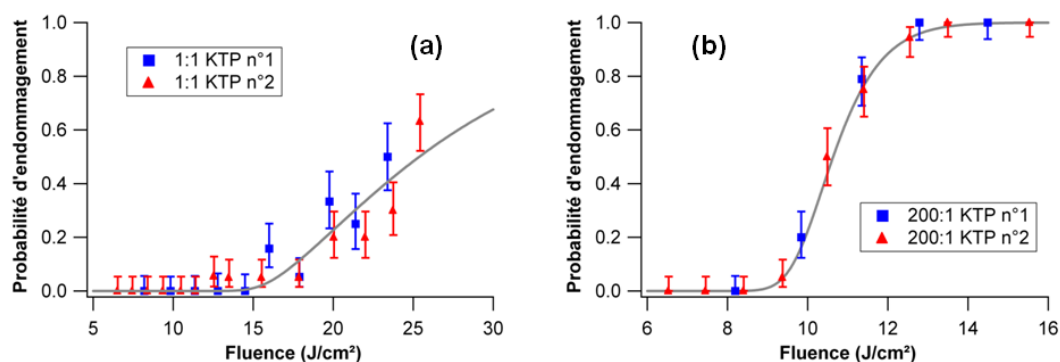


FIG. 3.22 – Courbes d’endommagement laser à 1064 nm obtenues sur 2 cristaux de KTP (volume), en mode 1-on-1 (a) et 200-on-1 (b), diamètre faisceau  $75 \mu\text{m}$ .

De la même manière, la figure 3.23 présente les courbes d’endommagement laser en mode 1-on-1 et 200-on-1 de deux échantillons de LBO issus de la même boule. Le nombre de sites testés par fluence est compris entre 16 et 19. Malgré une dispersion plus significative en mode 1-on-1 qu’en S-on-1, nous pouvons conclure quant à une répétabilité des mesures également tout à fait satisfaisante sur LBO.

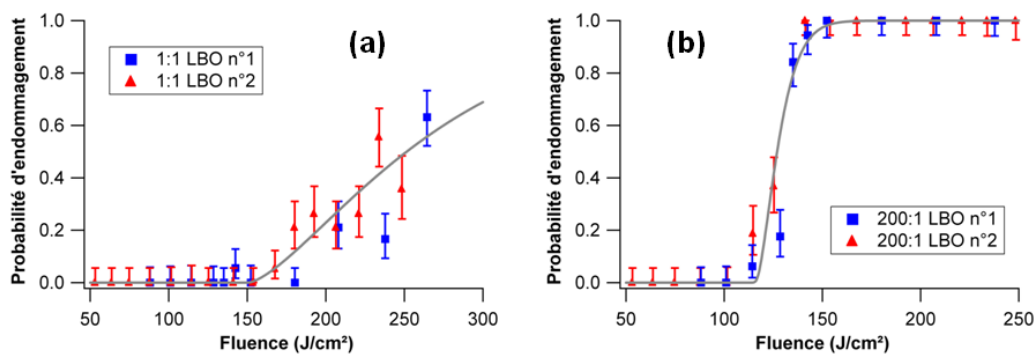


FIG. 3.23 – Courbes d’endommagement laser à 1064 nm obtenues sur 2 cristaux de LBO (volume), en mode 1-on-1 (a) et 200-on-1 (b), diamètre faisceau  $24 \mu\text{m}$ .

Les fluctuations statistiques sont moins visibles en mode S-on-1 qu’en mode 1-on-1 car moins de points expérimentaux se situent dans la pente de la courbe d’endommagement. En effet, nous pouvons remarquer que les pentes des courbes d’endommagement sont plus raides en mode S-on-1 qu’en mode 1-on-1. L’interprétation classique de cette augmentation de la probabilité d’endommagement réside dans la modification du matériau par les tirs

précédents l'endommagement [101].

Au vu de la répétabilité obtenue, nous souhaitons valider la réalisation d'une courbe d'endommagement à partir de plusieurs échantillons. La figure 3.24 présente une courbe de tenue au flux à 1064 nm en mode 200-on-1 issue de 6 cristaux de RTP (de dimension  $4 \times 4 \times 10$  mm) provenant de deux boules de croissance différentes. Les barres d'erreur ne sont pas présentées par souci de clarté de la courbe, cependant les différents points de la courbe n'ont pas tous le même poids, car le nombre de sites testés varie de 4 sites seulement jusqu'à 17 sites par fluence.

Malgré ces importantes erreurs sur la probabilité, la dispersion du seuil bas varie seulement entre 5,9 et 6,7 J/cm<sup>2</sup> soit un écart de 7 % (de l'ordre de grandeur de l'incertitude sur la mesure de la fluence). Aucun effet lié aux différents cristaux n'est donc perceptible sur la tenue au flux laser, et cela même entre des cristaux provenant de deux boules de croissance. Les données issues de différents échantillons peuvent donc être fusionnées pour obtenir une unique courbe d'endommagement (voir encart de la figure 3.24).

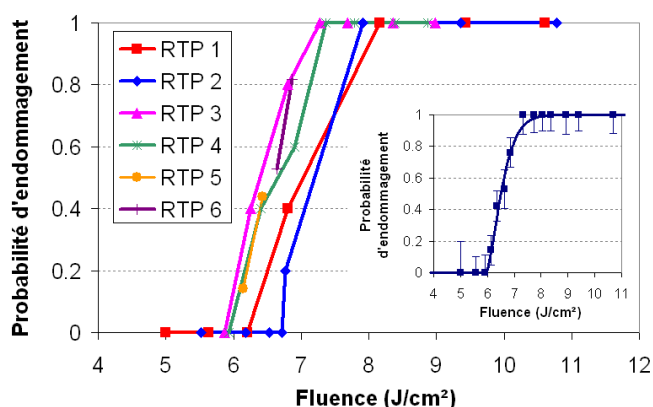


FIG. 3.24 – Courbes d'endommagement laser à 1064 nm obtenues sur 6 cristaux de RTP (volume), mode 200-on-1, diamètre faisceau  $75 \mu\text{m}$ . En encart, courbe de tenue au flux provenant de la fusion des données issues des 6 cristaux.

Grâce à ces tests entre les différents échantillons, nous avons vérifié la répétabilité des mesures de tenue au flux laser pour les trois cristaux que nous allons étudier dans les chapitres 5 et 6. La métrologie de l'endommagement laser a ainsi été validée pour réaliser notre étude.





# Chapitre 4

## Spécificités de la caractérisation des cristaux non linéaires

### Sommaire

---

|            |  |           |
|------------|--|-----------|
| <b>4.1</b> | <b>Problématiques de métrologie liées aux cristaux</b> . . . . .                   | <b>78</b> |
| <b>4.2</b> | <b>Optimisation de la matrice de test</b> . . . . .                                | <b>78</b> |
| 4.2.1      | Choix de la taille du faisceau de test . . . . .                                   | 78        |
| 4.2.2      | Détermination du maillage spatial . . . . .  | 79        |
| 4.2.3      | Incertitude sur la mesure de la probabilité d'endommagement . .                    | 81        |
| 4.2.4      | Exploitation de la procédure de test S-on-1 . . . . .                              | 84        |
| <b>4.3</b> | <b>Problèmes de modification de l'intensité maximale dans le cristal</b> . . . . . | <b>85</b> |
| 4.3.1      | Aberrations en faisceau focalisé . . . . .   | 85        |
| 4.3.2      | Walk-off . . . . .   | 91        |
| 4.3.3      | Autofocalisation . . . . .   | 93        |
| <b>4.4</b> | <b>Génération "parasite" de seconde harmonique</b> . . . . .                       | <b>96</b> |
| <b>4.5</b> | <b>Anisotropie de la tenue au flux laser</b> . . . . .                             | <b>97</b> |
| <b>4.6</b> | <b>Conclusion</b> . . . . .  | <b>99</b> |

---

## 4.1 Problématiques de métrologie liées aux cristaux

Par rapport à des matériaux amorphes comme la silice, des problèmes spécifiques aux cristaux non linéaires rendent les mesures de tenue au flux laser plus complexes. Tout d'abord, ces composants sont très petits et coûteux, ce qui nécessite d'optimiser la mesure statistique de l'endommagement laser. Par ailleurs, les tests de tenue au flux laser peuvent être perturbés par la présence d'effets dus à la biréfringence (aberrations, walk-off) ou par des phénomènes non linéaires (autofocalisation, génération de seconde harmonique). Au vu de l'anisotropie des paramètres physiques des cristaux tels que l'indice de réfraction, la direction d'irradiation et la polarisation peuvent également modifier leur tenue au flux laser. Nous présenterons dans ce chapitre les différents aspects des difficultés de caractérisation de la tenue au flux laser des cristaux. Ces travaux ont donné lieu à une publication [127].

## 4.2 Optimisation de la matrice de test

Les cristaux non linéaires sont souvent des composants de petites dimensions et qui ont des coûts très élevés. Étant donné le caractère destructif des mesures d'endommagement laser, il est indispensable d'optimiser au mieux la matrice de test. Dans cette partie, nous allons aborder différents aspects pour obtenir un maximum d'informations des mesures d'endommagement dans une zone d'irradiation la plus restreinte possible.

### 4.2.1 Choix de la taille du faisceau de test

La taille du faisceau laser de test peut être choisie dans une gamme allant de 10 à 200  $\mu\text{m}$  de diamètre pour les trois longueurs d'onde d'étude. La taille maximale est limitée par l'énergie disponible en sortie des lasers. Cette gamme de taille de faisceau permet de travailler en faisceau dit "focalisé" ou "parallèle" par rapport à la longueur de l'échantillon  $l$ , ou plus exactement par rapport à son épaisseur optique  $e$ , avec  $e = l/n$  où  $n$  est l'indice de réfraction du matériau.

Un des intérêts de focaliser fortement le faisceau est de réaliser une étude localisée permettant de mesurer séparément la tenue au flux des faces avant, arrière et du volume des composants. Un tel faisceau donne également la possibilité de réaliser des mesures statistiques sur des composants de petites dimensions avec un grand nombre de sites.

D'un autre côté, les faisceaux peu focalisés ont l'avantage d'être parallèles sur toute la longueur du composant. Ils permettent alors en un seul test d'identifier le point faible du composant : face avant, arrière ou volume. Ces faisceaux sont en plus bien adaptés pour des études fonctionnelles, car ils sont proches des conditions réelles d'utilisation du composant. Ils permettent en effet de révéler les mêmes défauts que ceux qui seraient responsables d'un endommagement en fonctionnement.

Dans la suite de ce chapitre, nous discuterons des utilisations respectives des faisceaux "focalisé" et "parallèle" au vu des effets non linéaires et de biréfringence rencontrés.

### 4.2.2 Détermination du maillage spatial

Afin d'obtenir des valeurs précises de probabilité d'endommagement laser, il est nécessaire d'irradier un grand nombre de sites et chaque site testé doit pouvoir être considéré comme indépendant. Or, un problème de place disponible nécessite de réduire au maximum la distance entre les sites irradiés. Cependant, la diminution de cette distance 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). L'optimisation de la distance entre les sites irradiés est alors nécessaire. La distance intersite optimale est définie comme la plus petite distance pour laquelle il n'y a pas d'influence de l'irradiation laser d'un site sur l'autre en terme de tenue au flux laser. Notons que l'étude présentée ci-après n'est pas nécessaire lorsque le composant à tester est d'assez grandes dimensions, il suffira en effet d'espacer suffisamment les sites irradiés.

Nous présentons la détermination du maillage spatial dans le cas de mesures réalisées sur un barreau de Nd:KGW. A partir de cette étude, nous essaierons d'établir un lien empirique, indépendamment du matériau testé, entre le pas intersite estimé à partir de la taille des dommages (modification visible) et la distance minimale garantissant des sites "indépendants" du point de vue de l'endommagement (considérant les modifications visibles et invisibles). Remarquons que des études comparables ont été réalisées en volume et surface de la silice [128].

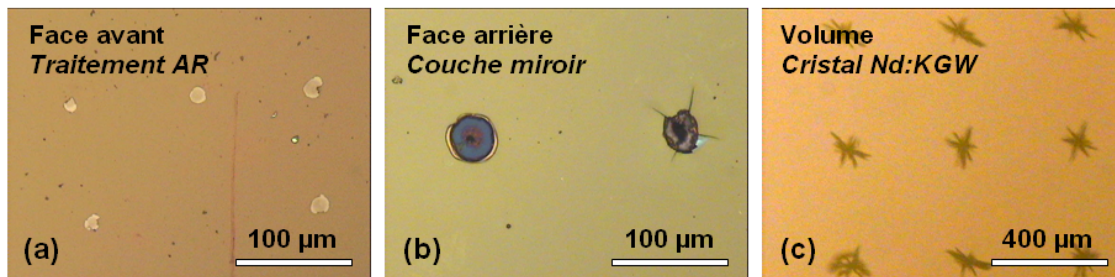


FIG. 4.1 – Morphologie des endommagements sur un barreau de Nd:KGW irradié à 1064 nm avec un faisceau focalisé de  $14 \mu\text{m}$  de diamètre. Les distances intersites utilisées pour les surfaces (a) et (b) et le volume (c) ont été déterminées à partir de l'étude de l'influence de la probabilité d'endommagement.

Le barreau de Nd:KGW a été testé en face avant, arrière et en volume en mode R-on-1 et S-on-1 à 1064 nm avec un faisceau focalisé. Les tests R-on-1 ont permis de déterminer

la morphologie des endommagements pour les trois cas (figure 4.1) et d'obtenir une estimation des seuils de tenue au flux en très peu de place (un seul site permet d'obtenir une idée du seuil R-on-1).

Les endommagements du traitement antireflet en face avant ont été obtenus à un seuil R-on-1 de  $29 \text{ J/cm}^2$ , ils sont de petites dimensions, de l'ordre de la taille du faisceau (de  $10$  à  $30 \mu\text{m}$  de diamètre), et montrent un décollement de la couche mince. Notons que ce comportement est sans doute représentatif d'une couche assez poreuse mais qui possède une bonne adhérence mécanique. Les dommages de la couche miroir en face arrière, obtenus à un seuil R-on-1 de  $23 \text{ J/cm}^2$ , sont plus grands, approximativement trois fois plus importants que la taille du faisceau, et présentent un décollement de la couche avec formation d'un cratère ( $40$  à  $50 \mu\text{m}$  de diamètre). Pour certains dommages, il apparaît également des fissures en croix (environ  $70 \times 70 \mu\text{m}$ ). Ceci pourrait s'expliquer par une initiation de l'endommagement du à un défaut en surface, provenant peut être du polissage. Les cassures en volume du Nd:KGW ont été obtenues à un seuil de  $59 \text{ J/cm}^2$ . Ces dommages ont une taille environ dix fois supérieure à celle du faisceau de test (typiquement  $110 \times 170 \mu\text{m}$ ).

Dans les trois cas, nous observons des tailles et des morphologies de dommages bien distinctes. En se basant sur les tailles obtenues, une estimation géométrique du pas minimal  $\Delta_{\min}$  entre deux sites peut être donnée. Le critère fixé arbitrairement est tel que :  $\Delta_{\min} = 2\phi_{\text{dom}} + \phi_{\text{fais}}$ , avec  $\phi_{\text{dom}}$  la taille des endommagements obtenus aux fluences seuil R-on-1 et  $\phi_{\text{fais}}$  le diamètre du faisceau de test.

Ce choix donne des pas de  $0,07 \text{ mm}$  en face avant, de  $0,15 \text{ mm}$  en face arrière et de  $0,35 \text{ mm}$  en volume. Cette estimation fournit un ordre de grandeur de la distance minimale recherchée, mais ne garantit pas qu'il n'y a pas d'influence de l'irradiation laser d'un site sur le suivant.

L'influence de la distance entre les sites irradiés sur la probabilité d'endommagement est alors déterminée expérimentalement. Pour les deux surfaces et le volume du barreau de Nd:KGW, nous choisissons dans un premier temps des distances suffisamment grandes (bien supérieures à l'estimation géométrique) pour pouvoir considérer que les sites sont "indépendants". Pour les faces avant, arrière et le volume, environ 50 sites sont irradiés selon la procédure S-on-1 ( $S=200$ ) à des fluences correspondant pour chaque cas à une probabilité d'endommagement autour de 50 %. La mesure est ensuite réitérée aux mêmes fluences avec un pas intersite plus faible. Nous observons dans les trois cas l'effet de la distance entre les sites sur la probabilité d'endommagement (figure 4.2).

La figure 4.2 montre que la probabilité d'endommagement est stable pour des distances intersites suffisamment grandes. En revanche, lorsque le pas devient trop petit, le comportement du site testé est affecté par les sites voisins, augmentant sa probabilité d'endommagement. La distance minimale est donc définie comme la plus petite distance pour laquelle la probabilité d'endommagement n'évolue pas lorsque le pas augmente. Nous obtenons ainsi une distance intersite de  $0,1 \text{ mm}$  pour la couche antireflet,  $0,2 \text{ mm}$  pour la

couche miroir et de 0,4 mm pour le cristal Nd:KGW.

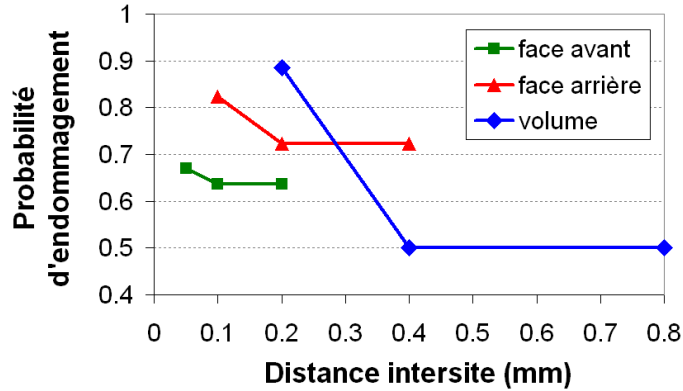


FIG. 4.2 – Évolution de la probabilité d’endommagement en fonction de la distance intersite pour le barreau de Nd:KGW (face avant, arrière et volume), irradiation à 1064 nm avec un faisceau de 14  $\mu\text{m}$  de diamètre. La probabilité est fixée autour de 50 % lorsque le pas est grand, en déterminant convenablement la fluence d’irradiation dans chacun des trois cas.

Selon le matériau irradié, la distance optimale est différente. Nous observons d’ailleurs que pour les deux surfaces, la probabilité d’endommagement est moins affectée lorsque le pas est trop petit que pour le volume. De plus, cette distance dépend également de la taille du faisceau de test et de la longueur d’onde d’irradiation. Cette optimisation doit donc en toute rigueur être réitérée pour chaque paramètre du faisceau de test et pour chaque type de matériau testé, qu’il s’agisse de substrats mais également de traitements optiques différents.

Cependant, les résultats obtenus par la probabilité d’endommagement confirment l’estimation géométrique avec le critère retenu de deux fois la taille du dommage + le diamètre du faisceau de test, en prenant en compte la taille des plus grands dommages obtenus. Cette estimation a été concluante à la fois pour le cristal et pour les traitements optiques. Ainsi, dans le cas où la place sur le composant pour une telle étude n’est pas envisageable, nous nous fierons à cette estimation géométrique du pas entre deux sites.

### 4.2.3 Incertitude sur la mesure de la probabilité d’endommagement

Comme nous l’avons vu précédemment, les mesures d’endommagement nécessitent d’irradier différents sites. De manière évidente, la précision de la mesure de la probabilité est d’autant meilleure que le nombre de sites testés est grand. Cependant, ce nombre doit être aussi petit que possible pour endommager le moins de matériau possible. Par ailleurs, il peut être utile de varier le nombre de sites testés selon les valeurs de fluences pour une même courbe d’endommagement. En particulier, plus de sites peuvent être irradiés à faible

fluence pour obtenir une meilleure précision sur le seuil d'endommagement. Pour pouvoir optimiser au mieux le nombre de sites, il nous faut calculer de manière rigoureuse l'incertitude sur la mesure de la probabilité d'endommagement. Jusqu'à présent, ce calcul était effectué de manière approchée [5]. Notons que les barres d'erreurs sont calculées par Lammignère *et al.* dans le cas de la densité de dommages [108]. La connaissance de ces barres d'erreur permettra alors de distinguer les comportements différents en terme de tenue au flux laser par rapport aux fluctuations inhérentes aux mesures statistiques.

La mesure de la probabilité d'un évènement donné est toujours réalisée en répétant une expérience  $n$  fois dans des conditions identiques et en comptant le nombre de fois  $k$  que cet évènement apparaît. Dans les mesures d'endommagement laser,  $n$  est le nombre de sites testés et  $k$  le nombre de sites endommagés à une fluence donnée. Statistiquement, la procédure de mesure d'endommagement revient au problème de "tirage dans une urne" remplie de boules de deux couleurs (rouges et blanches). La probabilité  $p$  de tirer une boule rouge représente la valeur de la probabilité inconnue d'endommagement du composant. La probabilité  $p_M$  d'obtenir  $k$  boules rouges sur  $n$  tirages est donnée par la distribution binomiale :

$$p_M = C_k^n p^k (1-p)^{n-k} \quad (4.1)$$

où  $C_k^n$  est le coefficient binomial défini par :

$$C_k^n = \frac{n!}{k!(n-k)!} \quad (4.2)$$

$p_M(p)$  est la probabilité d'obtenir la mesure  $(n, k)$  supposant une probabilité d'endommagement  $p$ . La probabilité  $p$  étant inconnue, nous souhaitons en donner une estimation  $p_{est}$  à partir de la mesure  $(n, k)$ . La précision de l'estimation est caractérisée par les barres d'erreurs  $\Delta p$  correspondant à un niveau de confiance choisi  $c$ . La méthode la plus simple pour trouver  $p_{est}$  est de tester toutes les valeurs possibles de  $p$  ( $p \in [0, 1]$ ) et de choisir le meilleur estimateur, c'est-à-dire celui génère les données de mesure  $(n, k)$  avec la plus grande probabilité (principe du maximum de vraisemblance). En d'autres termes,  $p = p_{est}$  maximise  $p_M$ .

La figure 4.3 représente la probabilité  $p_M$  d'obtenir une mesure  $(n, k)$  en fonction de la probabilité d'endommagement supposée  $p$  pour différentes mesures  $k$  avec  $n$  fixé. Lorsque le nombre de sites testés  $n$  est grand, les courbes  $p_M(p)$  sont plus "piquées". La valeur de l'estimation  $p_{est}$  est alors meilleure. Considérons par exemple sur la figure 4.3 le résultat de la mesure  $k = 4$  pour  $n = 5$ ,  $p_M$  est maximale pour  $p = p_{est} = 0,8$ , i.e.  $p_{est} = 4/5$ . Il apparaît donc clairement que  $p_{est} = k/n$ .

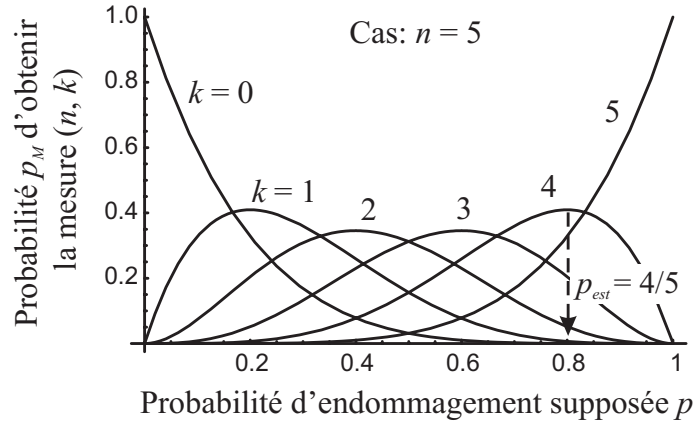


FIG. 4.3 – Probabilité  $p_M$  d'obtenir une mesure  $(n, k)$  en fonction de la probabilité d'endommagement supposée  $p$  pour toutes les valeurs possibles de  $k$  avec  $n$  fixé (cas  $n = 5$ ). La probabilité  $p_M(p)$  est maximale pour  $p = p_{est} = k/n$ .

La confiance que l'estimateur  $p_{est}$  se trouve dans l'intervalle  $[0, 1]$  est de 100 %. Ainsi, nous pouvons normaliser la fonction  $p_M(p)$  pour l'utiliser dans le calcul des barres d'erreurs. La forme normalisée de  $p_M$  est :

$$p_{M,norm} = (n + 1) C_k^n p^k (1 - p)^{n-k} \quad \text{avec} \quad \int_0^1 p_{M,norm} dp = 1 \quad (4.3)$$

Le niveau de confiance  $c$  détermine l'intervalle des probabilités estimées. Il est donné par l'intégrale de  $p_{M,norm}$  entre  $p_{est} - \Delta p_-$  et  $p_{est} + \Delta p_+$ . La figure 4.4 représente graphiquement la relation entre les barres d'erreur  $\Delta p_-$ ,  $\Delta p_+$  et le niveau de confiance  $c$  correspondant. L'intervalle de confiance  $[p_{est} - \Delta p_-, p_{est} + \Delta p_+]$  est formé par les meilleures estimations de la probabilité d'endommagement  $p$ .

Les barres d'erreur pour la mesure de la probabilité sont en général asymétriques comme l'est la distribution binomiale  $p_M(p)$  autour de sa valeur maximale  $p_{est}$ . Notons en particulier qu'une mesure avec  $k = 0$  (ou  $k = n$ ) donne uniquement une barre d'erreur positive (négative), ce qui décrit bien le cas physique. A notre connaissance, il n'est pas possible de calculer explicitement les barres d'erreur  $\Delta p_-$ ,  $\Delta p_+$  pour n'importe quelles valeurs  $n$ ,  $k$  et  $c$ . Cependant, il est facile de les déterminer numériquement en ajustant la hauteur de la ligne horizontale de la figure 4.4 jusqu'à ce que la valeur de l'intégrale de  $p_{M,norm}$  corresponde au niveau de confiance  $c$  choisi.

Ce calcul exact de l'erreur sur la mesure de la probabilité pour chaque point de la courbe de tenue au flux laser permet donc de définir le nombre de sites à tester selon la précision souhaitée. Sur toutes les courbes d'endommagement présentées, les barres d'erreur sont calculées pour un niveau de confiance de 68 %. Typiquement, sur les différents cristaux, le



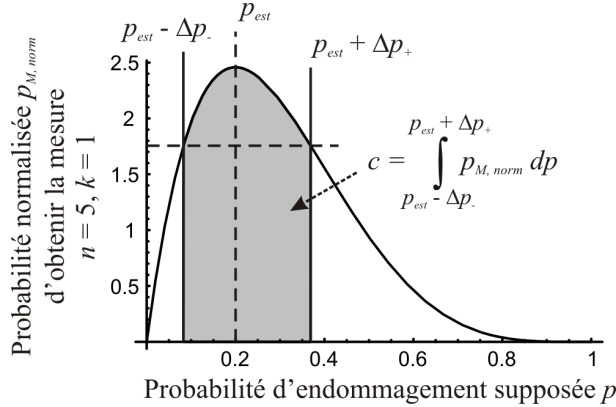


FIG. 4.4 – Représentation graphique de la relation entre les barres d’erreur  $\Delta p_-$ ,  $\Delta p_+$  et le niveau de confiance  $c$  (cas  $n = 5$ ,  $k = 1$ ).

nombre de sites testés  $n$  par fluence est généralement compris entre 15 et 30. Le tableau 4.1 présente les erreurs engendrées dans le cas le plus utilisée ( $n = 20$ ). Nous observons que l’étendue de l’intervalle d’erreur est de 20 % (valeur absolue) pour une probabilité mesurée de 50 %. Vers les bords, l’étendue de l’intervalle d’erreur se réduit pour atteindre 13 % dans le cas  $p = 10$  % ou  $p = 90$  %, et même 5 % pour une probabilité mesurée de 0 % ou 100 %. Ces calculs d’incertitude représentent l’écart maximum probable dans l’intervalle de confiance entre l’échantillon et la moyenne des échantillons similaires vis-à-vis de la loi de Poisson considérée.

| $n$ | $k$ | $p$ | $\Delta p_-$ | $\Delta p_+$ |
|-----|-----|-----|--------------|--------------|
|     | 0   | 0   | 0            | 0,053        |
| 20  | 2   | 0,1 | 0,054        | 0,080        |
|     | 10  | 0,5 | 0,107        | 0,107        |

TAB. 4.1 – Détermination des barres d’erreur  $\Delta p_-$  et  $\Delta p_+$  dans le cas d’un nombre de sites testés  $n = 20$  pour différentes valeurs de  $k$  (niveau de confiance  $c$  de 68 %).

#### 4.2.4 Exploitation de la procédure de test S-on-1

Afin de poursuivre l’optimisation de la mesure de tenue au flux laser, nous avons mis en place une procédure de test spécifique reposant sur le mode de test S-on-1 (cf. section 3.1.1.2).  $n$  sites indépendants sont irradiés sous tirs répétés à fluence constante jusqu’à ce que le nombre maximal de tirs  $S$  soit atteint ou jusqu’à endommagement du site. Grâce à la détection in-situ, nous pouvons observer l’endommagement dès son apparition et donc enregistrer le nombre de tirs auquel il est apparu pour chaque site irradié. Par cette technique, nous avons ainsi accès à l’ensemble des tests M-on-1 avec  $M$  variant entre 1 et  $S$ .

Nous pouvons en particulier remonter aux données du mode 1-on-1.

Les données en mode 1-on-1 ont l'intérêt de fournir des informations sur les centres précurseurs avec le modèle gaussien développé dans la partie 3.2, tandis que les mesures S-on-1 permettent de caractériser le comportement du matériau sous irradiation laser répétée, point essentiel pour l'utilisation fonctionnelle.

La procédure mise en place va permettre de réaliser des études systématique du vieillissement des cristaux de KTP, RTP (chapitre 5) et LBO (chapitre 6) aux différentes longueurs d'onde d'utilisation. En un seul test, nous obtenons les courbes 1-on-1 et S-on-1, ainsi que l'évolution du comportement du composant sous irradiation laser multiple avec un nombre de tirs allant de 1 à S. Il apparaît ainsi de façon évidente un gain de place sur l'échantillon : une seule zone de test pour S courbes de tenue au flux laser, ainsi qu'un gain de temps de test.

### 4.3 Problèmes de modification de l'intensité maximale dans le cristal

L'endommagement laser est causé par la densité d'énergie dans le matériau. Celle-ci est déterminée par le rapport de l'énergie totale mesurée sur la surface effective dont la caractérisation est généralement effectuée dans l'air (voir chapitre 3). Dans le cas des cristaux, la mesure du profil spatial dans l'air n'est pas fiable, car des effets de biréfringence ou de non linéarité peuvent modifier l'allure du faisceau de test dans le cristal, et ainsi induire des erreurs sur la détermination de la fluence :

- Du à l'anisotropie de l'indice de réfraction, des aberrations apparaissant en faisceau focalisé peuvent complètement modifier le profil du faisceau lors de sa propagation dans le cristal (section 4.3.1).
- La biréfringence peut introduire un phénomène de walk-off séparant les différentes ondes se propageant dans le cristal (section 4.3.2).
- Un effet d'autofocalisation peut apparaître à des puissances relativement faibles, car l'indice de réfraction non linéaire des cristaux est plus élevé que celui de la silice (section 4.3.3).

Les aberrations et le walk-off sont des phénomènes qui tendent à diminuer la fluence par rapport à celle dans l'air, tandis que l'autofocalisation tend à l'augmenter. Nous allons étudier ces phénomènes pour pouvoir soit nous placer dans des configurations où ils sont négligeables, soit les prendre en compte et les corriger.

#### 4.3.1 Aberrations en faisceau focalisé

Lors des mesures d'endommagement, le faisceau de test est plus ou moins focalisé dans le matériau pour produire des fluences suffisamment élevées. Expérimentalement, lorsque le faisceau est fortement focalisé, nous observons pour différents cristaux (KTP,

RTP, Nd:KGW) une forte augmentation du seuil d'endommagement laser plus le faisceau est focalisé en profondeur dans le cristal. Par ailleurs, aucune perte de transmission n'est alors observée. Ce phénomène n'est pas observé lorsque le faisceau est peu focalisé dans le cristal. Bolt et Van der Mooren [129] ont également observé ce phénomène dans le KTP, sans pouvoir l'expliquer.

Cet effet provient de l'apparition d'aberrations lors de la focalisation dans un cristal biréfringent, qui viennent modifier le profil spatial du faisceau de test. Le faisceau accumule de l'astigmatisme tout au long de sa propagation dans le cristal et cet effet est d'autant plus fort que l'ouverture numérique de la focalisation est élevée.

Nous caractérisons le profil spatial du faisceau de test focalisé avec lequel nous avons observé l'effet des aberrations sur la tenue au flux laser. Ce faisceau à 1064 nm est focalisé avec une ouverture numérique de 0,14 à l'aide d'un objectif compensé des aberrations. Le dispositif expérimental de mesure du profil spatial est décrit dans la section 3.3.3.4. La figure 4.5(a) montre le profil spatial du faisceau mesuré dans le cristal de KTP en présence d'aberrations. Ce profil est comparé avec celui obtenu dans les mêmes conditions dans la silice (encart figure 4.5(a)). Proche du plan focal, le profil spatial dans la silice est approximativement gaussien et le diamètre du faisceau est de 8  $\mu m$ . Notons qu'aucune différence n'est observée entre le faisceau focalisé dans la silice et celui mesuré dans l'air. En revanche, dans le cristal de KTP, de fortes aberrations apparaissent après 10 mm de propagation. Ces aberrations engendrent deux lignes focales nommées foyer sagittal et tangentiel. Le profil spatial représenté correspond à l'un des deux plans focaux. Il est évident d'après la figure 4.5(a) que le faisceau aberrant dans le KTP a une surface bien plus grande que le faisceau focalisé dans la silice. L'intensité crête dans le cristal est donc bien plus faible que celle que l'on aurait dans l'air, engendrant une erreur considérable sur les valeurs de fluence déterminée par la mesure du profil dans l'air.

Une mesure exacte d'endommagement est donc possible seulement si la fluence est calculée avec le profil du faisceau à l'intérieur du cristal et non celui mesuré dans l'air. Soulignons que la mesure du profil spatial dans le cristal doit être réalisée en utilisant un cristal dont la longueur est égale à la profondeur de focalisation du faisceau<sup>1</sup> utilisée pendant le test d'endommagement. En effet, les aberrations sur l'imagerie du faisceau se cumulent sur toute la propagation dans le cristal. En conséquence, l'image résultante correspondra aux aberrations du profil du faisceau après une longueur de focalisation équivalente à l'épaisseur du cristal utilisé. Cela signifie que pour chaque profondeur de focalisation différente, l'image du faisceau doit être réalisée dans un cristal découpé à la longueur correspondante. Nous conviendrons que cette technique n'est pas aisée à mettre en oeuvre pour déterminer la fluence dans le cristal étant donné le nombre de cristaux de longueur adaptée nécessaire. Nous cherchons alors à décrire théoriquement ces effets pour permettre de les corriger.

---

<sup>1</sup> La profondeur de focalisation désigne la distance entre la surface d'entrée et le plan focal du faisceau dans le cristal. Cette distance doit être distinguée de la profondeur de champ du faisceau définie par exemple par le critère de Rayleigh.

Théoriquement, la situation est assez difficile à décrire et les expressions analytiques correspondantes ne sont publiées qu'en 2003 par Stamnes *et al.* [130]. Dans des publications plus récentes du même groupe, Jain *et al.* présentent des formules simplifiées [131] qu'ils ont validé par comparaison avec les formules exactes [132]. La solution analytique approchée est donnée pour un faisceau tronqué circulaire de profil flat-top<sup>2</sup>. Cette solution approchée permet de reproduire correctement, avec des logiciels standards de calculs, la dépendance des aberrations avec l'ouverture numérique. Les résultats théoriques ont été confrontés avec succès à des données expérimentales [133].

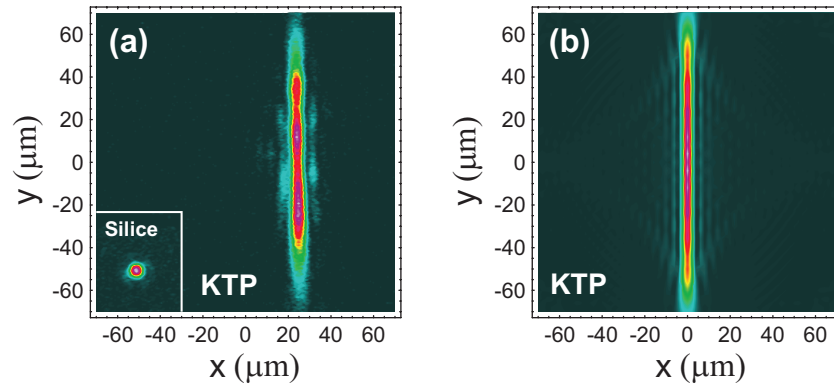


FIG. 4.5 – (a) Profil du faisceau laser à 1064 nm mesuré dans la silice et après 10 mm de propagation dans un cristal de KTP (irradiation selon l'axe Z, polarisation selon X). Demi-angle de focalisation dans l'air:  $8,2^\circ$ . (b) Profil théorique du faisceau après focalisation d'un faisceau flat-top à 10 mm de profondeur dans un KTP avec les mêmes caractéristiques que le faisceau expérimental.

Nous avons alors calculé le profil théorique du faisceau (voir figure 4.5(b)) à partir de l'implémentation des formules approchées (pour un faisceau flat-top) dans les mêmes conditions que la mesure du faisceau expérimental.

Pour permettre la comparaison entre les profils théorique et expérimental, ceux-ci sont normalisés en intensité. Nous obtenons des allures très similaires, montrant un bon accord entre les mesures et les résultats théoriques. Les différences toutefois observées proviennent du fait que le faisceau expérimental est approximativement gaussien tandis que celui les calculs sont basés sur un faisceau flat-top. Les distorsions observables dans le profil expérimental et la légère asymétrie peuvent être attribuées à des distorsions dans le faisceau incident ou à des inhomogénéités de l'indice de réfraction dans le cristal de KTP.

<sup>2</sup> Un faisceau dit flat-top (ou top-hat) est un faisceau dont le profil spatial est un créneau, c'est-à-dire présentant une surface d'intensité constante, définie par des bords raides.

Ces aberrations présentent deux caractéristiques importantes. Premièrement, l'effet des aberrations est cumulatif. Plus le plan focal est en profondeur dans le cristal, plus les aberrations sont fortes et plus l'intensité maximale obtenue dans le cristal est faible. Deuxièmement, les aberrations dépendent de la direction de propagation et de polarisation dans le cristal. Expérimentalement, nous avons observé seulement de très faibles aberrations dans le KTP lorsque ni la direction de propagation ni la polarisation sont selon l'axe Z. Le même résultat est obtenu par le calcul. Rappelons que l'axe Z correspond à l'indice de réfraction le plus élevé. L'implémentation des formules approchées nous permet d'étudier en détail la dépendance de l'intensité maximale selon la profondeur de focalisation et pour différentes directions de propagation et de polarisation.

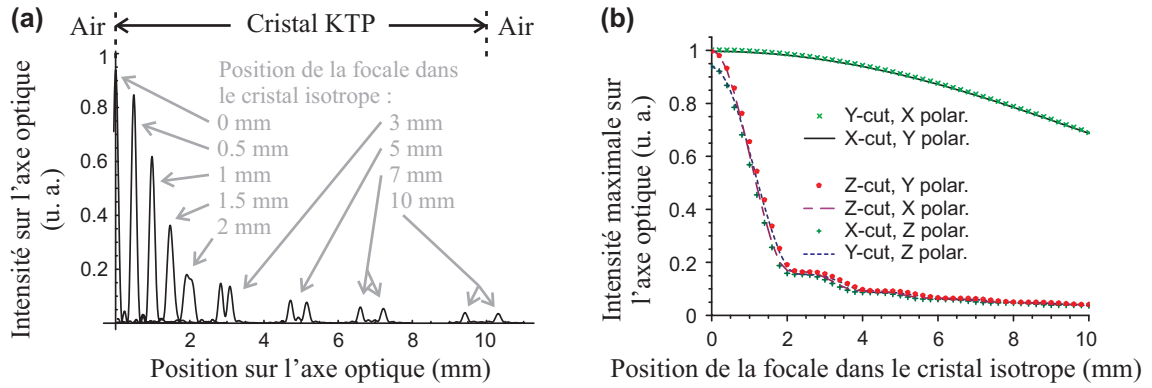


FIG. 4.6 – (a) Évolution de l'intensité sur l'axe optique au voisinage de la focale pour différentes profondeurs de focalisation dans le cristal de KTP (Faisceau 1064 nm, propagation selon Y, polarisation selon Z). (b) Évolution de l'intensité maximale sur l'axe optique avec la profondeur de focalisation dans le KTP pour différentes combinaisons de direction de propagation et de polarisation.

La figure 4.6(a) représente l'intensité sur l'axe optique d'un faisceau flat-top focalisé à différentes profondeurs dans un cristal de KTP (propagation selon Y, polarisation selon Z). Pour une profondeur de focalisation de 3 mm ou plus, nous obtenons deux pics distincts, chaque pic correspondant à une ligne focale. Pour plus de détails, nous nous reporterons aux travaux de Lotsberg *et al.* [133]. L'intensité crête de la première ligne légèrement supérieure à celle du deuxième foyer est l'intensité maximale  $I_{max}$ . C'est cette intensité qui sera considérée comme responsable de l'endommagement laser. Comme nous obtenons deux lignes focales séparées le long de l'axe optique, nous devons définir un nouveau paramètre décrivant la position de la focale. Dans la suite, nous utiliserons la "position de la focale dans le cristal isotrope" qui est calculée en utilisant l'indice de réfraction moyen du cristal  $n_{moyen} = (n_x + n_y + n_z)/3$ .

La figure 4.6(b) représente l'intensité maximale  $I_{max}$  calculée en fonction de la profon-

deur de focalisation  $z$  pour les différentes combinaisons possibles de direction de propagation et de polarisation selon les axes principaux du cristal. Sur les 6 courbes obtenues, deux groupes peuvent être distingués : le cas de fortes aberrations lorsque le faisceau laser se propage selon l'axe  $Z$  ou que la polarisation est selon  $Z$ , et le cas de faibles aberrations où ni la propagation ni la polarisation sont le long de l'axe  $Z$ . La valeur des indices de réfraction à 1064 nm est :  $n_x = 1.740$ ,  $n_y = 1.748$ ,  $n_z = 1.830$  [72]. L'importance des aberrations pour une profondeur de focalisation donnée semble être déterminée par la différence des indices de réfraction vue par la polarisation et la direction de propagation du faisceau laser.

Remarquons également que l'indice de réfraction plus élevé pour une polarisation selon  $Z$ , engendre de fortes pertes par réflexion aux interfaces. Ces pertes sont visibles sur la figure 4.6(b) à la position 0 de la focale.

Dans le cas des fortes aberrations, pour des petites profondeurs de focalisation ( $z < 2\text{mm}$ ) l'intensité maximale chute rapidement car la tache focale s'élargit, mais les deux foyers sagittal et tangentiel restent superposés. Après une profondeur de focalisation d'environ 2 mm, la séparation entre les deux plans devient plus grande que la profondeur de champ du faisceau et les deux pics de la figure 4.6(a) se séparent. L'intensité maximale décroît alors faiblement jusqu'à rester presque constante.

La mesure de l'endommagement laser dans un cristal biréfringent avec un faisceau focalisé, dont le profil est mesuré dans l'air, fait donc apparaître une dépendance du seuil "apparent" d'endommagement avec la profondeur de focalisation  $z$ . Le seuil réel d'endommagement  $T$  peut être déterminé à partir du seuil apparent  $T_{app}$  en calculant le facteur d'atténuation de l'intensité maximale. D'après la figure 4.6(b), la mesure à une profondeur de focalisation  $z$  surestime la fluence réelle d'un facteur  $I_{max}(0)/I_{max}(z)$ . Les seuils expérimentaux issus des mesures de tenue au flux dans différentes profondeurs peuvent être interpolés par une courbe théorique (figure 4.7) décrivant l'évolution du seuil apparent  $T_{app}$  avec la profondeur de focalisation  $z$  qui est donnée par :

$$T_{app}(z) = T \frac{I_{max}(0)}{I_{max}(z)} \quad (4.4)$$

Ainsi connaissant le facteur d'atténuation  $I_{max}(0)/I_{max}(z)$ , le seul paramètre à déterminer est le seuil réel  $T$ . Les seuils expérimentaux obtenus en mode R-on-1 dans différentes profondeurs de focalisation dans le cristal de KTP peuvent ainsi être interpolés par le modèle de correction développé pour en extraire la valeur réelle du seuil de tenue au flux. La figure 4.7 illustre l'ajustement des données expérimentales obtenues dans deux configurations différentes : cas de faibles (a) et de fortes (b) aberrations. Chaque point expérimental provient de la moyenne de 3 seuils R-on-1. Les barres d'erreurs sont calculées en prenant le cas le plus défavorable entre soit l'erreur statistique sur les 3 valeurs (distribution normale, niveau de confiance de 68 %) soit l'erreur estimée sur la mesure de fluence (6 %, voir section 3.3.4).

Dans le cas des faibles aberrations, les variations de mesures R-on-1 selon la profondeur de focalisation dans le cristal sont très faibles, quasiment inexistantes au vu des barres

d'erreur à considérer. En revanche, dans le cas de fortes aberrations, les seuils mesurés varient jusqu'à un facteur d'environ 5 selon la position de la focalisation dans le KTP. Dans les deux cas, le fit est déterminé à partir du facteur d'atténuation  $I_{max}(0)/I_{max}(z)$  calculé d'après les formules approchées de Jain *et al.* . Le fit permet de déterminer un seuil réel  $T$  de  $65 \text{ J/cm}^2$  dans le cas des fortes aberrations. Nous pouvons remarquer que l'utilisation d'une extrapolation linéaire comme Bolt et Van der Mooren [129] ont tenté d'appliquer donnerait un seuil R-on-1 négatif de  $-0,5 \text{ J/cm}^2$ , ce qui est physiquement non acceptable.

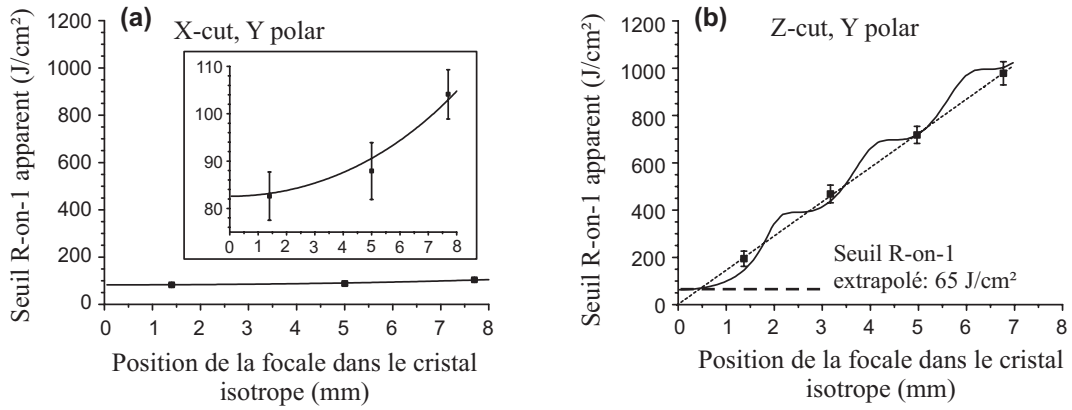


FIG. 4.7 – Seuil apparent d'endommagement laser en mode R-on-1 en fonction de la profondeur de focalisation en volume du KTP. Les données expérimentales  $T_{app}(z)$  sont indiquées par les carrés, tandis que les lignes pleines correspondent à l'ajustement des données par le modèle. (a) Cas de faibles aberrations (propagation selon X, polarisation selon Y) avec un zoom dans l'encart sur l'axe des fluences. (b) Cas de fortes aberrations (propagation selon Z, polarisation selon Y): le seuil apparent d'endommagement varie jusqu'à un facteur d'environ 5 selon la position de la focale dans le cristal.

En conclusion, cette étude a donc permis de mettre en évidence et d'appréhender ce problème de métrologie apparaissant en faisceau focalisé dans les cristaux biréfringents. Nous avons présenté une nouvelle méthode de correction de ces aberrations. Cette correction est basée sur le calcul de l'atténuation de l'intensité maximale dans le cristal obtenue par les formules approchées de Jain *et al.* [131]. La précision de la correction est directement liée à l'allure de la courbe du facteur d'atténuation  $I_{max}(0)/I_{max}(z)$ . Or les ondulations de la courbe dépendent du profil du faisceau, et le faisceau utilisé pour les calculs (flat-top) est différent du faisceau de test (quasi gaussien). Des améliorations dans le calcul permettraient d'obtenir une correction plus fiable. En particulier, il serait important de considérer un profil de faisceau gaussien, voir même d'implémenter le faisceau réel de test. Par ailleurs, les cristaux pour la conversion de fréquence sont généralement utilisés dans des directions de coupe qui ne sont pas parallèles aux axes principaux du cristal. Ainsi, des formules plus générales pour une direction de propagation arbitraire serait très intéressantes pour



corriger les aberrations dans ces configurations fonctionnelles.

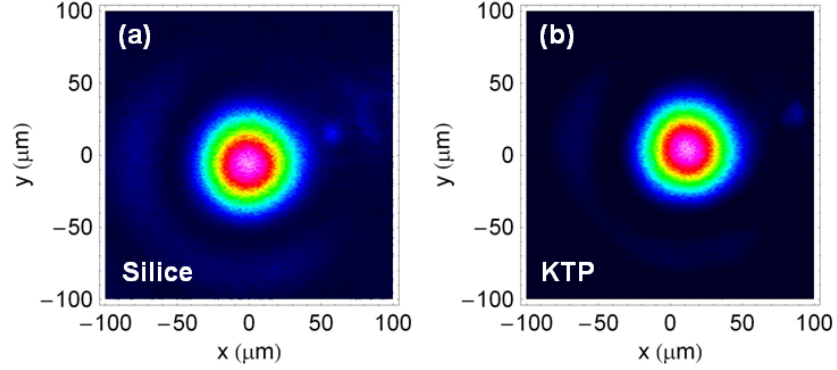


FIG. 4.8 – Profil du faisceau laser à 1064 nm de diamètre au waist  $75 \mu m$  mesuré dans la silice (a) et après 10 mm de propagation dans un cristal de KTP (irradiation selon l'axe Z, polarisation selon X) (b).

Au vu de la précision souhaitée pour la mesure du seuil, nous préférons si possible travailler en faisceau suffisamment peu focalisé pour ne pas présenter d'aberrations. Pour s'assurer de l'absence de perturbations de ces effets, le profil du faisceau dans les cristaux est observé et comparé au profil obtenu dans l'air ou la silice. Remarquons, sur la figure 4.8, qu'aucun effet d'aberrations n'est visible sur le profil spatial d'un faisceau peu focalisé (diamètre au waist  $75 \mu m$ ) après 10 mm de propagation dans le KTP.

Dans le cas de faisceau assez focalisé, le seuil R-on-1 sera évalué dans deux profondeurs de focalisation (dans un plan proche de la face avant et un autre plan proche de la face arrière). Si aucune différence de tenue au flux n'est mesurable, nous validerons dans ce cas l'utilisation du faisceau. Notons que cette procédure doit être mise en place pour chaque couple cristal/faisceau.

### 4.3.2 Walk-off

Dans un milieu biréfringent, des ondes polarisées différemment vont se propager selon des directions différentes suivant les rayons ordinaire et extraordinaire. Cette séparation des faisceaux nommée walk-off est caractérisée par l'angle  $\rho$  que fait le vecteur de Poynting  $\mathbf{S}$  indiquant la direction de propagation de l'énergie avec le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  (cf. figure 4.9). Il est important de remarquer qu'aucun effet de walk-off n'est présent lorsque la direction de propagation est parallèle à l'un des axes principaux du cristal [65].

Ce phénomène peut apparaître lors de mesures d'endommagement laser dans les cristaux lorsqu'ils ne sont pas coupés selon leurs axes propres. Ceci est généralement le cas des cristaux utilisés pour la génération de seconde harmonique. Par ailleurs, le walk-off sera



d'autant plus marqué si le diamètre du faisceau incident est petit et si le cristal traversé est long.

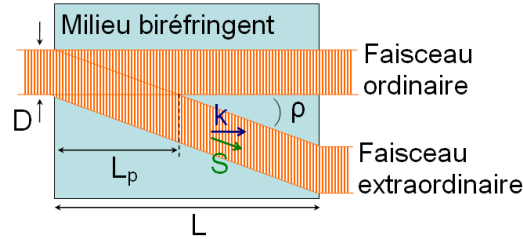


FIG. 4.9 – Illustration du phénomène de walk-off. Le vecteur de Poynting  $\mathbf{S}$  indique la direction de propagation de l'énergie. Le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  est perpendiculaire aux surfaces d'onde (onde plane sur le schéma). Le walk-off est défini par l'angle  $\rho$  entre  $\mathbf{S}$  et  $\mathbf{k}$ .

Dans le cas du doublage de fréquence de type II, un triple walk-off peut être présent [134] : entre les composantes ordinaire et extraordinaire de l'onde fondamentale, entre la composante ordinaire de l'onde fondamentale et l'onde de seconde harmonique, et entre la composante extraordinaire de l'onde fondamentale et l'onde de seconde harmonique. Cette séparation des faisceaux diminue leur recouvrement et donc la longueur d'interaction, faisant chuter l'efficacité de conversion [135]. Notons que le walk-off peut être compensé en couplant deux cristaux dont l'orientation est inversée [136]. Ceci est utilisé dans les structures "périodically poled" [137].

Dans le cadre des tests de tenue au flux laser, seule nous intéresse la modification du profil spatial du faisceau de test causée par la séparation des faisceaux ordinaire et extraordinaire de l'onde fondamentale. Pour plus de détails sur les autres cas de walk-off avec le faisceau de seconde harmonique, nous nous référerons à l'étude réalisée par Favre [138] dans le cadre de l'optimisation de la génération de seconde harmonique.

Nous calculons l'influence du walk-off sur l'intensité maximale d'un faisceau gaussien dans un cristal. Nous considérons comme exemple le cas d'un cristal de KTP de 10 mm de longueur, coupé pour la SHG de type II, avec une polarisation incidente à  $45^\circ$  (les deux ondes propres ont alors la même amplitude). L'angle  $\rho$  est de  $0,19^\circ$  entre les deux rayons à 1064 nm [138]. La figure 4.10 montre les résultats théoriques obtenus avec un faisceau gaussien de diamètre  $75 \mu\text{m}$  (faisceau d'entrée de la figure 4.10(b)). Ce faisceau de test peut être considéré comme parallèle sur toute la longueur du cristal (longueur de Rayleigh dans le KTP  $> 20$  mm).

Le profil du faisceau en sortie des 10 mm du cristal de KTP (figure 4.10(c)) est modifié par l'effet de walk-off. Au cours de la propagation du faisceau dans le cristal, l'intensité maximale diminue (figure 4.10(a)) à cause de la séparation progressive des deux faisceaux, jusqu'à se stabiliser lorsqu'ils sont complètement séparés. Après 10 mm de propagation,

l'intensité maximale a diminué d'un facteur 1,5. Dans ce cas, la perturbation des mesures de tenue au flux par le walk-off n'est donc pas négligeable. Si cet effet n'est pas considéré, l'erreur sur la détermination du profil spatial du faisceau sera reportée sur les valeurs de fluence des courbes de probabilité, pouvant engendrer une erreur maximale d'un facteur 2.

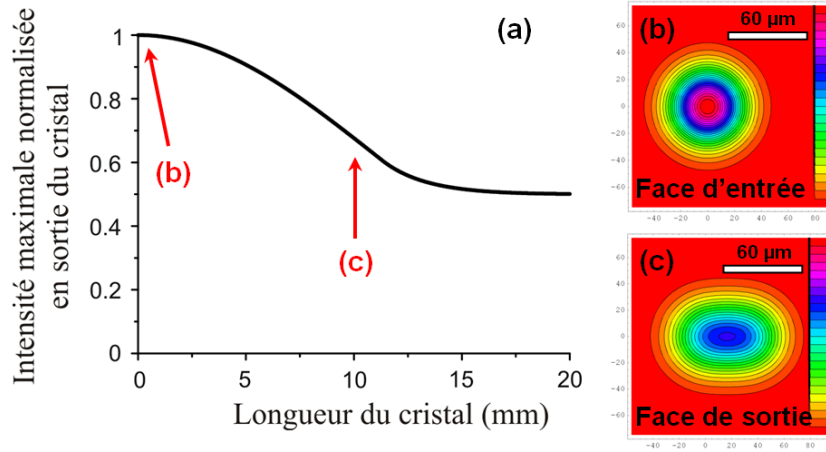


FIG. 4.10 – (a) Évolution de l'intensité maximale en sortie du cristal selon la longueur traversée. Simulation numérique avec un cristal de KTP, propagation selon l'axe de la SHG type II à 1064 nm, polarisation à 45°, irradiation avec un faisceau laser gaussien de diamètre 75  $\mu\text{m}$ . (b) et (c) Profils théoriques du faisceau en entrée (b) et en sortie (c) d'un KTP de 10 mm de longueur.

Par la suite, lorsque la direction de propagation du faisceau de test n'est pas selon un axe principal du cristal, nous veillerons à nous placer de telle sorte de ne pas être perturbé par cet effet. Les simulations théoriques et l'observation du profil spatial à l'intérieur du cristal permettront de le vérifier. Par ailleurs, lors d'un test de tenue au flux en faisceau parallèle, si des endommagements apparaissent sur toute l'épaisseur du cristal et notamment proche de la face arrière, nous pouvons supposer que cet effet n'est pas significatif.

### 4.3.3 Autofocalisation

À forte intensité  $I$ , l'indice de réfraction  $n$  d'un matériau peut être modifié par effet Kerr optique, tel que :  $n(I) = n_0 + \gamma I$ , où  $n_0$  et  $\gamma$  sont respectivement les indices de réfraction linéaire et non linéaire du matériau. Cet effet non linéaire du 3<sup>ème</sup> ordre peut avoir lieu dans tous les milieux, car il n'y a pas de limitations dues aux considérations de symétrie.

Dans le cas d'un faisceau laser gaussien, l'intensité au voisinage de l'axe est plus importante que sur les bords, conduisant à un gradient radial d'indice de réfraction, équivalent à une lentille dont la distance focale dépend de l'intensité. Le faisceau est alors focalisé par

cette lentille d'indice<sup>3</sup>, générant une augmentation de l'intensité maximale dans le matériau.

Cette autofocalisation du faisceau peut être soit globale, engendrant une déformation de la totalité du faisceau telle que nous venons de le décrire, comme observée par Bercegol *et al.* dans la silice [139], soit dite "à petite échelle" amplifiant les éventuelles surintensifications locales du faisceau ce qui conduit à l'éclater en différents filaments. Dans les deux cas, ces phénomènes viennent perturber le profil spatial du faisceau. L'autofocalisation accroît l'intensité maximale du faisceau et modifie la position de la focale dans le matériau. Si la longueur de matériau traversée est grande, l'intensité peut atteindre des valeurs suffisamment élevées pour amorcer l'endommagement du matériau.

Cet effet devient significatif dès lors que l'autofocalisation domine la diffraction, ce qui se produit lorsque la puissance dépasse une puissance appelée puissance critique  $P_c$  [140] :

$$P_c = 0,15957 \frac{\lambda^2}{n_0 \gamma} \quad (4.5)$$

Notons que, bien que l'effet Kerr soit fonction de l'intensité, il s'agit d'une puissance et non pas d'une intensité critique.

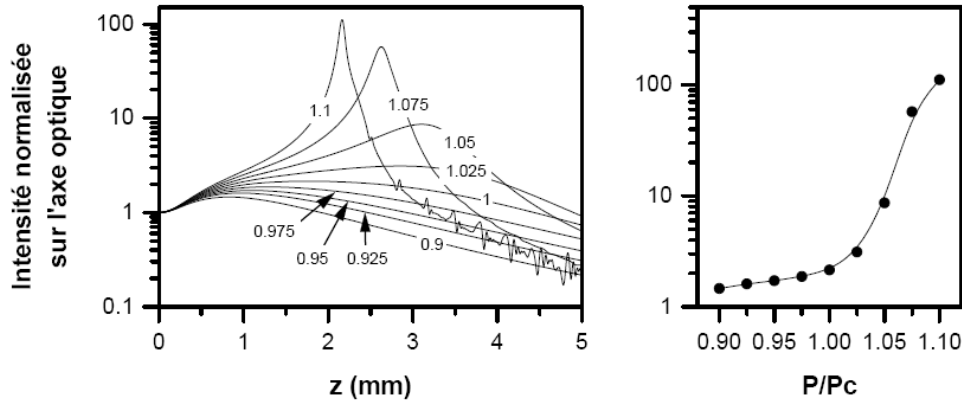


FIG. 4.11 – *A gauche* : Évolution de l'intensité maximale sur l'axe optique en fonction de la distance parcourue dans le matériau pour des puissances de faisceau au voisinage de la puissance critique ( $0,9 < P/P_c < 1,1$ ). *A droite* : Augmentation de l'intensité maximale sur l'axe optique par autofocalisation pour des puissances de faisceau  $P$  proches de la puissance critique  $P_c$ . Simulation pour un faisceau gaussien à 1064 nm de diamètre  $30 \mu\text{m}$  obtenue par résolution numérique des équations de propagation non linéaire. Courbes extraites des travaux de T. Olivier [141].

<sup>3</sup>La plupart des matériaux possède un indice de réfraction non linéaire  $\gamma$  positif. Notons que si  $\gamma < 0$ , le faisceau sera alors défocalisé.

La figure 4.11 présente la simulation numérique réalisée par T. Olivier [141], de l'évolution du maximum d'intensité sur l'axe optique lors de la propagation du faisceau dans un matériau non linéaire pour des puissances au voisinage de la puissance critique. Nous observons que pour des puissances légèrement inférieures à la puissance critique ( $P < P_c$ ), le faisceau subit une faible autofocalisation, puis diverge. La valeur de l'intensité sur l'axe optique au foyer d'autofocalisation varie alors lentement avec la puissance initiale du faisceau et reste inférieure à 3 fois l'intensité initiale. En revanche, pour  $P > P_c$ , l'intensité au foyer d'autofocalisation augmente alors beaucoup plus rapidement et atteint des valeurs jusqu'à 100 fois l'intensité initiale pour une augmentation de seulement 10 % par rapport à la puissance critique. Un résultat similaire a également été obtenu par Dawes et Marburger [142].

Comme pour tous les effets non linéaires, il n'existe pas réellement de seuil pour lequel l'effet apparaît. Cependant, d'après ces résultats, il semble que la valeur de la puissance critique estime assez bien la transition entre un effet d'autofocalisation "faible" pour  $P < P_c$  et "catastrophique" pour  $P > P_c$ .

Du à des indices non linéaires élevés, la puissance critique est généralement plus faible dans les cristaux non linéaires que dans la silice (tableau 4.2). Pour cette raison, les mesures d'endommagement laser dans les cristaux peuvent être perturbées par un phénomène d'autofocalisation dans des conditions où aucun effet ne serait habituellement attendu.

| Matériau | $n_0$ | $\gamma$                        | $P_c$  |
|----------|-------|---------------------------------|--------|
| Silice   | 1,5   | 3,9E-20 m <sup>2</sup> /W [141] | 3,1 MW |
| KTP      | 1,8   | 4,6E-19 m <sup>2</sup> /W [143] | 0,2 MW |

TAB. 4.2 – Comparaison de la puissance critique de la silice et du cristal de KTP à 1064 nm.

L'augmentation de l'intensité maximale du faisceau par autofocalisation conduit à une erreur sur la détermination des valeurs de fluence des courbes d'endommagement. Pour les mesures de tenue au flux, même les effets faibles d'autofocalisation pour des puissances légèrement inférieures à la puissance critique sont un problème, car ils peuvent modifier l'intensité maximale jusqu'à un facteur d'environ 2-3.

Ainsi, lorsque l'autofocalisation ne peut être évitée, il est nécessaire de corriger l'erreur sur la détermination de l'intensité maximale. De manière générale, pour calculer l'intensité maximale dans le matériau en présence d'autofocalisation, il est nécessaire de résoudre les équations de propagation non linéaire. En toute rigueur, l'anisotropie de l'indice de réfraction du cristal et le profil réel du faisceau de test doivent également être pris en compte. Cependant dans de nombreuses configurations de test, des formules simplifiées permettent d'évaluer l'autofocalisation. Différents cas peuvent donc être distingués pour la correction

de ce phénomène :

- L'autofocalisation peut être considérée comme négligeable lorsque  $P < 0,25 P_c$  et que le faisceau de test est parallèle, c'est-à-dire que la profondeur de focalisation est très inférieure devant la longueur de Rayleigh du faisceau [144].
- Lorsque  $P < 0,25 P_c$  et que la profondeur de focalisation est supérieure à  $4 \times$  la distance de Rayleigh du faisceau de test [145], alors l'augmentation de l'intensité par autofocalisation peut être corrigée par la formule [144] :

$$I_{corr} = \frac{I_0}{1 - P/P_c} \quad (4.6)$$

où  $I_0$  est définie comme l'intensité maximale en l'absence d'aberrations.

- Dans les situations de focalisation intermédiaire et toujours pour  $P < 0,25 P_c$ , une formule approchée est proposée par Klein *et al.* . Celle-ci est détaillée dans [144].
- Enfin, pour  $P > 0,25 P_c$ , l'évolution de l'intensité dans le matériau doit être calculée en résolvant numériquement les équations de propagation non linéaire.

Lors des études d'endommagement sur les cristaux, nous nous placerons si possible dans le cas où l'autofocalisation est négligeable ( $P < 0,25 P_c$  et faisceau parallèle), sinon nous corrigerons l'erreur engendrée par un calcul correspondant à un des cas décrits ci-dessus.

## 4.4 Génération "parasite" de seconde harmonique

La conversion de fréquence est une application courante des cristaux non linéaires. Cependant, lors des mesures de tenue au flux, les longueurs d'onde créées peuvent affecter le seuil d'endommagement laser. En effet, le problème d'endommagement devient un problème à 2 ou 3 longueurs d'onde et selon le cristal, le mécanisme d'endommagement peut être différent. Dans le cas des cristaux de KTP et RTP, nous observerons en section 5.9 que l'endommagement en présence du mélange de longueurs d'onde 1064 et 532 nm repose vraisemblablement sur un mécanisme coopératif engendrant une forte diminution du seuil de tenue au flux laser par rapport au seuil mesuré sous irradiation aux longueurs d'onde seules. L'endommagement multi-longueur d'onde fait également l'objet de différentes études dans le cristal de KDP [146, 33, 32].

Nous verrons plus en détails dans les chapitres 5 et 6 l'influence de la génération de seconde harmonique sur la tenue au flux des différents cristaux étudiés. Nous souhaitons discuter ici de l'importance de la présence de génération "parasite" de seconde harmonique lors des tests d'endommagement dans des cristaux qui ne sont pas utilisés pour cette fonction. Il s'agit dans ces cas d'une génération en désaccord de phase ( $\Delta k \neq 0$ ). Dans

certaines configurations, cette génération non souhaitée peut être suffisamment importante pour générer des longueurs d'onde d'intensité non négligeable qui viennent perturber les mesures de tenue au flux laser.

Lors de la conversion de l'onde  $\omega$  en  $2\omega$ , l'efficacité de conversion  $\eta$  est donnée par :  $\eta = I_{2\omega}(L)/I_{\omega}(0)$  où  $L$  est la longueur du cristal. Cependant, dans le cas de désaccord de phase, l'intensité de SHG  $I_{2\omega}(z)$  est une fonction qui oscille en fonction de la longueur du cristal, définie telle que [147] :

$$I_{2\omega}(z) \propto \sin^2\left(\frac{\Delta k z}{2}\right) / \Delta k^2 \quad (4.7)$$

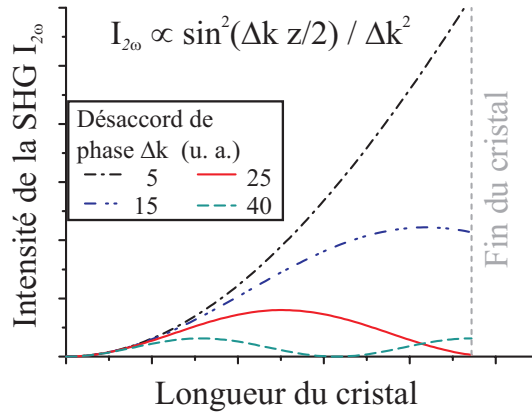


FIG. 4.12 – Évolution de l'intensité de génération de seconde harmonique au cours de la propagation dans le cristal pour différentes valeurs de désaccord de phase  $\Delta k$ . Le maximum d'intensité de SHG est plus grand pour  $\Delta k = 0,25$  que pour 0,4, même si l'intensité en sortie du cristal est plus faible.

Le maximum d'intensité est obtenu pour la longueur de cohérence définie par :  $L_c = 2\pi/\Delta k$ . Celle-ci varie de quelques microns à la longueur du cristal selon la valeur de  $\Delta k$ .

Il peut alors exister une position  $z'$  dans le cristal pour laquelle l'intensité de SHG est plus grande que celle en sortie  $I_{2\omega}(z') > I_{2\omega}(L)$  (cf. figure 4.12). La mesure de l'efficacité de conversion ne reflète donc pas l'intensité maximale de SHG présente dans le cristal. Lors des mesures d'endommagement laser, nous veillerons donc à considérer cet effet perturbatif éventuel (calcul du désaccord de phase  $\Delta k$ ) dans les interprétations des résultats obtenus.

## 4.5 Anisotropie de la tenue au flux laser

Dans les cristaux non linéaires, contrairement aux matériaux amorphes, l'anisotropie de paramètres physiques tels que l'indice de réfraction, peut engendrer une anisotropie de

la tenue au flux laser. Le seuil d'endommagement peut ainsi dépendre de la polarisation ou de la direction d'irradiation laser. Remarquons également que comme l'indice de réfraction vu par le faisceau laser dépend de la direction d'irradiation et de la polarisation, alors les pertes de réflexion aux interfaces air-cristal sont également modifiées par ces deux paramètres.

Cette anisotropie du seuil d'endommagement laser a déjà été observée dans différents cristaux. Nous illustrons ici cette problématique par le cas du cristal de KDP.

Différentes études réalisées sur les cristaux de KDP montrent un effet de la direction de propagation sur la tenue au flux laser. Yoshida *et al.* [148] ont observé un effet de la direction de propagation à 1064 et 532 nm avec une tenue au flux environ  $2 \times$  supérieure pour une direction selon l'axe Z par rapport à la direction X. En revanche, ils n'ont pas observé cet effet à 355 nm, tandis que les travaux de Burnham et Runkel *et al.* [149, 150] ont également montré une résistance au flux laser du KDP et DKDP à 355 nm environ  $1,5$  à  $2 \times$  meilleure selon l'axe Z par rapport aux directions X et THG (entre lesquelles ils n'ont pas observé de différences notables). Ces résultats semblent être confirmés par ceux obtenus par Piombini *et al.* [151] qui ont également observé que la tenue au flux du KDP à 355 nm est dépendante de l'orientation du cristal, et ceci pour différentes directions fonctionnelles : ils ont obtenu une meilleure tenue au flux pour le KDP Z-cut (cellule de Pockels), suivi du KDP THG-cut puis du KDP SHG-cut.

En revanche, ces études indiquent une non-dépendance de la tenue au flux du KDP avec la polarisation. Yoshida *et al.* [148] n'ont constaté aucun effet de la polarisation sur la tenue au flux laser pour 1064, 532 et 355 nm, pour l'ensemble des configurations de polarisation parallèle aux axes du cristal. Ceci a également été observé par Burnham et Runkel *et al.* [149, 150] à 355 nm pour les cristaux de KDP X-cut, Z-cut et THG-cut. En outre, nous avons obtenu le même résultat à 355 nm sur un KDP coupé pour la SHG de type I à 1064 nm (Contrat CEA/Institut Fresnel [120]).

Ainsi, pour le KDP, aucun effet de la polarisation n'est observé, tandis que la direction de propagation modifie la valeur de sa tenue au flux laser. Aucune explication satisfaisante n'est donnée à ce jour pour expliquer cet effet.

En conclusion, contrairement aux matériaux amorphes, la polarisation et de la direction de propagation peut modifier la tenue au flux des cristaux et cet effet est propre à chaque cristal. Ce phénomène montre l'importance de réaliser des mesures systématiques dans les cristaux pour les différentes configurations d'orientation et de polarisation. Par la suite de telles études seront alors effectuées sur les cristaux de KTP, RTP et LBO (cf. chapitres 5 et 6).



## 4.6 Conclusion

Nous avons vu que les mesures d'endommagement dans les cristaux non linéaires soulèvent des problèmes qui ne sont pas rencontrés dans le cas de composants amorphes tels que la silice. Tout d'abord, de par leur coût élevé et leur petite dimension, nous avons optimisé au mieux la matrice de test d'endommagement. Nous avons notamment calculé l'incertitude sur la mesure de la probabilité d'endommagement correspondant à un niveau de confiance donnée afin de pouvoir distinguer les comportements différents en terme de tenue au flux laser des fluctuations inhérentes aux mesures statistiques. Nous avons également adapté la procédure de test S-on-1 pour permettre à partir d'une seule mesure de remonter à l'ensemble des courbes M-on-1 avec M variant de 1 à S.

D'autre part, différents effets dus à la biréfringence (aberrations, walk-off) ou à la non linéarité (autofocalisation) du cristal peuvent perturber le profil spatial du faisceau laser lors des mesures de tenue au flux. Il est donc nécessaire d'évaluer théoriquement la contribution de ces effets pour chaque configuration de test. Nous avons en particulier appliqué une formule permettant de corriger qualitativement l'effet des aberrations apparaissant en faisceau focalisé dans les cristaux. Les phénomènes de walk-off et d'autofocalisation ont également été étudiés pour mettre en place une correction adaptée lorsqu'ils sont présents. Malgré les corrections développées, au vu de la précision souhaitée sur les mesures de tenue au flux, nous préférons nous placer si possible dans des configurations ne faisant pas intervenir ces effets de manière significative. D'un point de vue expérimental, la caractérisation du faisceau de test dans le cristal est nécessaire. Le profil spatial obtenu comparé à celui dans l'air est un bon moyen de s'assurer de l'importance ou non de ces effets.

La génération "parasite" de seconde harmonique lors de l'irradiation laser peut également modifier la tenue au flux des cristaux. Dans les cas de désaccord de phase, la génération observée en sortie ne donne aucune information sur l'intensité maximale du faisceau de seconde harmonique à l'intérieur du cristal. Seul un calcul théorique permet de le déterminer.

Enfin, la tenue au flux des cristaux, contrairement aux matériaux amorphes, peut dépendre de la polarisation et de la direction de propagation du faisceau de test. Ce phénomène montre l'importance de réaliser des mesures systématiques pour les différentes configurations de test.

L'ensemble de ces problèmes spécifiques aux cristaux nécessite de prendre un soin particulier dans la métrologie et de réaliser des études systématiques sur les différents cristaux.





# Chapitre 5

## Étude de l'endommagement laser dans le cas des cristaux de KTP et RTP

### Sommaire

---

|             |   |            |
|-------------|---|------------|
| <b>5.1</b>  | <b>Introduction</b>   | <b>102</b> |
| <b>5.2</b>  | <b>État de l'art sur le phénomène de gray-track</b>                                   | <b>102</b> |
| <b>5.3</b>  | <b>Étude de la tenue au flux de surface du KTP</b>                                    | <b>103</b> |
| 5.3.1       | Description des échantillons testés   | 103        |
| 5.3.2       | Endommagement du traitement antireflet et de la surface                               | 104        |
| 5.3.3       | Identification des précurseurs  | 106        |
| <b>5.4</b>  | <b>Problème d'autofocalisation</b>  | <b>108</b> |
| <b>5.5</b>  | <b>Morphologie des endommagements en volume</b>                                       | <b>111</b> |
| <b>5.6</b>  | <b>Influence de la croissance cristalline sur la tenue au flux laser</b>              | <b>113</b> |
| 5.6.1       | Corrélation entre l'absorption et l'endommagement laser                               | 114        |
| 5.6.2       | Effet des procédés de croissance  | 117        |
| 5.6.3       | Bilan de l'étude  | 121        |
| <b>5.7</b>  | <b>Étude de la fatigue sous irradiation multiple à 1064 et 532 nm</b>                 | <b>121</b> |
| <b>5.8</b>  | <b>Anisotropie de l'endommagement laser</b>   | <b>125</b> |
| 5.8.1       | Effet de la direction d'irradiation et de la polarisation sur la tenue au flux du KTP | 125        |
| 5.8.2       | Comparaison entre les cristaux de KTP et RTP  | 128        |
| <b>5.9</b>  | <b>Influence du mélange de longueurs d'onde 1064 et 532 nm</b>                        | <b>129</b> |
| 5.9.1       | Effet de la génération de seconde harmonique sur l'endommagement du KTP               | 130        |
| 5.9.2       | Application au cas de la cellule de Pockels en RTP                                    | 133        |
| <b>5.10</b> | <b>Conclusion</b>   | <b>134</b> |

---

## 5.1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, les cristaux de KTP et RTP appartiennent à la même famille cristallographique, présentant donc des propriétés physiques très similaires. Le cristal de KTP est connu pour la génération de seconde harmonique de sources laser Nd:YAG, tandis que le RTP est plutôt utilisé pour des applications en cellule électro-optique. Le principal inconvénient de ces cristaux apparaît être leur relativement faible tenue au flux laser.

Peu d'études ont été réalisées sur l'endommagement laser de ces cristaux. La majorité des travaux sur les cristaux de KTP concerne le problème de "gray-track", et à notre connaissance aucune étude spécifique d'endommagement laser n'a été effectuée sur les cristaux de RTP.

Dans ce chapitre, nous allons décrire une étude systématique de la tenue au flux laser de ces deux cristaux aux longueurs d'onde d'intérêt : 1064 et 532 nm, afin de permettre de mieux comprendre les mécanismes initiateurs de l'endommagement. D'autre part, nous caractériserons la résistance au flux laser de ces cristaux dans le cas de leur utilisation fonctionnelle pour la génération de seconde harmonique et l'application en cellule de Pockels.

## 5.2 État de l'art sur le phénomène de gray-track

Une des causes possibles de l'endommagement laser dans le KTP est la création et la présence de centres colorés. En effet, au delà d'une certaine valeur d'énergie et de nombre de tirs, il a été observé que les cristaux s'obscurcissaient sous irradiation laser : phénomène de "gray-track". L'apparition du gray-track dans le KTP fait l'objet de nombreux travaux dans le domaine des lasers impulsionsnels et des lasers continus. Le mécanisme expliquant ce phénomène de gray-track est la création d'une paire électron-trou sous irradiation laser suivi du piégeage des trous par les ions  $\text{Fe}^{3+}$  ( $\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{4+}$ ) impuretés présentes dans le cristal, et des électrons par les ions  $\text{Ti}^{4+}$  qui sont adjacents à un oxygène ( $\text{Ti}^{4+} \rightarrow \text{Ti}^{3+}$ ) [152, 153]. Le changement de valence de l'ion  $\text{Ti}^{4+}$  en  $\text{Ti}^{3+}$  serait à l'origine du noircissement observé. Notons que le gray-track peut également être obtenu par l'application d'un champ électrique continu [154]. Ce phénomène est alors responsable du problème de noircissement sous tension parfois observé dans les cristaux de RTP lors de l'utilisation en cellule de Pockels. Un endommagement catastrophique peut donc être provoqué par l'absorption du faisceau laser par ces centres colorés. La présence de ces centres colorés peut être mesurée de diverses façons : par le biais de la détection d'une baisse d'efficacité de la génération de seconde harmonique, par la mesure de la transmission optique, ou de l'absorption du cristal.

Il a été montré qu'une irradiation à 532 nm seule présente la même génération de gray-track qu'une irradiation à 1064 + 532 nm. Par ailleurs, le cristal s'obscurcit encore plus rapidement sous une irradiation à 355 nm [155], privilégiant un processus multiphotonique

pour expliquer la création de ces centres colorés. Dans le domaine des impulsions longues, Favre [138] a proposé que l'irradiation à 532 nm est responsable de la création des centres colorés qui vont alors absorber l'irradiation à 1064 nm, pouvant ainsi donner lieu à un endommagement de nature thermique. D'autre part, le KTP est moins sensible au phénomène de gray-track lorsque la polarisation du faisceau d'irradiation est selon l'axe Z [156]. La susceptibilité au gray-track semble être corrélée à la conductivité ionique du cristal. En effet, la forte conductivité ionique observée selon la direction Z (due à la présence de canaux dans la structure cristalline selon l'axe Z) serait responsable de la déstabilisation des centres colorés.

L'apparition du gray-track dans le KTP a été évaluée à un seuil d'intensité de seconde harmonique de  $60 \text{ MW/cm}^2$  à 10 ns [157], soit  $0,6 \text{ J/cm}^2$ . Notons que ce seuil peut être différent selon les procédés de fabrication des cristaux, nous pouvons en particulier remarquer le développement de KTP résistant au gray-track. A de faibles fluences d'irradiation, le gray-track est un phénomène non permanent qui se relaxe de manière asymptotique dans le temps. Sa disparition peut être accélérée par recuit thermique (environ  $100^\circ\text{C}$ ) [158]. Une fois relaxé, aucun effet mémoire n'a été constaté. En revanche, à de fortes fluences, le gray-track peut devenir permanent au delà d'un certain nombre de tirs (250 000 impulsions à 1064 nm, 25 ns de  $11 \text{ J/cm}^2$  [159]).

## 5.3 Étude de la tenue au flux de surface du KTP

Lors de l'utilisation sous flux laser intense, un des points critiques des composants est souvent l'endommagement en surface du matériau du à l'action du polissage ou des couches minces optiques lorsque la surface est traitée. Nous nous intéressons alors ici à la caractérisation de la tenue au flux laser en surface des cristaux de KTP et du traitement antireflet.

### 5.3.1 Description des échantillons testés

Deux cristaux de KTP de dimensions  $10 \times 10 \times 5 \text{ mm}$  ont été testés : avec et sans traitement optique. Les deux échantillons ont subi le même procédé de polissage décrit en section 2.3.2. Étant donné que le KTP est principalement utilisé pour la génération de seconde harmonique à 1064 nm, le traitement optique est un antireflet aux longueurs d'onde de 1064 et 532 nm, et les deux cristaux sont taillés pour la SHG (type II) à 1064 nm. Le traitement antireflet est réalisé par un empilement diélectrique de matériaux de  $\text{SiO}_2$  et  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ . La technique de dépôt utilisée est une méthode de pulvérisation ionique, nommée IBS (Ion Beam Sputtering) décrite en section 2.3.4.

### 5.3.2 Endommagement du traitement antireflet et de la surface

L'étude est effectuée en mode 1-on-1 à 1064 nm avec un faisceau de diamètre au waist  $155 \mu\text{m}$ . Ce faisceau est parallèle sur toute la longueur de l'échantillon (5 mm), se rapprochant ainsi des conditions d'utilisation. Les courbes de tenue au flux obtenues en surface (face arrière) des deux cristaux (traité et non traité) sont présentées sur la figure 5.1. Celles-ci sont confondues, indiquant vraisemblablement que l'endommagement laser du traitement antireflet et de la surface non traitée du KTP est du aux mêmes types de défauts. L'endommagement du traitement optique semble donc du à des précurseurs se trouvant en surface du cristal et non dans l'empilement diélectrique lui-même. Ces précurseurs présentent un seuil de claquage de  $20 \text{ J/cm}^2$  et une densité surfacique d'environ  $500$  précurseurs/ $\text{mm}^2$ .

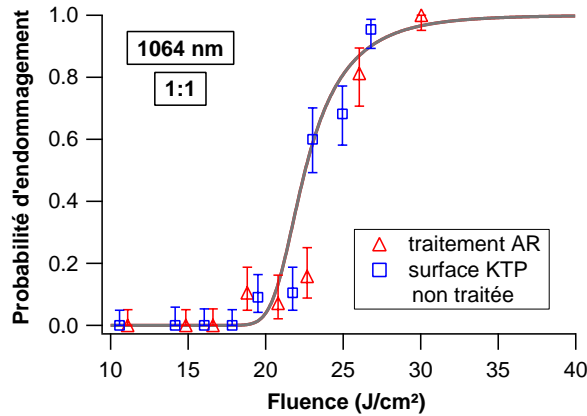


FIG. 5.1 – Courbes de tenue au flux laser à 1064 nm en mode 1-on-1 du traitement antireflet (AR) et de la surface du KTP SHG-cut (diamètre du faisceau au waist :  $155 \mu\text{m}$ , polarisation incidente perpendiculaire à l'axe Z.).

La figure 5.2 compare la morphologie des endommagements obtenus sur la surface de sortie et sur le traitement antireflet pour différentes valeurs de fluences. Pour des fluences légèrement supérieures au seuil ( $21 \text{ J/cm}^2$ ), le dommage du traitement optique montre un décollement complet des couches et les endommagements des deux surfaces traitées et non traitées révèlent la présence de plusieurs précurseurs sous le spot d'irradiation. Au vu de la taille du faisceau de test, cette constatation est en accord avec les densités surfaciques obtenues. Une brûlure de plasma peut également être observée sur les deux surfaces. Lorsque la fluence augmente ( $24 \text{ J/cm}^2$ ), des fractures apparaissent jusqu'à donner lieu à un cratère pour des fluences supérieures à  $26 \text{ J/cm}^2$ . Les dommages du traitement optique ont donc une morphologie très similaire à ceux obtenus en surface du KTP, renforçant l'idée que l'endommagement des couches est engendré par la présence de précurseurs situés à l'interface cristal / empilement.

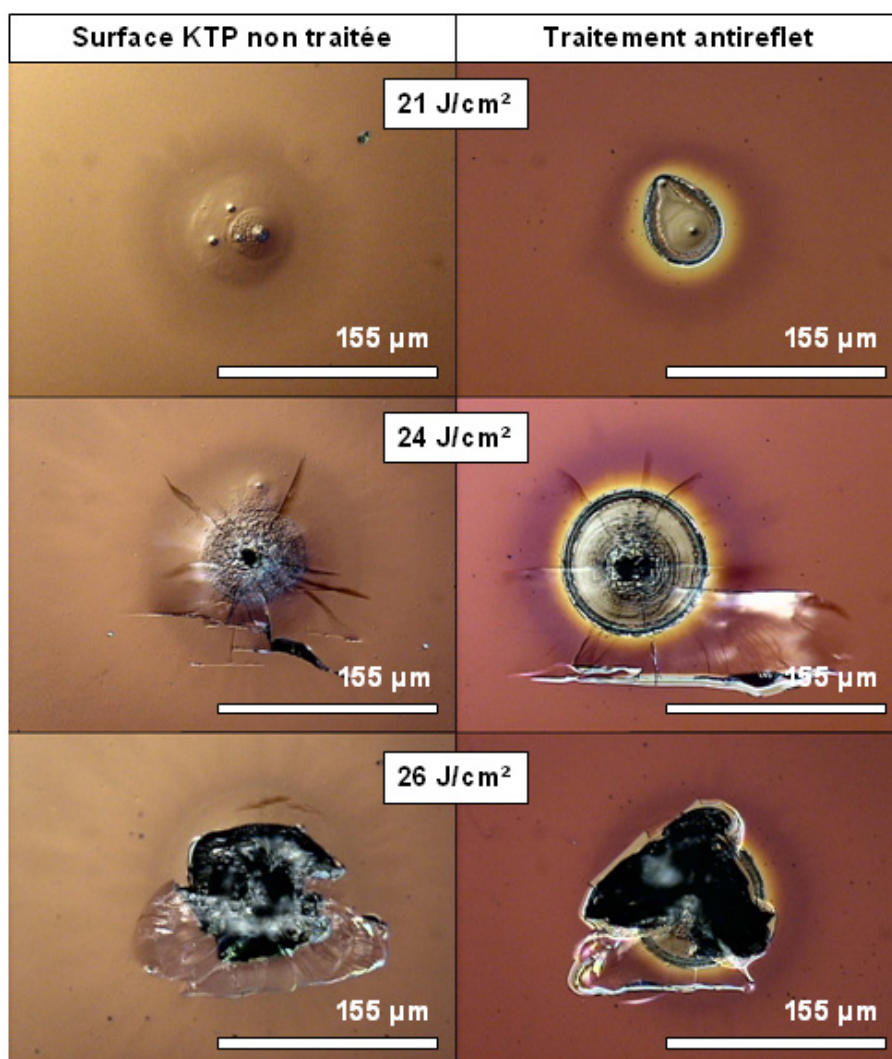


FIG. 5.2 – Comparaison de la morphologie des endommagements du traitement antireflet et de la face arrière du KTP pour différentes valeurs de fluence. Endommagements obtenus sous irradiation à 1064 nm avec un faisceau de diamètre 155  $\mu\text{m}$ . Observation par microscopie optique en mode Nomarski.

A partir d'environ 23 J/cm<sup>2</sup>, certains dommages en surface présentent en plus une fissure en croix. Ces dommages ont l'air d'être initiés en volume puis de déboucher en face arrière (cf. figure 5.3). La tenue au flux du volume du cristal semble donc être très proche de celle de la surface. La morphologie des endommagements en volume sera discutée par la suite dans la section 5.5.

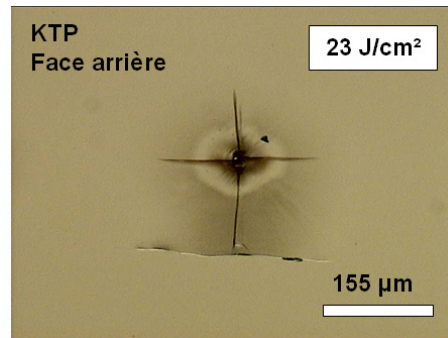


FIG. 5.3 – Endommagement en volume du KTP débouchant en face arrière, obtenu sous irradiation à 1064 nm avec un faisceau de diamètre 155  $\mu\text{m}$ . Observation par microscopie optique en fond clair.

### 5.3.3 Identification des précurseurs

Étant donné que les précurseurs responsables de l'endommagement apparaissent être situés en surface du KTP, nous allons nous intéresser à l'état de surface du cristal non traité. L'observation au microscope en mode Nomarski de la surface non irradiée du cristal ne révèle aucun défaut spécifique à cette échelle d'observation (cf. figure 5.4). En revanche, dans une zone irradiée, l'onde de choc créée lors de l'interaction entraîne l'élimination partielle de la "couche de passage", permettant ainsi de révéler les rayures de surface provenant des étapes de polissage (cf. figure 5.4). Des particules des différents liquides de polissage ou de nettoyage peuvent donc être supposées être à l'origine de l'endommagement de la surface du cristal (cf. section 2.3.2).

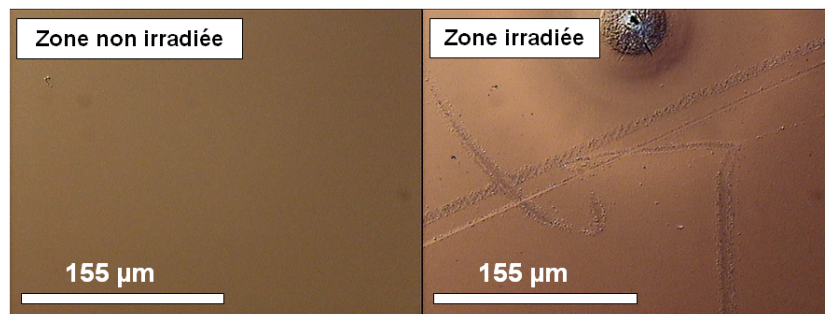


FIG. 5.4 – Observation au microscope Nomarski de l'état de surface du KTP non traité, dans une zone non irradiée et irradiée à 1064 nm. Révélation des rayures de polissage par l'onde de choc issue de l'interaction entraînant l'élimination partielle de la "couche de passage".



Afin d'essayer d'identifier si le précurseur responsable de l'endommagement en surface du KTP provient d'un résidu de polissage ou de nettoyage, il est nécessaire de caractériser le seuil de claquage sous irradiation laser des particules issues des produits utilisés lors des étapes de polissage et de nettoyage de ce cristal. Notons que des études similaires ont déjà été effectuées sur le polissage de substrat de silice [52, 94, 95, 96].

Pour mesurer la tenue au flux laser des liquides de polissage et nettoyage, le faisceau de test est focalisé dans la solution (diluée avec de l'eau dé-ionisée) placée dans une cuve de spectrométrie en quartz. Le liquide est agité par un agitateur magnétique afin de conserver les particules à tester en suspension au cours des mesures. Le claquage est caractérisé par l'apparition d'un plasma et d'une onde acoustique, détectée par un microphone [114]. Les seuils d'endommagement obtenus sont répertoriés dans le tableau 5.1.

Notons que nous avons également comparé la tenue au flux des solutions en fin de vie par rapport aux solutions initiales, et qu'aucune différence de tenue au flux laser n'a été observée.

| Étapes                    | produits                                       | seuils                |
|---------------------------|--|-----------------------|
| Doucissage                | alumine  | 70 J/cm <sup>2</sup>  |
| Polissage                 | solution de polissage (diamant + tensio-actif) | 17 J/cm <sup>2</sup>  |
|                           | diamant  | 20 J/cm <sup>2</sup>  |
|                           | tensio-actif                                   | 40 J/cm <sup>2</sup>  |
| Polissage mécano-chimique | gel de silice                                  | 70 J/cm <sup>2</sup>  |
| Nettoyage                 | eau dé-ionisée + lessiviel                     | 55 J/cm <sup>2</sup>  |
|                           | eau dé-ionisée                                 | 125 J/cm <sup>2</sup> |

TAB. 5.1 – Seuils de tenue au flux laser à 1064 nm des différents liquides de polissage et nettoyage.

D'après les seuils de claquage obtenus sur l'ensemble des différents produits de polissage et nettoyage, nous observons que le seuil le plus faible est celui du diamant contenu dans la solution de polissage. D'autre part, le seuil de claquage du diamant est identique à celui de la surface du KTP. Il est donc possible d'imaginer que des résidus de diamant soient présents en surface du KTP et soient à l'origine de l'endommagement du KTP. Cependant, pour pouvoir conclure, il faudrait modifier le procédé de polissage à cette étape, en utilisant par exemple un autre type de particules abrasives. Il serait alors peut être envisageable de parvenir à améliorer la résistance au flux laser de la surface du cristal en modifiant le procédé de polissage.



## 5.4 Problème d'autofocalisation

Nous nous proposons à présent d'étudier la tenue au flux laser en volume des cristaux de KTP et RTP. L'objet ici est de déterminer la taille du faisceau de test adéquat pour réaliser cette étude, ceci au regard des différents problèmes (aberrations, autofocalisation,...) évoqués au chapitre 4. Notons que l'ensemble des cristaux testés seront de longueur 10 mm.

Dans le chapitre 4, nous avons vu qu'en faisceau fortement focalisé des aberrations apparaissent dans les cristaux de KTP et RTP. Le faisceau de test doit alors être suffisamment parallèle pour s'affranchir de ce phénomène. Par ailleurs, un faisceau parallèle a l'avantage de se rapprocher des conditions fonctionnelles d'utilisation des cristaux. Nous testons alors un cristal de KTP de longueur 10 mm avec le faisceau de diamètre  $155 \mu\text{m}$  utilisé précédemment dans l'étude des surfaces. Ce faisceau peut être considéré comme parallèle sur les 10 mm d'épaisseur du cristal. La figure 5.5 compare les courbes d'endommagement laser à 1064 nm en mode 1-on-1 obtenues sur les cristaux de KTP de longueur 5 mm (cf. section 5.3) et 10 mm. La configuration de test est la même pour les deux cristaux : irradiation selon la direction de SHG et polarisation perpendiculaire à l'axe Z.

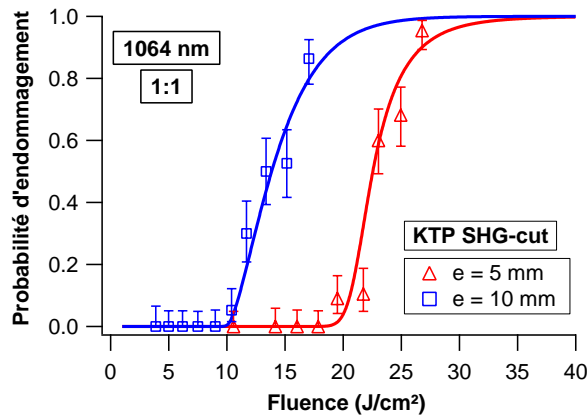


FIG. 5.5 – Courbes d'endommagement laser en mode 1-on-1 des cristaux de KTP SHG-cut de longueur 5 et 10 mm. Irradiation à 1064 nm avec un faisceau de  $155 \mu\text{m}$  de diamètre. Pour  $e = 5 \text{ mm}$ , les endommagements sont apparus en face arrière. Pour  $e = 10 \text{ mm}$ , les dommages sont situés en volume.

Dans le cas du cristal de 5 mm, nous avons vu précédemment que l'endommagement se produit en face arrière pour des valeurs de fluences supérieures à  $20 \text{ J/cm}^2$ . Dans ce cas, la tenue au flux du volume est donc supérieure à celle de surface. Notons toutefois que lors des tests, certains endommagements sont apparus en volume, montrant que le seuil en volume est très proche de celui de surface. En revanche, pour le même cristal mais d'épaisseur 10 mm, l'endommagement est observé en volume pour des fluences supérieures à  $10 \text{ J/cm}^2$ ,

soit 2 fois inférieures au seuil mesuré en surface. Il apparaît donc une diminution du seuil d'endommagement de volume avec la longueur du cristal. Deux interprétations pourraient apparaître comme probables pour expliquer cette différence de tenue au flux laser : la génération de seconde harmonique et le phénomène d'autofocalisation.

L'hypothèse de la génération de seconde harmonique ne semble pas permettre ici d'expliquer la différence observée. Nous allons voir en section 5.9 que la génération de 532 nm engendre une diminution du seuil de tenue au flux par rapport au seuil du cristal à 1064 nm uniquement. La résistance au flux laser plus faible pour le cristal le plus long pourrait alors s'expliquer par une intensité de seconde harmonique générée plus élevée. Cependant, la configuration de test des cristaux est en désaccord de phase. Le second harmonique généré est donc très faible voir négligeable et la période des oscillations de l'intensité de SHG est de l'ordre du micromètre et non de quelques millimètres (cf. section 4.4). Ainsi, l'intensité maximale générée est très faible et identique pour les deux longueurs de KTP.

Une autre interprétation de la dépendance du seuil d'endommagement avec la longueur de l'échantillon peut être apportée par le phénomène d'autofocalisation. Le calcul de la puissance critique nécessaire à l'autofocalisation permet de vérifier si cet effet est attendu ici et pourrait alors expliquer la différence de tenue au flux observée (cf. section 4.3.3). Dans le KTP, la puissance critique à 1064 nm est de 0,2 MW (voir tableau 4.2). Ainsi, pour un faisceau de diamètre 155  $\mu\text{m}$ , la fluence correspondante est seulement de 9,2 J/cm<sup>2</sup>. Lors du test de tenue au flux, la fluence d'irradiation laser est supérieure à la fluence critique, montrant que des effets d'autofocalisation sont effectivement à prévoir dans le cristal. En outre, ce phénomène d'endommagement laser par autofocalisation a également été observé par Li *et al.* dans le KTP [143]. Ils ont montré de la même manière que le seuil d'endommagement à 532 nm diminue avec l'épaisseur du cristal. En effet, l'augmentation de l'intensité maximale du faisceau par autofocalisation est d'autant plus grande que la longueur du cristal est importante. Ceci permet alors d'expliquer la différence de tenue au flux observée entre les deux longueurs de KTP. Notons que dans le cas où le cristal a une longueur de 5 mm, l'augmentation de l'intensité maximale due à l'autofocalisation semble négligeable. En effet, dans ce cas quelques endommagements sont également apparus en face avant, tendant à montrer que l'endommagement en face arrière n'est pas du à la focalisation du faisceau.

Le phénomène d'autofocalisation est confirmé par l'observation de la morphologie des endommagements. La figure 5.6 présente des endommagements dans des cristaux de RTP de longueur 10 mm, dont la morphologie révèle une filamentation le long de la direction d'irradiation laser. Cette morphologie est caractéristique du phénomène d'autofocalisation et a notamment déjà été observée dans la silice par Bercegol *et al.* [139].

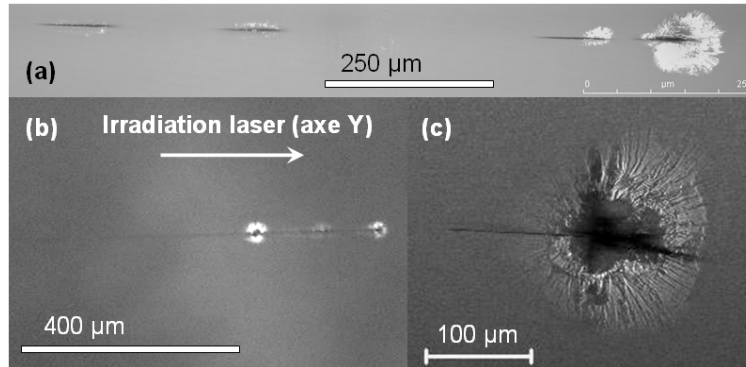


FIG. 5.6 – Endommagements laser par autofocalisation dans des cristaux de RTP Y-cut de longueur 10 mm irradiés à 1064 nm en faisceau parallèle. Observation perpendiculairement à la direction d'irradiation par microscopie confocale ((a) et (c)) et microscopie optique en mode Nomarski (b).

Par la suite, afin d'éviter d'être perturbé par des effets d'autofocalisation trop importants lors des mesures d'endommagement laser en volume, nous choisisons un faisceau de diamètre plus petit. La gamme de taille de faisceau "utilisable" est comprise entre 20 et 100  $\mu m$ . Pour des diamètres supérieurs à 100  $\mu m$ , le phénomène d'autofocalisation devient non négligeable, et pour des diamètres inférieurs à 20  $\mu m$ , les mesures sont fortement perturbées par les effets d'aberrations.

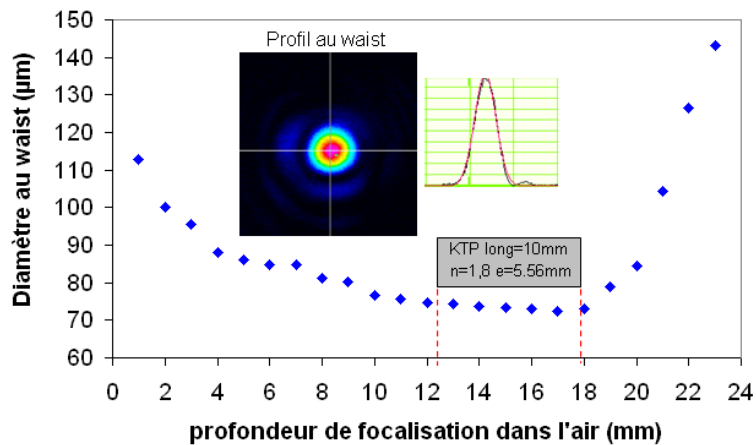


FIG. 5.7 – Caustique et profil spatial au waist du faisceau laser à 1064 nm focalisé à un diamètre de 75  $\mu m$  au waist.

Nous utiliserons alors un faisceau de 75  $\mu m$  de diamètre, pour lequel le calcul de la

puissance critique correspond à une fluence de  $39,5 \text{ J/cm}^2$ . La tenue au flux en mode 1-on-1 (cf. figure 5.17) et la morphologie des dommages obtenus avec cette taille de faisceau (cf. figure 5.9) confirment que le phénomène d'autofocalisation n'est pas significatif dans ce cas. Ce faisceau présente donc l'avantage de s'affranchir de l'autofocalisation tout en pouvant être considéré comme quasi-parallèle sur les 10 mm d'épaisseur des échantillons (cf. figure 5.7).

## 5.5 Morphologie des endommagements en volume

Contrairement aux matériaux amorphes comme la silice, les endommagements dans les cristaux présentent des directions de cassure privilégiées, reflétant la structure du cristal. L'irradiation laser à 1064 nm des cristaux de KTP et RTP induit des endommagements en croix dont les deux directions de clivage sont parallèles aux axes cristallins (cf. figure 5.8(a)).

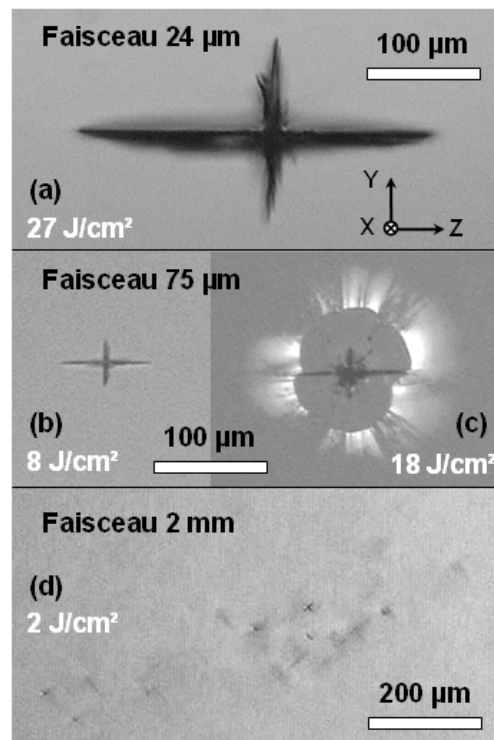


FIG. 5.8 – Endommagements laser dans des cristaux de KTP et RTP irradiés à 1064 nm avec différentes tailles de faisceau : (a) KTP, irradiation à 0,1 mJ avec un faisceau de  $24 \mu\text{m}$  de diamètre. (b) RTP, irradiation à 0,4 mJ avec un faisceau de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre. (c) KTP, irradiation à 0,8 mJ avec un faisceau de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre. (d) RTP, irradiation à 63 mJ avec un faisceau de 2 mm de diamètre.

La morphologie obtenue est rigoureusement identique entre les deux cristaux. Selon la fluence d'irradiation et le diamètre du faisceau de test, la taille des endommagements varie d'environ une dizaine à quelques centaines de micromètres. D'autre part, nous avons observé que la morphologie des dommages et l'orientation du clivage ne dépendent pas de la direction d'irradiation ou de la polarisation du faisceau incident<sup>1</sup>, comme également observé par Yoshida *et al.* [160, 161].

Lors de l'irradiation laser avec le faisceau quasi-parallèle de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre de cristaux de KTP et RTP de 10 mm de longueur, l'endommagement a lieu préférentiellement en volume (cf. figure 5.8(b)). Notons que pour des fluences élevées, des endommagements peuvent également se produire en face arrière. Les endommagements observés ont une taille allant d'environ 10 à  $200 \mu\text{m}$  sous un seul tir laser selon la fluence d'irradiation.

Pour des fluences suffisamment élevées (typiquement supérieures à  $15 \text{ J/cm}^2$ ), le dommage en croix est accompagné en plus d'une série de micro-fractures radiales formant un cercle autour du clivage en croix (cf. figure 5.8(c)). Ce halo de micro-fractures est perpendiculaire à la direction d'irradiation. Cette morphologie a également été obtenue dans le KTP par Yoshida *et al.* à 1064 nm pour une durée d'impulsion de 1 ns [160, 161].

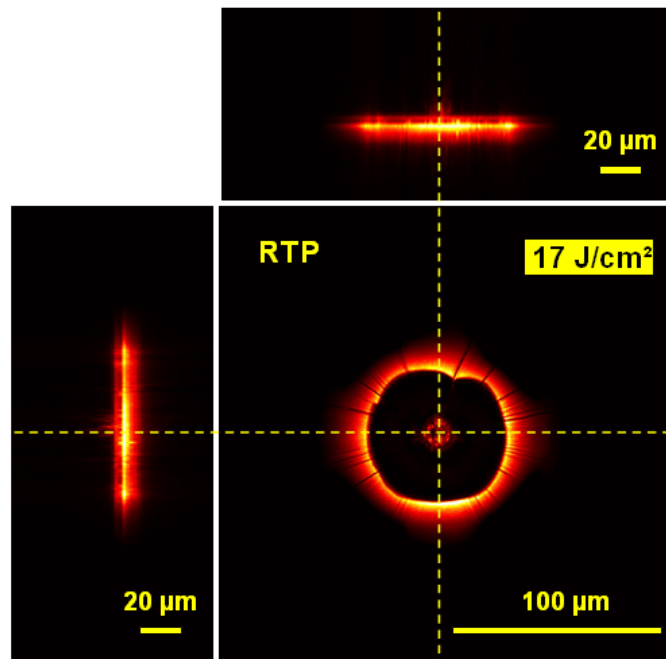


FIG. 5.9 – Observation au microscope confocal d'un endommagement laser dans un cristal de RTP irradié à 1064 nm avec un faisceau de  $75 \mu\text{m}$  de diamètre au waist.

<sup>1</sup> Les mesures de tenue au flux laser dans l'ensemble des configurations de direction d'irradiation et de polarisation sont présentées en section 5.8.

Des images au microscope confocal permettent de mieux caractériser ce halo de micro-fractures (cf. figure 5.9). La taille du halo dans le plan perpendiculaire à la direction d'irradiation est de l'ordre de 100 à 200  $\mu m$  et la reconstitution des dommages en 3 dimensions indique une épaisseur autour de 20 à 30  $\mu m$ .

L'apparition de ce halo de micro-fractures résulte vraisemblablement de l'existence de contraintes engendrées lors de la création du dommage. L'endommagement peut être produit par une forte pression du plasma et par un choc thermique généré par le plasma. Nous pouvons supposer que la pression est suffisamment forte pour induire une déformation plastique du cristal dans la zone proche du point focal. En s'éloignant du point focal, la pression diminue jusqu'à n'être plus suffisamment élevée pour induire cette déformation plastique. En revanche, elle reste suffisante pour créer des contraintes qui vont alors se relaxer dans un plan par la formation de micro-fractures.

Sous irradiation laser en faisceau focalisé (diamètre 24  $\mu m$ ) dans les cristaux de KTP et RTP, un clivage en croix peut également apparaître allant d'une taille de l'ordre de 10 à 400  $\mu m$  selon la fluence d'irradiation (cf. figure 5.8(a)). En revanche, aucun halo de micro-fractures n'est formé à cette taille de faisceau même à des fluences très élevées. Dans ce cas, le fort gradient thermique conduit vraisemblablement à la formation de contraintes dont la relaxation se fait uniquement selon les directions de clivage du cristal.

Lors du fonctionnement sous tension et sous irradiation multiple avec un faisceau parallèle de 2 mm de diamètre d'un cristal de RTP en cellule électro-optique, nous avons observé la formation d'un nuage d'endommagements (cf. figure 5.8(d)). Ces dommages d'environ 20  $\mu m$  de dimension présentent la même morphologie en croix et ont lieu dans différents plans en profondeur du cristal. Dans ce cas, la quantité d'énergie déposée est importante (63 mJ) mais est répartie sur une surface plus grande. L'endommagement laser est alors initié sur différents précurseurs qui vont permettre de relaxer les contraintes du cristal. Ceci explique que le clivage en croix soit de petites dimensions et qu'aucun halo de micro-fractures n'apparaisse. La formation de plusieurs endommagements sous le faisceau de test a été observée de manière identique dans les cristaux de KDP lors d'irradiation laser sous large faisceau [7].

## 5.6 Influence de la croissance cristalline sur la tenue au flux laser

Selon les procédés de croissance cristalline, des défauts tels que des inclusions, impuretés et des dislocations, peuvent apparaître dans les cristaux de KTP et RTP. Les propriétés optiques et mécaniques (absorption, conductivité, résistance mécanique) peuvent alors être très différentes. Par ailleurs, au sein d'une même boule cristalline, il existe différents secteurs de pousse, qui ne possèdent pas les mêmes propriétés notamment en terme d'absorption. Afin de permettre une éventuelle amélioration de la tenue au flux laser par la modification

des procédés de croissance, il apparaît donc intéressant d'étudier l'influence des paramètres propres à la croissance cristalline sur la tenue au flux laser du cristal.

## 5.6.1 Corrélation entre l'absorption et l'endommagement laser

### 5.6.1.1 Description du cristal étudié

Lors de la croissance du RTP, différents secteurs de pousse se forment dans la boule. Ces secteurs peuvent présenter des différences d'absorption significatives. Nous nous intéressons ici à l'étude de la tenue au flux laser entre deux secteurs de croissance différents (notés A et B) au sein d'un cristal de RTP Y-cut de dimensions  $34 \times 34 \times 10$  mm (cf. figure 5.10).

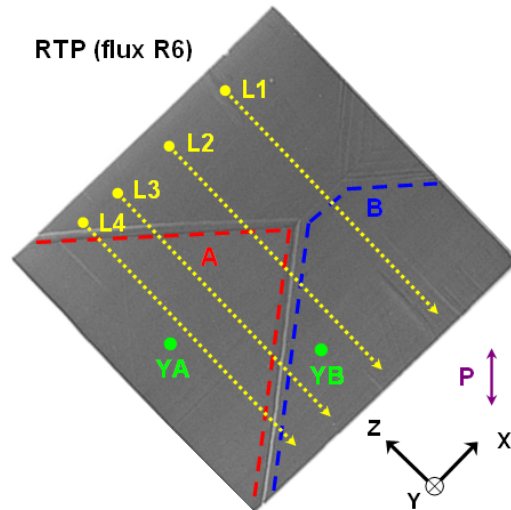


FIG. 5.10 – Ombre portée du cristal de RTP Y-cut de dimensions  $34 \times 34 \times 10$  mm : présence de plusieurs secteurs de croissance (notamment zones A et B). Les lignes L1 à L4 ainsi que  $Y_A$  et  $Y_B$  correspondent aux directions de mesures d'absorption.

La figure 5.10 représente l'ombre portée du cristal de RTP. Cette technique simple d'observation sans optiques intermédiaires permet de révéler les défauts cristallins, tels que les stries, les inclusions de flux et les joints entre les secteurs. Nous observons ici différents secteurs de croissance. Chaque secteur apparaît comme homogène et présente peu de défauts (seules quelques stries sont visibles).

### 5.6.1.2 Mesures d'absorption

Les mesures d'absorption dans le cristal de RTP sont effectuées par une technique de photothermie, nommée PCI *Photothermal Common-path Interferometer* [162], qui a été développée en 1998 à l'Université de Stanford. Cette méthode repose sur l'effet de lentille



thermique pour détecter une distortion de la phase du faisceau sonde causée par l'absorption du faisceau pompe. Cette technique permettant de mesurer de faibles absorptions des composants optiques est présentée en détails dans [163, 164].

Dans le montage expérimental utilisé ici, les deux faisceaux pompe et sonde se croisent dans l'échantillon. Le faisceau pompe est émis par un laser Nd:YAG continu 5 W à 1064 nm focalisé à un diamètre de  $100 \mu\text{m}$  au waist. Le faisceau sonde est émis par un laser He-Ne 0,5 W à 633 nm focalisé à  $240 \mu\text{m}$  de diamètre au waist. L'échantillon est fixé sur une platine 3 axes permettant de faire des cartographies dans les trois dimensions avec une résolution spatiale inférieure à 0,5 mm. La sensibilité de ce dispositif permet de mesurer des coefficients d'absorption jusqu'à  $10^{-7} \text{ cm}^{-1}$ . Un tel dispositif est donc adapté pour la mesure de l'absorption moyenne d'un matériau faiblement absorbant.

Les mesures d'absorption dans le cristal de RTP sont effectuées pour les différentes lignes L1 à L4 dans le plan (X, Z) au milieu du cristal en Y et selon les directions en profondeur dans le volume  $Y_A$  et  $Y_B$  (cf. figure 5.10). Les résultats sont présentés sur les figures 5.11 et 5.12.

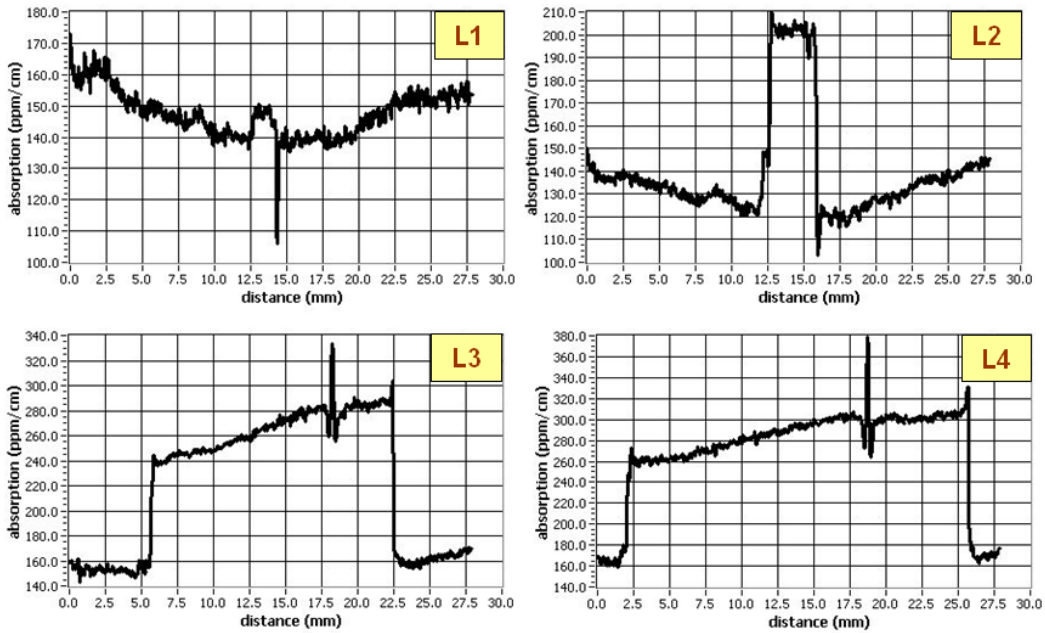


FIG. 5.11 – Mesures d'absorption à 1064 nm dans le cristal de RTP Y-cut selon les lignes L1 à L4.

Les mesures selon les lignes L2 à L4 traversent les secteurs A et B. Nous observons sur la figure 5.11 une différence d'absorption entre ces deux secteurs. Par ailleurs, l'absorption est relativement homogène au sein d'un même secteur, ce qui est confirmé par les mesures



en profondeur ( $Y_A$  et  $Y_B$ ) selon la direction Y du cristal dans les deux zones A et B (cf. figure 5.12).

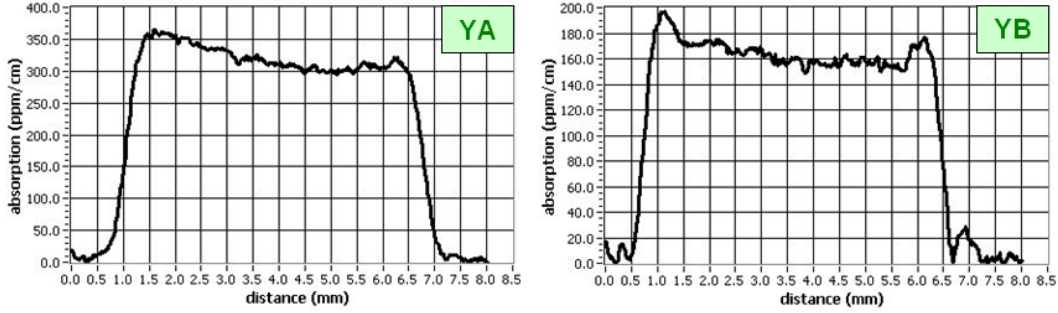


FIG. 5.12 – Mesures d’absorption à 1064 nm dans le cristal de RTP Y-cut en profondeur selon les lignes  $Y_A$  et  $Y_B$ .

Les mesures d’absorption dans le secteur B donnent une absorption moyenne de 150 ppm/cm avec une erreur de  $\pm 7\%$ . Dans le secteur A, l’absorption est plus élevée avec une moyenne de 280 ppm/cm avec un écart de  $\pm 10\%$ . Ainsi, dans chacune des zones A et B, le cristal peut être considéré comme homogène et la différence d’absorption entre ces deux secteurs est proche d’un facteur 2.

### 5.6.1.3 Corrélation avec l’endommagement laser

Les mesures de tenue au flux laser ont été réalisées à 1064 nm dans les deux secteurs A et B avec un faisceau de  $75\ \mu\text{m}$  de diamètre (cf. figure 5.13). La configuration de test correspond à l’utilisation en cellule de Pockels (RTP Y-cut, polarisation à  $45^\circ$  de l’axe Z).

D’après les courbes d’endommagement obtenues en figure 5.13, aucune différence de tenue au flux n’est visible entre les deux secteurs du RTP. Ce résultat est en accord avec ceux obtenus par Bolt et Van der Mooren [129] qui ont également montré que l’endommagement laser du cristal de KTP à 1064 nm est indépendant du secteur de croissance de la boule.

A cette échelle d’observation, aucune corrélation n’a donc été constatée entre le niveau d’absorption moyen et le seuil d’endommagement laser du cristal de RTP<sup>2</sup>. Notons que ce résultat a été obtenu pour des faibles niveaux d’absorption macroscopique et pour une différence d’absorption d’un facteur 2 seulement. A ces faibles niveaux d’absorption, celle-ci ne semble donc pas constituer un paramètre déterminant dans la tenue au flux laser

<sup>2</sup> L’effet des défauts sur la tenue au flux laser de cristaux de KDP fait l’objet de la thèse d’A. Surmin [165]. En particulier, une étude similaire effectuée sur du KDP a montré une anti-corrélation entre le seuil de tenue au flux laser du cristal en faisceau focalisé et le niveau d’absorption moyen [166].

du cristal. En revanche, il est possible qu'un effet sur la tenue au flux soit observé pour des cristaux de moins bonne qualité présentant des niveaux d'absorption plus élevés et des secteurs avec d'importantes différences d'absorption.

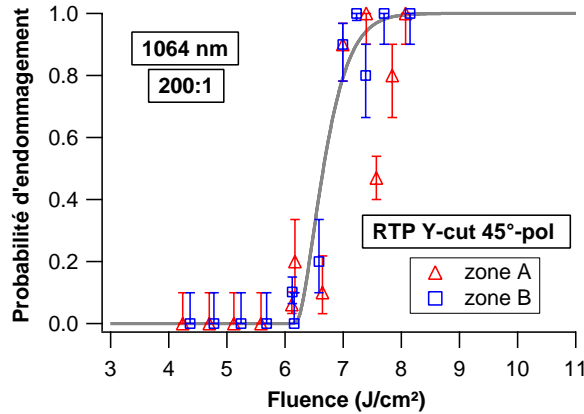


FIG. 5.13 – Courbes de tenue au flux laser en mode 200-on-1 dans le RTP Y-cut. Irradiation à 1064 nm en polarisation à 45° de l'axe Z avec un faisceau de 75  $\mu\text{m}$  de diamètre au waist. Comparaison des deux secteurs de croissance A et B.

### 5.6.2 Effet des procédés de croissance

Selon les procédés de croissance cristalline, la présence de défauts (inclusions, dislocations) peut modifier la qualité optique et les propriétés physiques, notamment en terme de conductivité ionique ou d'absorption, des cristaux obtenus. Nous nous intéressons alors à l'influence des procédés de croissance sur la tenue laser des cristaux de RTP.

La croissance des cristaux de RTP étudiés ici est une méthode des flux (cf. section 2.3.1.1). Les produits chimiques nécessaires à l'élaboration du cristal sont mis en solution dans un flux à base de potassium et de rubidium. La croissance "standard" est réalisée à partir d'un flux de formule chimique  $\text{Rb}_6\text{P}_4\text{O}_{13}$ , noté R6. Cependant, la conductivité ionique des cristaux obtenus dans ce cas est assez importante (de l'ordre de  $10^{-9}$  S/cm). Or lors de l'utilisation en cellule de Pockels, une forte conductivité ionique entraîne un noircissement du cristal lors du fonctionnement sous une tension élevée pour des cristaux de grandes ouvertures.

Ainsi, afin de diminuer la conductivité, des cristaux issus de flux différents ont été élaborés : flux R5 de formule  $\text{Rb}_5\text{P}_3\text{O}_{10}$  et R4 de formule  $\text{Rb}_4\text{P}_2\text{O}_7$ . La différence relative de la richesse en Rb (rapport  $[\text{Rb}]/[\text{P}]$ ) impacte directement et de manière tout à fait sensible la stoechiométrie du RTP résultant. Plus le rapport  $[\text{Rb}]/[\text{P}]$  est grand, meilleure est la stoechiométrie du cristal et plus basse est sa conductivité [167]. Cependant, ce type de modification pose des problèmes en terme de qualité optique du cristal élaboré. Nous

observons en effet que les cristaux issus des flux R4 et R5 présentent des inclusions de flux, des stries et différents secteurs de croissance (cf. figure 5.14).

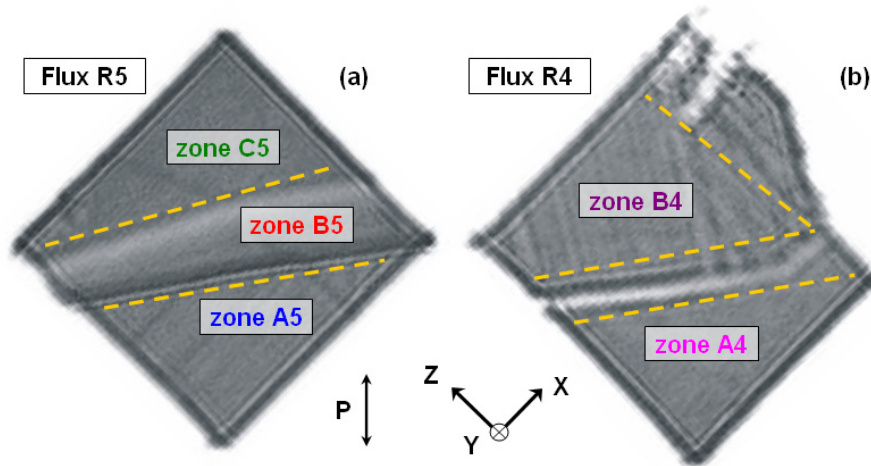


FIG. 5.14 – Ombres portées des cristaux de RTP de dimensions  $10 \times 10 \times 10$  mm issus des flux R5 et R4. Présence d’inclusions de flux, de stries et de différents secteurs de croissance.

Les valeurs de conductivité des différents cristaux sont reportées dans le tableau 5.2. Ces mesures montrent effectivement que la conductivité des cristaux décroît plus le rapport  $[Rb]/[P]$  est grand. Par ailleurs, notons que les valeurs d’absorption sont du même ordre de grandeur entre les différents cristaux. Compte tenu des résultats de l’étude précédente (section 5.6.1), ces faibles différences d’absorption ne sont donc pas considérées ici.

| RTP                     | Conductivité ionique      |
|-------------------------|---------------------------|
| flux R4                 | $5,5 \cdot 10^{-10}$ S/cm |
| flux R5                 | $8 \cdot 10^{-10}$ S/cm   |
| flux R6 / fournisseur A | $1,5 \cdot 10^{-9}$ S/cm  |
| fournisseur B           | $1 \cdot 10^{-12}$ S/cm   |

TAB. 5.2 – Conductivité ionique des cristaux de RTP issus de différents procédés de croissance.

Nous comparons la tenue au flux laser à 1064 nm des cristaux de RTP Y-cut issus des flux R6, R5 et R4. Les mesures sur le cristal de flux R6 sont celles présentées en section 5.6.1. Au vu des secteurs de croissance présents sur les cristaux de flux R5 et R4, nous réalisons les mesures d’endommagement laser dans différentes zones que nous supposons comme homogène (zones A, B et C, figure 5.14). Les résultats pour l’ensemble des zones et les trois flux différents sont présentés en figure 5.15.

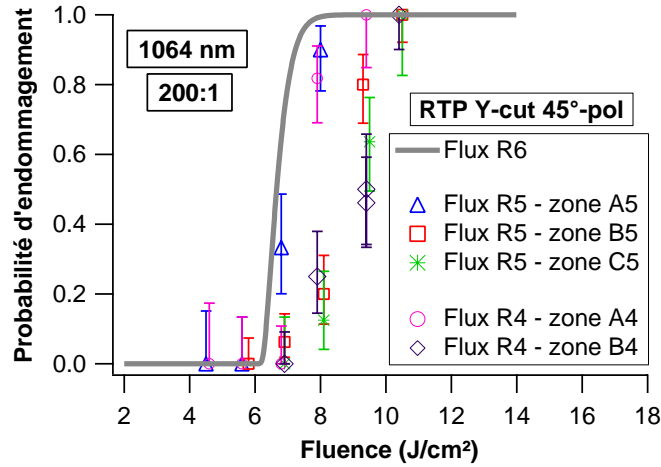


FIG. 5.15 – Courbes de tenue au flux laser à 1064 nm en mode 200-on-1 de deux cristaux de RTP (Y-cut, polarisation à 45° de l'axe Z), issus de flux R4 et R5, et comportant des secteurs de croissance différents (zones A, B et C). Comparaison avec les mesures obtenues sur un RTP de flux R6.

Nous observons une légère dispersion des probabilités mesurées. L'ensemble des points expérimentaux tels que  $0 < p < 1$  se situe en effet dans des valeurs de fluence comprises entre 6 et 10 J/cm<sup>2</sup>. En revanche, il n'apparaît aucune tendance claire, ni entre les différents secteurs ni entre les différents flux. D'après les mesures sur les différents secteurs, il semblerait que même si la qualité optique des cristaux est un point critique pour les applications, elle ne modifie pas la tenue au flux laser du cristal. Au vu des résultats obtenus sur les différents flux, le seuil d'endommagement, contrairement au phénomène de gray-track [156], ne semble pas être influencé par la valeur de conductivité ionique du cristal. Remarquons toutefois que les différences de conductivité ne sont pas très importantes entre les flux R6, R5 et R4.

Nous comparons alors la tenue au flux laser de cristaux de RTP provenant de deux fournisseurs différents (notés A et B, cf. figure 5.16) qui présentent une forte différence de conductivité ionique (facteur 1 000, cf. tableau 5.2). Les courbes d'endommagement obtenues en figure 5.16 sont tout à fait identiques. La conductivité ionique ne semble donc pas modifier le seuil d'endommagement du RTP et cela même pour un facteur 1 000 d'écart. D'autre part, remarquons qu'aucune différence de tenue au flux n'est constatée entre des cristaux provenant de deux fournisseurs distincts et donc issus de procédés de croissance différents.

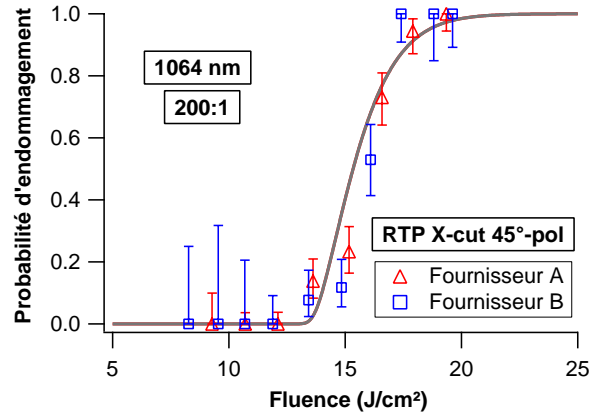


FIG. 5.16 – Courbes de tenue au flux laser à 1064 nm en mode 200-on-1 dans le RTP (X-cut, polarisation à 45° de l'axe Z). Comparaison de deux fournisseurs différents.

En revanche, dans la littérature, des différences de tenue au flux laser ont été constatées sur des cristaux de KTP issus de procédés de croissance différents.

En 1989, Bierlein et Vanherzeele [72] ont comparé un KTP issu de croissance par la méthode des flux à un KTP issu de la méthode hydrothermale (cf. section 2.3.1.1) et ont obtenu un seuil d'endommagement (à 526 nm, 30 ps) trois fois plus élevé pour le KTP issu de la croissance hydrothermale. La meilleure résistance au flux du KTP de croissance hydrothermale semble provenir d'une plus faible présence d'impuretés dans le cristal. En effet, la croissance par flux nécessite la présence d'un solvant dans lequel le KTP est dissous et des molécules du solvant peuvent contaminer le cristal, alors que la croissance hydrothermale se fait uniquement dans une solution aqueuse sans adjonction de solvant.

L'influence de la présence d'impuretés sur la tenue au flux laser du KTP a également été observée dans une étude plus récente de Hu *et al.* [156]. Ils ont comparé la tenue au flux laser à 1064 nm (17 ns, 10 000 tirs à 1 Hz) de cristaux commerciaux et de cristaux très purs présentant une très faible concentration d'impuretés de Fe, Cr et Rh. Ils ont montré que le KTP commercial possède une résistance au flux laser bien plus faible que le KTP très pur. Ils ont proposé un mécanisme reposant sur la génération de paires électrons-trous pour expliquer la plus faible tenue au flux laser en présence d'impuretés. Les centres colorés créés sous irradiation laser sont stabilisés en présence d'impuretés. Ils vont alors absorber une partie du faisceau d'irradiation, pouvant donc conduire à un endommagement. La très faible concentration d'impuretés permettrait ainsi de diminuer la stabilisation des centres colorés et donc d'augmenter la résistance au flux laser du cristal.

Contrairement aux résultats issus de la littérature, la non-dépendance du procédé de croissance sur l'endommagement du RTP dans l'étude menée ici peut probablement s'expliquer par la comparaison de cristaux présentant des concentrations en impuretés dans le cristal du même ordre de grandeur.

### 5.6.3 Bilan de l'étude

Dans cette étude, aucun effet de l'absorption, de la conductivité ionique et de la qualité optique (secteurs de croissance, inclusions, stries) sur la tenue au flux laser à 1064 nm des cristaux de RTP n'a été observé. En revanche, ces paramètres demeurent importants d'un point de vue du fonctionnement du cristal. Au vu de ces résultats, nous pourrions réaliser par la suite une étude systématique multi-paramètres de l'endommagement laser sur des cristaux présentant de faibles différences d'absorption, de conductivité ou des secteurs de croissance différents sans suspecter d'effet sur la tenue au flux.

## 5.7 Étude de la fatigue sous irradiation multiple à 1064 et 532 nm

Lors de l'irradiation en tirs répétés, la résistance au flux laser des matériaux peut être plus faible que sous un tir unique (cf. section 3.1.1.2). Cette diminution du seuil d'endommagement peut s'interpréter comme un effet de "fatigue" du composant [100]. Dans le cadre d'une utilisation fonctionnelle des cristaux, il est primordial de caractériser cet effet, afin de déterminer une fluence seuil en dessous de laquelle le composant peut être utilisé dans la durée sans endommagement sur la chaîne laser. Nous avons donc étudié le comportement des cristaux de KTP et RTP sous irradiation multiple avec un grand nombre de tirs (10 000 tirs) pour les deux longueurs d'onde d'intérêt : 1064 et 532 nm.

Afin de limiter le nombre de paramètres à considérer, nous choisissons une configuration simple ne faisant intervenir aucun mécanisme de conversion de fréquence. La direction d'irradiation est alors définie selon l'axe Y et la polarisation selon l'axe X (notation : Y-cut, X-pol). A partir des mesures 10 000-on-1, nous pouvons extraire l'ensemble des courbes de tenue au flux S-on-1 avec S allant de 1 à 10 000 (cf. section 4.2.4). La figure 5.17 présente les courbes d'endommagement laser du KTP à 1064 et 532 nm en mode 1-on-1, 200-on-1 et 10 000-on-1. Les seuils obtenus sont récapitulés dans le tableau 5.3.

| Longueur d'onde   | 1064 nm                | 532 nm                |
|-------------------|------------------------|-----------------------|
| Seuil 1-on-1      | 18,1 J/cm <sup>2</sup> | 7,0 J/cm <sup>2</sup> |
| Seuil 200-on-1    | 11,4 J/cm <sup>2</sup> | 6,9 J/cm <sup>2</sup> |
| Seuil 10 000-on-1 | 9,0 J/cm <sup>2</sup>  | 6,8 J/cm <sup>2</sup> |

TAB. 5.3 – Seuils 1-on-1, 200-on-1 et 10 000-on-1 du KTP (Y-cut, X-pol) à 1064 et 532 nm.

A 1064 nm, le seuil d'endommagement 1-on-1 est de 18 J/cm<sup>2</sup>, tandis qu'il est de 7 J/cm<sup>2</sup> à 532 nm. Cette décroissance du seuil de tenue au flux du KTP avec la longueur d'onde a également été observée par Yoshida *et al.* [160, 161].

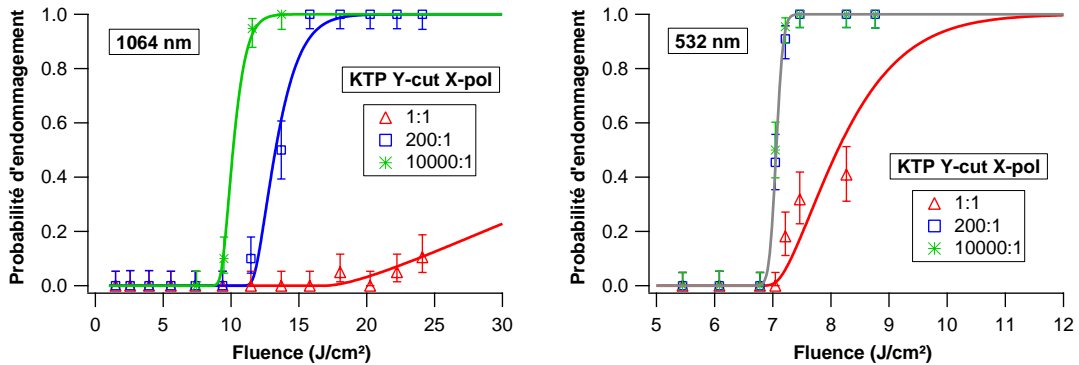


FIG. 5.17 – Courbes de tenue au flux laser du KTP (Y-cut, X-pol) en mode 1-on-1, 200-on-1 et 10 000-on-1 à 1064 nm (à gauche) et 532 nm (à droite).

D'après le modèle gaussien développé au chapitre 3, les densités de précurseurs peuvent être extraites des pentes des courbes 1-on-1 (cf. tableau 5.4). La densité de défauts responsables de l'endommagement à 1064 nm est très faible, dépassant à peine plus d'une dizaine de précurseurs/mm<sup>3</sup>. A 532 nm, la densité de défauts obtenue est un peu plus élevée, de l'ordre de quelques centaines par mm<sup>3</sup>. Etant donné les différences de seuils de claquage et de densités de défauts entre les deux longueurs d'onde, les précurseurs responsables de l'endommagement du KTP ne semblent donc pas être les mêmes à 1064 et 532 nm.

| Longueur d'onde                            | 1064 nm              | 532 nm              |
|--|----------------------|---------------------|
| Seuil 1-on-1                               | 18 J/cm <sup>2</sup> | 7 J/cm <sup>2</sup> |
| Densité de précurseurs par mm <sup>3</sup> | 15                   | 240                 |

TAB. 5.4 – Seuils et densités de précurseurs dans le KTP (Y-cut, X-pol) à 1064 et 532 nm.

Pour mettre en évidence le comportement de fatigue des cristaux de KTP et RTP aux deux longueurs d'onde, nous pouvons représenter les données S-on-1 de deux manières différentes, conformément aux représentations issues de la norme S-on-1 [24]. L'ensemble des sites endommagés de la matrice de test peut être répertorié en fonction de la fluence appliquée et du nombre de tirs auquel le site a été endommagé (cf. figures 5.18(b) et 5.19(b)). La seconde représentation est de tracer l'évolution du seuil d'endommagement (LIDT) en fonction du nombre de tirs (cf. figures 5.18(a) et 5.19(a)).

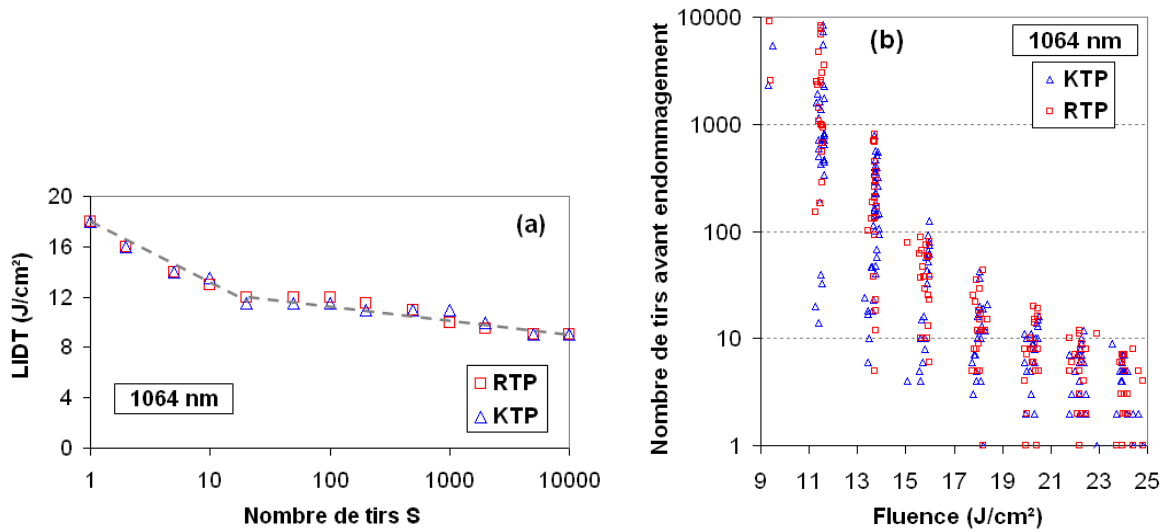


FIG. 5.18 – Étude de la fatigue des cristaux de KTP et RTP (Y-cut, X-pol) lors d’une irradiation à 1064 nm. (a) Évolution du seuil bas d’endommagement laser (LIDT) en fonction du nombre de tirs. (b) Ensemble des sites endommagés représentés en fonction de la fluence appliquée et du nombre de tirs subi avant dommage.

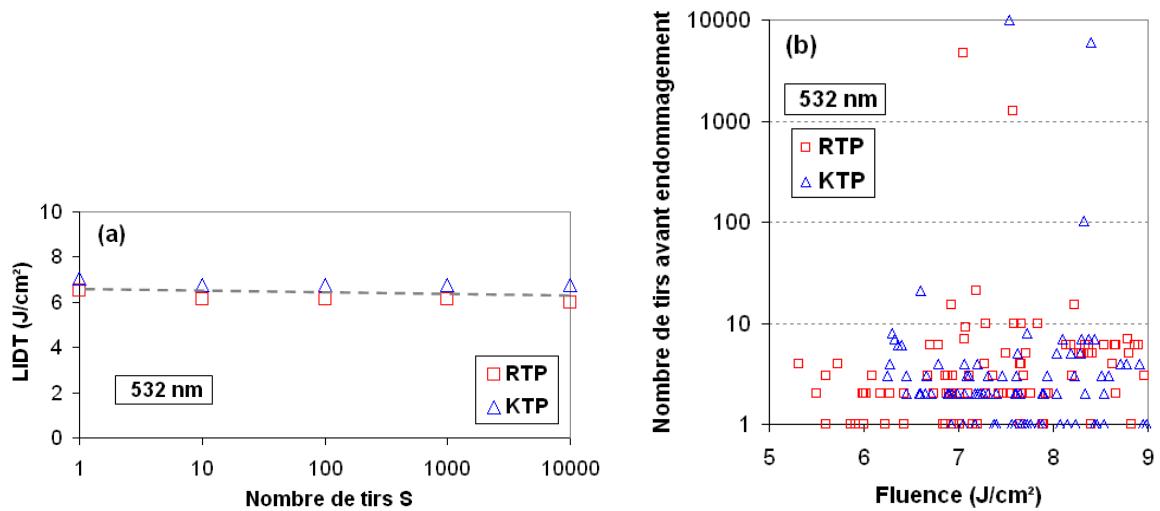


FIG. 5.19 – Étude de la fatigue des cristaux de KTP et RTP (Y-cut, X-pol) lors d’une irradiation à 532 nm. (a) Évolution du seuil bas d’endommagement laser (LIDT) en fonction du nombre de tirs. (b) Ensemble des sites endommagés représentés en fonction de la fluence appliquée et du nombre de tirs subi avant dommage.



Sous irradiation multiple à 1064 nm, les cristaux de KTP et RTP présentent un important effet de fatigue. En effet, nous observons sur la figure 5.18(b) que lorsque la fluence diminue, le cristal s'endommage encore si le nombre de tirs est suffisamment grand, ce qui est caractéristique d'un comportement de vieillissement sous flux laser. La diminution du seuil d'endommagement laser lorsque le nombre de tirs augmente peut alors être observée sur la figure 5.18(a). Deux pentes peuvent être distinguées. De 1 à environ 20 tirs, le seuil diminue fortement avec le nombre de tirs, tandis qu'après 20 tirs, la décroissance est beaucoup plus faible. Après 10 000 tirs, le seuil de tenue au flux du cristal est deux fois plus faible que celui obtenu en mode 1-on-1. Notons que le comportement de fatigue est observé de manière tout à fait similaire pour les cristaux de KTP et RTP. La quasi-stabilisation du seuil après une vingtaine de tirs est un point particulièrement intéressant pour l'utilisation en fonctionnement de ces cristaux.

A 532 nm, les résultats obtenus présentés sur la figure 5.19(a) indiquent que le seuil des cristaux de KTP et RTP est constant en fonction du nombre de tirs. D'autre part, nous observons sur la figure 5.19(b) que l'endommagement a lieu dès les premiers tirs et cela quelque soit la fluence appliquée. Ce comportement met en évidence l'absence d'effet de fatigue pour les deux cristaux sous tirs laser répétés à cette longueur d'onde.

Nous pouvons remarquer que le même type de comportement différent à deux longueurs d'onde sous irradiation multiple se retrouve pour d'autres cristaux et notamment pour le cristal de KDP [5]. En effet, lors d'une irradiation laser à 1064 nm de cristaux de KDP, le seuil d'endommagement diminue en fonction du nombre de tirs. L'évolution de la courbe présente également 2 pentes. Le seuil décroît fortement sur les 100 premiers tirs, puis se stabilise sur les tirs suivants. En revanche, à 355 nm, l'effet des tirs cumulés sur la tenue au flux laser est quasiment nul. Notons que l'absence de fatigue à 355 nm est renforcée par la faisabilité du conditionnement laser des cristaux de KDP à cette longueur d'onde [168, 169, 170].

L'étude sous irradiation multiple des cristaux de KTP et RTP a permis de mettre en évidence un comportement tout à fait identique pour les deux cristaux. A 1064 nm, nous avons montré un important effet de fatigue : après 10 000 tirs, le seuil d'endommagement laser est deux fois plus faible que celui obtenu après une seule impulsion. En revanche, la décroissance du seuil est très faible après seulement quelques dizaines de tirs. Ceci est intéressant pour pouvoir définir un seuil d'utilisation fonctionnelle des composants. Par ailleurs, aucun effet de fatigue n'est observé à 532 nm. Ce résultat est d'autant plus intéressant que la tenue au flux laser à 532 nm est plus critique qu'à 1064 nm.

Par la suite, l'ensemble des tests sera effectué en mode S-on-1. Nous choisirons  $S=200$ , car le seuil est quasi-stabilisé après une centaine de tirs. Ces tests permettront d'avoir une valeur du seuil très proche des conditions d'utilisation sous un grand nombre de tirs, et cela en un temps de test raisonnable (1h en 200-on-1 contre 55h en 10 000-on-1 à 10 Hz pour une matrice de  $20 \times 10$  sites).

## 5.8 Anisotropie de l'endommagement laser

Contrairement aux matériaux amorphes, les cristaux, et en particulier le KTP et RTP, présentent une anisotropie de paramètres physiques tels que l'indice de réfraction, l'absorption non linéaire ou encore l'indice de réfraction non linéaire [143]. Comme nous l'avons constaté au chapitre 4, cette anisotropie peut engendrer une dépendance de la tenue au flux laser avec la polarisation ou la direction d'irradiation laser. Nous allons donc effectuer des mesures d'endommagement laser des cristaux de KTP et RTP pour l'ensemble des combinaisons de direction d'irradiation laser et de polarisation selon les axes cristallins. Nous présenterons les résultats obtenus pour les cristaux de KTP, puis nous comparerons les deux cristaux.

### 5.8.1 Effet de la direction d'irradiation et de la polarisation sur la tenue au flux du KTP

La tenue au flux laser à 1064 nm en mode 200-on-1 des cristaux de KTP a été testée pour l'ensemble des combinaisons de direction d'irradiation laser et de polarisation selon les axes cristallins.

La figure 5.20 compare les courbes de probabilité d'endommagement dans le KTP pour différentes directions d'irradiation laser lorsque la polarisation est fixée. Les courbes obtenues sont complètement identiques. Ainsi, contrairement aux cristaux de KDP (cf. section 4.5), la direction d'irradiation laser ne semble pas modifier la tenue au flux des cristaux de KTP.

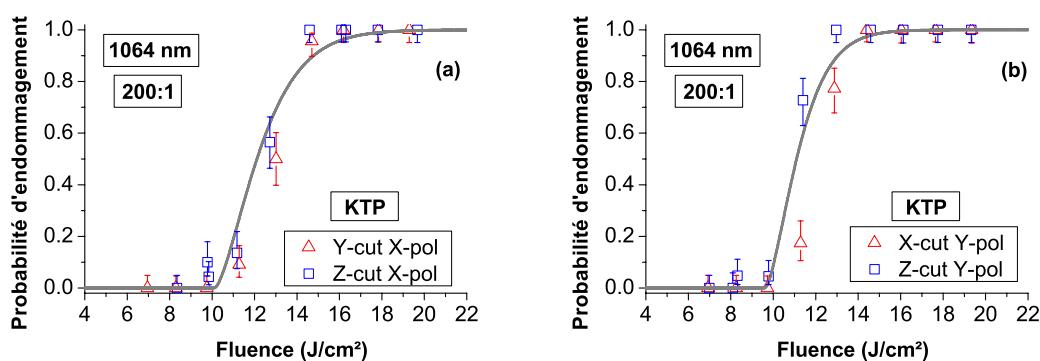


FIG. 5.20 – Courbes d'endommagement laser en mode 200-on-1 à 1064 nm du KTP : influence de la direction d'irradiation. (a) Comparaison des directions Y et Z pour la polarisation X fixée. (b) Comparaison des directions X et Z pour la polarisation Y fixée.

De la même manière, nous pouvons comparer les courbes de probabilité d'endomma-

gement du KTP pour différentes polarisations lorsque la direction d'irradiation est fixée. Aucune différence de tenue au flux laser n'apparaît entre les polarisations X et Y (cf. figure 5.21). Ceci est en accord avec les résultats obtenus par Yoshida *et al.* [160].

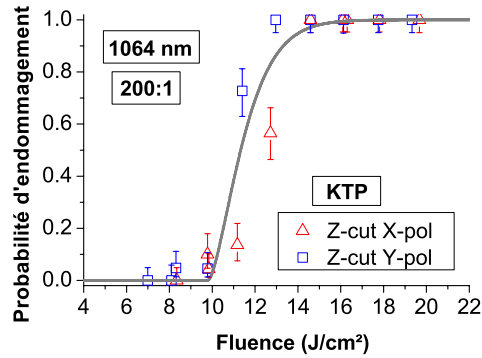


FIG. 5.21 – Courbes d'endommagement laser en mode 200-on-1 à 1064 nm du KTP : influence de la polarisation. Comparaison des polarisations X et Y pour la direction Z fixée.

En revanche, lors de l'irradiation laser en polarisation selon l'axe Z, le cristal est significativement plus résistant au flux laser. Le seuil d'endommagement mesuré en mode 200-on-1 en volume est supérieur à  $50 \text{ J/cm}^2$ . Pour des fluences supérieures à  $50 \text{ J/cm}^2$ , les surfaces s'endommagent trop, rendant impossible la détermination du seuil de tenue au flux du volume avec ce faisceau de test.

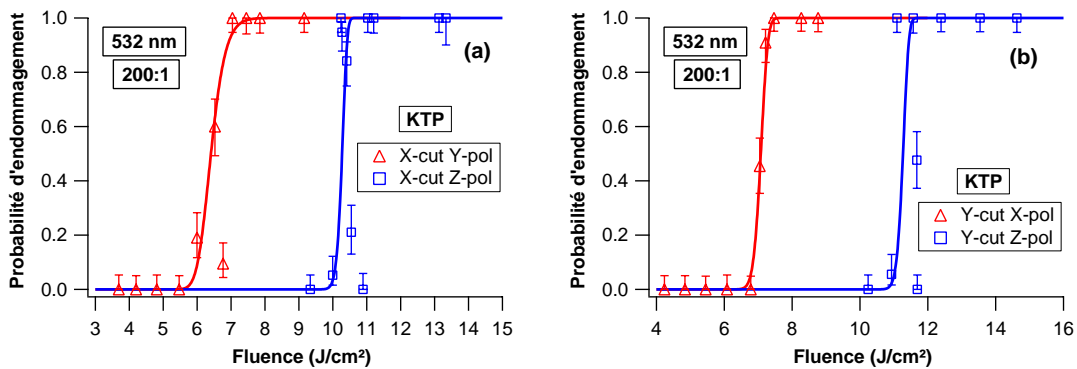


FIG. 5.22 – Courbes d'endommagement laser à 532 nm en mode 200-on-1 du KTP (faisceau de  $77 \mu\text{m}$  de diamètre au waist) : influence de la polarisation. (a) Comparaison des polarisations Y et Z pour la direction X fixée. (b) Comparaison des polarisations X et Z pour la direction Y fixée.

Afin d'observer si cet effet est également présent à 532 nm, nous comparons la tenue au flux du KTP à 532 nm en mode 200-on-1 pour différentes polarisations (cf. figure 5.22). Le seuil de tenue au flux laser est d'environ 6 J/cm<sup>2</sup> pour les polarisations X et Y, tandis qu'il est autour de 10 J/cm<sup>2</sup> en polarisation Z. Une meilleure résistance au flux laser est donc également observée à 532 nm lorsque le faisceau incident est polarisé selon l'axe Z.

L'observation d'un seuil d'endommagement laser à 1064 nm plus élevé en polarisation Z est confirmée par les résultats issus de la littérature [129, 160, 161]. Par ailleurs, Yoshida *et al.* [160] ont observé des pertes en transmission pour une irradiation en polarisation Z. Ils ont attribué ces pertes à un mécanisme de diffusion Raman stimulée provenant de la vibration de la liaison Ti-O [171]. Notons que la diffusion Brillouin stimulée peut également être un phénomène de pertes possible [34]. Ils n'ont donc pas conclu à un effet de plus haute tenue au flux laser du cristal en polarisation Z.

Pour vérifier la présence de pertes éventuelles, nous avons mesuré la transmission externe des cristaux (cf. figure 5.23). Les valeurs mesurées sont en bon accord avec la valeur théorique de 84 % pour un matériau (sans traitement optique) d'indice de réfraction moyen de 1,8 à 1064 nm. En revanche, en polarisation Z, une diminution de la transmission est observée avant endommagement du cristal. A 35 J/cm<sup>2</sup>, la transmission mesurée est seulement de 60 %. Remarquons que cet effet ne provient pas d'une modification permanente du cristal causée par l'irradiation laser. En effet, après la mesure de la transmission à forte fluence, le même site irradié à faible fluence donne à nouveau une transmission de 84 %. Cette constatation est en accord avec les deux mécanismes de pertes évoqués.

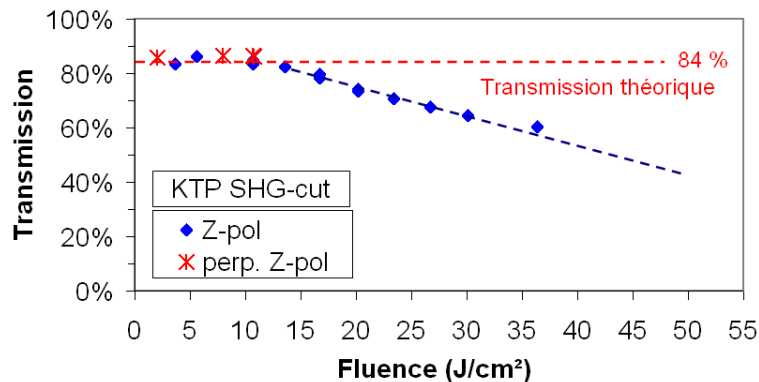


FIG. 5.23 – Transmission externe à 1064 nm du cristal de KTP SHG-cut en fonction de la fluence appliquée pour différentes configurations de polarisation du faisceau incident.

Ces pertes deviennent significatives à partir de fluences supérieures au seuil d'endommagement multi-tir du cristal dans la plupart des configurations. Ainsi, ce phénomène ne permet pas d'expliquer la meilleure résistance au flux laser obtenue selon l'axe Z dans

notre montage. En revanche, les valeurs de fluences obtenues à 1064 nm en polarisation Z devront être corrigées en considérant cette courbe de transmission. En extrapolant la courbe de transmission jusqu'à  $50 \text{ J/cm}^2$  par une droite décroissante, nous obtenons alors un seuil corrigé en polarisation Z supérieur à  $25 \text{ J/cm}^2$  au lieu de  $50 \text{ J/cm}^2$  sans correction des pertes. Notons que puisqu'il n'est pas clair si les pertes apparaissent au début ou à la fin du cristal, nous définissons alors la limite inférieure.

Dans nos mesures, l'anisotropie du seuil d'endommagement laser ne s'explique donc pas par des mécanismes de pertes. Nous proposons alors une explication reposant sur le même mécanisme que l'anisotropie du gray-track observée par Hu *et al.* [156]. Les auteurs ont montré que le KTP est moins sensible au phénomène de gray-track lorsque la polarisation du faisceau d'irradiation est selon l'axe Z. Pour expliquer leur résultat, ils ont alors proposé un mécanisme basé sur la stabilité de centres colorés. Le phénomène de gray-track repose sur la création d'une paire électron-trou sous irradiation laser suivi du piégeage des trous par les ions  $\text{Fe}^{3+}$  (impuretés dans le cristal) et des électrons par les ions  $\text{Ti}^{4+}$  qui sont adjacents à un oxygène [152, 153]. Ces centres colorés générés sont stables près des lacunes en ions  $\text{K}^+$ . Outre le phénomène de gray-track, ces centres peuvent être à l'origine de l'endommagement laser, car ils augmentent l'absorption du faisceau d'irradiation. Lorsque le faisceau laser se propage à l'intérieur du cristal, le champ électrique interagit avec les charges dans le cristal. Si la polarisation du faisceau est selon l'axe Z, les ions  $\text{K}^+$  peuvent se déplacer par un mécanisme de saut d'ions, car la barrière de potentiel est très faible dans cette direction (seulement de 0,3 eV [172], ce qui est inférieur à l'énergie d'agitation thermique à température ambiante). Ainsi, l'arrivée d'un ion sur une lacune vient déstabiliser le centre coloré qui va disparaître. Ce phénomène entraîne une décroissance de la durée de vie des centres colorés, diminuant la probabilité d'initiation de l'endommagement. En effet, si la durée de vie du centre coloré devient inférieure à la durée du pulse laser, celui-ci ne peut alors pas accumuler toute l'énergie fournie par l'impulsion.

### 5.8.2 Comparaison entre les cristaux de KTP et RTP

Nous avons réalisé une étude similaire sur les cristaux de RTP [173]. Nous comparons alors les courbes d'endommagement laser des cristaux de KTP et RTP obtenues dans les différentes directions d'irradiation et de polarisation (cf. figure 5.24).

D'après la figure 5.24, les cristaux de KTP et RTP présentent une tenue au flux laser très similaire pour les différentes directions d'irradiation et de polarisation. Aucune dépendance du seuil d'endommagement du RTP à 1064 nm avec la direction d'irradiation du faisceau n'est donc observée. Par ailleurs, de la même manière que pour les cristaux de KTP, la tenue au flux du RTP en polarisation selon l'axe Z est supérieure à la tenue au flux en polarisation X et Y.

Le même mécanisme de saut d'ions sous l'influence d'un champ électromagnétique que dans le cas du KTP a été observé dans le RTP par Jiang *et al.* [174]. Cependant, ce

mécanisme est plus faible comparé au KTP car la conductivité ionique est environ 100 fois plus faible pour le RTP que pour le KTP [67, 175]. Ce mécanisme proposé permet donc d'expliquer le seuil de tenue au flux plus élevé obtenu dans les cristaux de KTP et RTP pour une polarisation selon l'axe Z.

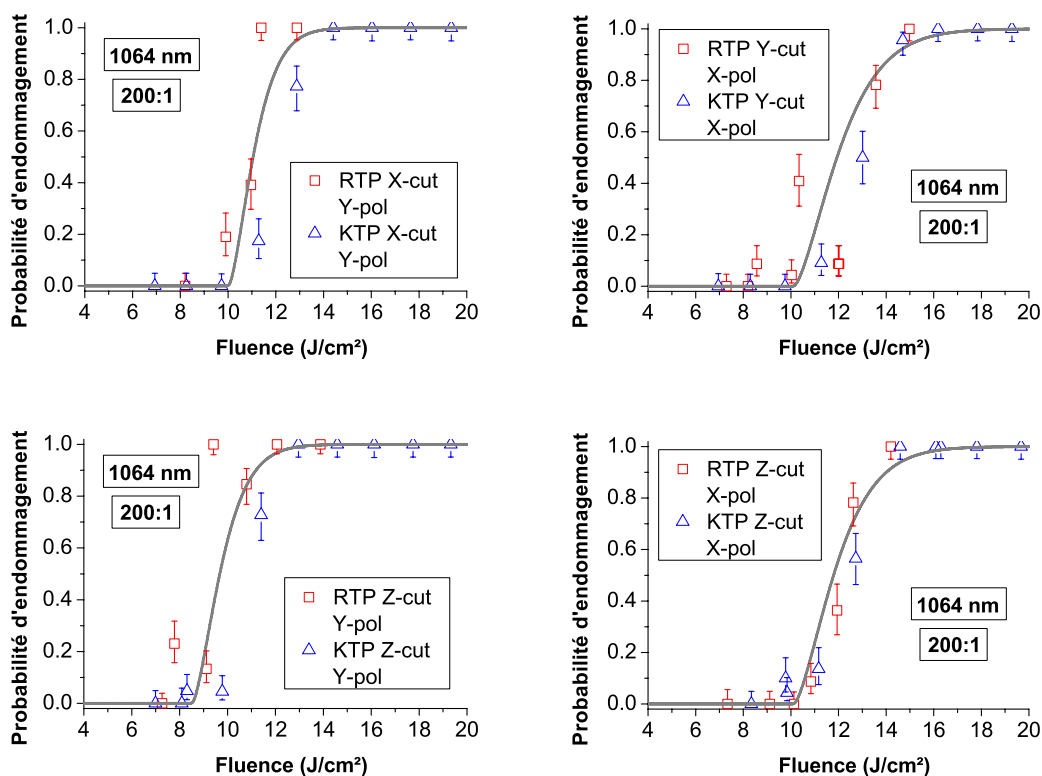


FIG. 5.24 – Comparaison de la tenue au flux laser des cristaux de KTP et RTP à 1064 nm en mode 200-on-1 pour les différentes directions d'irradiation et de polarisation.

## 5.9 Influence du mélange de longueurs d'onde 1064 et 532 nm

La tenue au flux des cristaux de KTP et RTP décroît avec la longueur d'onde d'irradiation laser. Lors de la génération de seconde harmonique, l'onde fondamentale et l'onde de seconde harmonique sont présentes simultanément dans le cristal. Nous nous intéressons alors à l'étude de la tenue au flux de ces cristaux en présence du mélange 1064 et 532 nm.

### 5.9.1 Effet de la génération de seconde harmonique sur l'endommagement du KTP

Le cristal de KTP étant très utilisé pour la génération de seconde harmonique de type II à 1064 nm, nous étudions ici l'endommagement laser de ce cristal dans les conditions fonctionnelles d'utilisation : la direction d'irradiation est selon l'axe SHG et le faisceau incident à 1064 nm est polarisé à 45° de l'axe Z (cf. section 2.2.1.4). Les mesures sont réalisées en faisceau quasi-parallèle (diamètre 75  $\mu\text{m}$ ) sous irradiation multiple (mode 200-on-1).

Dans cette configuration de test, l'efficacité de doublage mesurée en sortie du cristal de 10 mm de long est de 20 %. La figure 5.25 compare la courbe d'endommagement laser obtenue dans la configuration de SHG aux courbes d'endommagement sous irradiation à 1064 et 532 nm en polarisation perpendiculaire à l'axe Z. Notons que pour ces dernières, aucune conversion de fréquence n'est observée expérimentalement. Dans le cas de l'irradiation à 1064 nm en polarisation perpendiculaire à Z, l'absence de génération de seconde harmonique est confirmée par la valeur très élevée du désaccord de phase dans cette configuration ( $\Delta k = 1,7 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-1}$ ) calculé à l'aide des formules de Sellmeier (cf. tableau A.2).

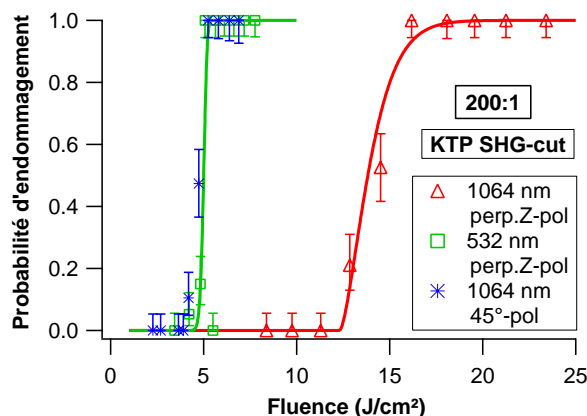


FIG. 5.25 – Courbes d'endommagement laser en mode 200-on-1 dans le cristal de KTP SHG-cut : influence de la génération de seconde harmonique.

Nous observons d'après la figure 5.25 que le seuil d'endommagement laser du KTP en configuration de SHG est très faible (4 J/cm<sup>2</sup>) par rapport à celui obtenu sous irradiation à 1064 nm uniquement (12 J/cm<sup>2</sup>). Il est en particulier légèrement plus faible que le seuil à 532 nm uniquement.

Afin de comparer les courbes obtenues sous irradiation à 1064 nm, il nous faut tenir compte de l'influence de la polarisation sur la tenue au flux laser (cf. section 5.8). En configuration de SHG, la polarisation du faisceau incident est à 45° de l'axe Z, le champ électrique se décompose alors une moitié selon l'axe Z et l'autre moitié selon la direction

perpendiculaire à Z. Or nous avons montré précédemment que le seuil de tenue au flux à 1064 nm ne dépend pas de la direction de coupe et est supérieur à  $50 \text{ J/cm}^2$  en polarisation Z (cf. section 5.8). Par ailleurs, d'après la figure 5.25, le seuil du KTP SHG-cut en polarisation perpendiculaire à Z est de  $12 \text{ J/cm}^2$ . La valeur attendue du seuil sans SHG en polarisation à  $45^\circ$  de l'axe Z devrait donc être supérieure à  $12 \text{ J/cm}^2$ , alors que le seuil mesuré est seulement de  $4 \text{ J/cm}^2$ .

Cette très faible résistance au flux laser du cristal en configuration de SHG peut s'expliquer par la génération de 532 nm. Le seuil de tenue au flux à 532 nm est en effet plus faible qu'à 1064 nm. En outre, la tenue au flux en configuration de SHG avec 20 % seulement de SHG présente une tenue au flux laser légèrement plus faible qu'à 532 nm uniquement (cf. figure 5.25). Cette observation semble donc indiquer que la présence du mélange de 1064 + 532 nm est plus critique que la présence de 532 nm uniquement.

Pour confirmer cette observation, nous déterminons le seuil d'endommagement laser du KTP pour différentes proportions de 532 nm par rapport au 1064 nm dans un KTP coupé pour la SHG de type II. Les différents ratios sont obtenus en tournant la polarisation du faisceau incident pour faire varier le rendement de conversion. Pour être perturbé le moins possible par le seuil d'endommagement plus élevé en polarisation Z, nous placerons aussi éloigné que possible de la polarisation Z<sup>3</sup>. Nous considérerons que l'influence de la polarisation Z est négligeable devant l'effet de la SHG.

Pour chaque configuration de polarisation incidente, le rendement de conversion est mesuré pour des fluences croissantes du faisceau infrarouge incident jusqu'à endommagement du matériau. Le rendement de SHG est défini ici comme le ratio de l'intensité du 532 nm sortant par rapport à l'infrarouge entrant. Ces deux valeurs ont été corrigées par rapport aux réflexions de Fresnel. La figure 5.26(a) présente la mesure du rendement de SHG en fonction de la fluence incidente pour deux configurations de polarisation incidente : en polarisation à  $45^\circ$  de l'axe Z et en polarisation proche de la direction perpendiculaire à Z). La configuration d'accord de phase est toujours respectée mais les intensités des deux ondes fondamentales sont déséquilibrées. Dans ces cas, l'intensité de la SHG augmente sans oscillations dans le cristal (cf. section 4.4). Le seuil d'endommagement pour cette mesure non-automatisée est donc déterminé par une méthode se rapprochant du mode R-on-1. Il est défini par la fluence mesurée juste avant endommagement du site irradié. Pour chaque configuration de polarisation, le seuil d'endommagement est obtenu à une proportion de 532/1064 nm donnée.

L'évolution du seuil de tenue au flux laser du KTP ainsi obtenu peut alors être représenté en fonction du rendement de SHG (figure 5.26(b)).

---

<sup>3</sup> La polarisation incidente parcourt  $45^\circ$  entre la polarisation perpendiculaire à Z et la polarisation à  $45^\circ$  de l'axe Z.



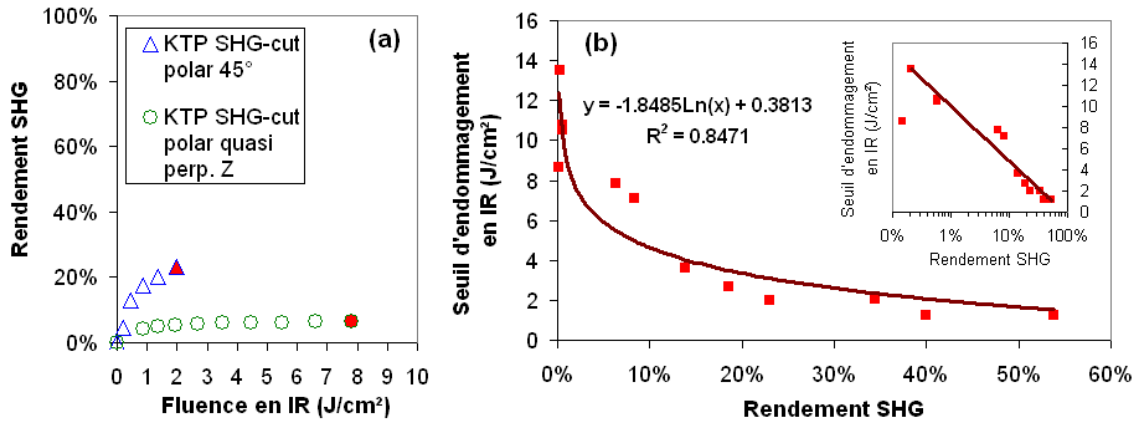


FIG. 5.26 – (a) Rendement de SHG en fonction de la fluence incidente à 1064 nm dans le KTP. (b) Evolution du seuil de tenue au flux laser du KTP en fonction du rendement de SHG.

Nous observons que le seuil d'endommagement décroît lorsque le rendement de SHG augmente jusqu'à atteindre une valeur de  $1,5 \text{ J/cm}^2$  à un rendement de 50 % environ. Nous remarquons que le seuil de tenue au flux mesuré pour des rendements SHG importants est très inférieur à celui obtenu dans le cas d'irradiation unique à 532 nm.

En 2003, Favre *et al.* ont obtenu un résultat similaire en régime microseconde sans pour autant pouvoir donner une valeur de seuil d'endommagement pour l'irradiation à 532 nm seulement [176]. Ils ont proposé une explication reposant sur un mécanisme coopératif d'initiation de l'endommagement laser impliquant les deux longueurs d'onde. Pendant l'irradiation laser, le faisceau de seconde harmonique génère des centres colorés. Ces centres absorbent alors efficacement l'irradiation infrarouge, conduisant à un échauffement local du matériau menant à un endommagement. Un tel mécanisme d'endommagement peut permettre d'expliquer nos résultats en régime nanoseconde.

Remarquons que dans les cristaux de KDP, des travaux montrent que l'endommagement sous irradiation multi-longueur d'onde (1064, 532 et 355 nm) est le résultat d'un processus coopératif des deux longueurs d'onde 532 et 355 nm, le rôle du 1064 nm semblerait négligeable [32, 177]. Dans le cas du KTP, nous avons pu quantifier un processus beaucoup plus coopératif que pour le KDP, pour lequel DeMange *et al.* ont observé que la tenue au flux laser en présence du mélange 532 + 355 nm est comprise entre celles aux deux longueurs d'onde seules.

### 5.9.2 Application au cas de la cellule de Pockels en RTP

Nous présentons ici l'étude fonctionnelle de l'endommagement laser à 1064 nm du cristal de RTP en configuration de cellule de Pockels. Pour le fonctionnement en cellule électro-optique, deux orientations de coupe du cristal sont possibles : X-cut et Y-cut. Dans les deux cas, la polarisation d'entrée doit être à  $45^\circ$  par rapport à l'axe Z. Nous comparons la tenue au flux laser du cristal dans ces deux configurations. Pour être proche des conditions d'utilisation, les mesures sont réalisées en faisceau quasi-parallèle (diamètre  $75 \mu\text{m}$ ) sous irradiation multiple (mode 200-on-1).

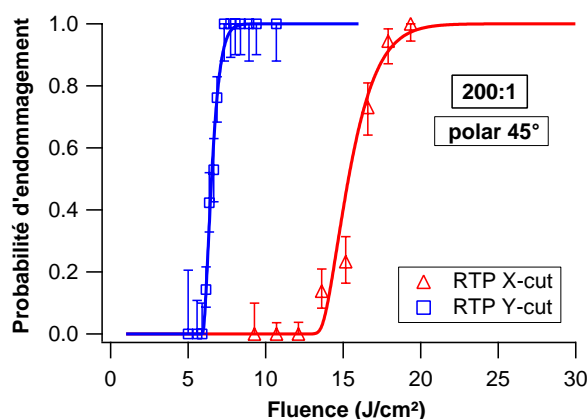


FIG. 5.27 – Courbes d'endommagement laser à 1064 nm en mode 200-on-1 du RTP en configuration de cellule de Pockels : X-cut et Y-cut. La polarisation du faisceau incident est à  $45^\circ$  de l'axe Z.

La comparaison des courbes de tenue au flux laser obtenues (cf. figure 5.27) révèle un seuil d'endommagement deux fois plus élevé pour le RTP X-cut ( $12 \text{ J/cm}^2$ ) que pour le RTP Y-cut ( $6 \text{ J/cm}^2$ ). Remarquons que cette différence ne provient a priori pas d'un effet d'anisotropie. En effet, les différences entre les configurations RTP X-cut et Y-cut en polarisation à  $45^\circ$  de l'axe Z sont la direction d'irradiation selon X et Y et la polarisation dont la moitié est selon Y et Z respectivement. Or aucune anisotropie de la tenue au flux laser n'a été observée entre ces deux axes.

L'explication la plus probable pour le faible seuil d'endommagement observé pour le RTP Y-cut repose sur la présence de la génération de seconde harmonique. En effet, malgré une configuration de désaccord de phase, le 532 nm généré lors de l'irradiation est non négligeable et un filtre le coupant doit être placé devant la caméra CCD pour ne pas l'endommager. Cependant, le rendement de conversion est trop faible pour être mesuré avec notre détecteur pyroélectrique. Par ailleurs, en désaccord de phase, l'intensité de SHG en sortie du cristal n'est pas nécessairement l'intensité maximale générée à l'intérieur. Ainsi,

afin d'estimer l'intensité maximale de SHG, nous pouvons calculer le désaccord de phase  $\Delta k$  pour la SHG dans les deux configurations à l'aide des formules de Sellmeier [178] (cf. tableau A.4). Le calcul montre que les conditions d'accord de phase sont plus proches pour le RTP Y-cut ( $\Delta k = 300 \text{ cm}^{-1}$ ) que le RTP X-cut ( $\Delta k = 710 \text{ cm}^{-1}$ ). L'intensité maximale de SHG calculée est alors environ 5,8 fois plus élevée pour le cristal Y-cut que X-cut. Comme nous l'avons montré précédemment dans le cristal de KTP, nous pouvons supposer le même mécanisme coopératif dans le cristal de RTP expliquant la plus faible tenue au flux laser observée en présence de SHG.

D'un point de vue applicatif pour le fonctionnement en cellule de Pockels, l'avantage du RTP X-cut est de présenter un seuil de tenue flux laser deux fois supérieur à celui du RTP Y-cut. En revanche, dans ce cas, la tension de fonctionnement est 30 % plus élevée que pour le RTP Y-cut. Ainsi, pour des applications de puissance où une tension élevée ne présente pas de problème, le choix se portera donc de préférence sur le RTP X-cut.

## 5.10 Conclusion

Les cristaux de KTP et RTP sont utilisés principalement pour la génération de seconde harmonique (SHG) des lasers Nd:YAG et les applications en cellule électro-optique. L'inconvénient majeur de ces cristaux est leur susceptibilité au gray-track qui limite leur résistance au flux laser. Présentant des propriétés physiques très similaires, nous avons montré que le comportement de ces deux cristaux en terme de tenue au flux laser est complètement identique. Sous irradiation en faisceau parallèle, le point faible de ces composants est leur tenue au flux en volume. Selon la taille du faisceau de test utilisé, nous avons observé que des endommagements par autofocalisation peuvent apparaître.

Nous avons réalisé une étude de la tenue au flux laser à 1064 nm en surface du KTP. Pour le composant étudié, nous avons montré que le seuil d'endommagement semble être limité par le polissage et non par le traitement antireflet. D'après les résultats obtenus, nous avons pu supposer que des particules de diamant issus du liquide de polissage se trouvent en surface du cristal et sont responsables de l'endommagement laser. La modification du procédé de polissage à cette étape pourrait alors éventuellement permettre d'améliorer la résistance au flux laser de la surface du cristal.

Selon les procédés de croissance cristalline, des défauts tels que des inclusions, impuretés, secteurs de pousse, dislocations, peuvent apparaître dans les cristaux et engendrer des propriétés optiques et mécaniques (absorption, conductivité, résistance mécanique) très différentes. Nous avons donc étudié l'influence de ces paramètres sur la tenue au flux laser à 1064 nm du RTP. Aucune corrélation n'a été établie entre le niveau d'absorption moyen et le seuil d'endommagement laser du cristal. Ceci a été obtenu pour de faibles niveaux d'absorption macroscopique et pour une différence d'absorption d'un facteur 2. A cette échelle d'observation, l'absorption moyenne ne semble donc pas constituer un paramètre

déterminant dans la tenue au flux laser du cristal. En revanche, il est possible qu'un effet sur la tenue au flux soit observé pour des cristaux de moins bonne qualité présentant des niveaux d'absorption plus élevés. Par ailleurs, nous avons montré sur des cristaux issus de différents procédés de croissance que la conductivité ionique et la qualité optique (secteurs de croissance, inclusions, stries) ne semblent pas modifier la tenue au flux laser du RTP. En revanche, ces paramètres demeurent importants d'un point de vue du fonctionnement du cristal.

Une étude multi-paramètres (longueur d'onde, nombre de tirs, direction d'irradiation, polarisation) de la tenue au flux en volume des cristaux de KTP et RTP a été menée. Nous avons constaté que seuil d'endommagement et le comportement de fatigue du cristal dépendent significativement de la longueur d'onde d'irradiation. En effet, le seuil d'endommagement en mode 1-on-1 est plus faible à 532 nm ( $7 \text{ J/cm}^2$ ) qu'à 1064 nm ( $18 \text{ J/cm}^2$ ) et la densité de précurseurs responsables de l'endommagement est proche d'une dizaine de défauts par  $\text{mm}^3$  à 1064 nm et d'une centaine de défauts par  $\text{mm}^3$  à 532 nm. D'autre part, nous avons montré un important effet de fatigue à 1064 nm : après 10 000 tirs, le seuil d'endommagement laser est deux fois plus faible que celui mesuré après un seul tir. En revanche, la quasi-stabilisation du seuil après seulement quelques dizaines de tirs est particulièrement intéressant pour l'utilisation fonctionnelle des composants. Par ailleurs, aucun effet de fatigue n'est observé à 532 nm. Ce résultat est d'autant plus intéressant que la tenue au flux laser à 532 nm est plus critique qu'à 1064 nm.

La morphologie des endommagements dans ces cristaux présente deux directions privilégiées de clivage selon les axes cristallins. Pour des fluences élevées et selon la taille du faisceau d'irradiation, un halo de micro-fractures apparaît résultant vraisemblablement de l'existence de contraintes engendrées lors de la création du dommage.

Sous irradiation laser à 1064 ou 532 nm, les cristaux de KTP et RTP sont significativement plus résistants au flux laser lorsque la polarisation du faisceau incident est dirigée selon l'axe Z. Cette anisotropie du seuil de tenue au flux peut être expliquée par un mécanisme reposant sur la stabilité de centres colorés. Lors de l'irradiation laser, la création d'une paire électron-trou peut être suivie du piégeage des trous par les ions  $\text{Fe}^{3+}$ , impuretés présentes dans le cristal, et des électrons par les ions  $\text{Ti}^{4+}$  qui sont adjacents à un oxygène. Ces centres colorés générés sont stables près des lacunes en ions  $\text{K}^+$ . Ils peuvent être responsables de l'endommagement laser par l'augmentation de l'absorption de la lumière infrarouge. Lorsque le faisceau laser se propage à l'intérieur du cristal, le champ électrique interagit avec les charges dans le cristal. Si la polarisation du faisceau est selon l'axe Z, les ions  $\text{K}^+$  peuvent se déplacer par un mécanisme de saut d'ions, car la barrière énergétique est très faible dans cette direction. Ainsi, l'arrivée d'un ion sur une lacune vient déstabiliser le centre coloré qui va disparaître. Ce phénomène entraîne une décroissance de la durée de vie des centres colorés et diminue donc la probabilité d'initiation de l'endommagement.

Lors de la génération de seconde harmonique des cristaux de KTP, la tenue au flux

laser est plus faible que dans le cas de l'irradiation en infrarouge uniquement. Dans notre configuration de mesures, nous constatons que le seuil obtenu en présence du mélange 1064 + 532 nm est plus faible que ceux aux deux longueurs d'onde seules. Cette observation met donc en évidence un mécanisme fortement coopératif reposant sur l'action simultanée des deux longueurs d'onde. Pendant l'irradiation laser, le faisceau de seconde harmonique génère des centres colorés qui absorbent alors efficacement l'irradiation infrarouge, conduisant à un échauffement local du matériau pouvant mener à un endommagement.

Pour le fonctionnement en cellule de Pockels, nous avons montré que le RTP X-cut présente une résistance au flux laser deux fois plus grande que le Y-cut, dont la différence peut s'expliquer par la présence de génération "parasite" de seconde harmonique. Cette étude fonctionnelle a donc mis en évidence que le seuil d'endommagement est dépendant de l'utilisation du composant.

# Chapitre 6

## Étude de l'endommagement laser du LBO : cas d'un cristal à très haute tenue au flux

### Sommaire

---

|            |  |            |
|------------|--|------------|
| <b>6.1</b> | <b>Contexte de l'étude</b>   | <b>138</b> |
| 6.1.1      | État de l'art sur l'effet des défauts présents dans le cristal       | 138        |
| 6.1.2      | Expériences préliminaires  | 139        |
| <b>6.2</b> | <b>Influence de la longueur d'onde sur la tenue au flux</b>          | <b>140</b> |
| 6.2.1      | Analyse des courbes d'endommagement laser                            | 140        |
| 6.2.2      | Morphologie des endommagements                                       | 142        |
| <b>6.3</b> | <b>Évolution de la tenue au flux laser sous irradiation multiple</b> | <b>143</b> |
| <b>6.4</b> | <b>Effet de la polarisation et de la direction d'irradiation</b>     | <b>146</b> |
| 6.4.1      | Résultats à 1064 nm  | 146        |
| 6.4.2      | Résultats à 532 nm   | 149        |
| 6.4.3      | Résultats à 355 nm   | 150        |
| 6.4.4      | Bilan sur l'anisotropie  | 153        |
| <b>6.5</b> | <b>Cas de la génération de seconde harmonique</b>                    | <b>154</b> |
| <b>6.6</b> | <b>Conclusion</b>  | <b>156</b> |

---

## 6.1 Contexte de l'étude

Le cristal de  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  ou LBO présente une excellente tenue au flux laser. Généralement, son seuil d'endommagement à 1064 nm en volume est plus élevé que celui de la silice synthétique. Cette caractéristique en fait un matériau de choix pour des applications sous fort flux laser, notamment pour la génération de seconde (SHG) et de troisième harmonique (THG) des lasers Nd:YAG. Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à l'étude de la tenue au flux de ce cristal par une approche systématique multi-paramètres, toujours dans le but de mieux comprendre les mécanismes conduisant à l'endommagement.

### 6.1.1 État de l'art sur l'effet des défauts présents dans le cristal

Le phénomène d'endommagement laser dans le LBO a fait l'objet de seulement quelques études. En 1994, Nikogosyan [81] répertorie des valeurs de seuil d'endommagement du LBO issues de la littérature, mettant en évidence un seuil d'endommagement particulièrement élevé.

Dans la même année, Furukawa *et al.* [179] ont réalisé une étude détaillée sur la tenue au flux laser du LBO. Leurs résultats montrent que la tenue au flux du cristal à 1064 nm est indépendante de la zone de prélèvement dans la "boule" de croissance (proche du germe, au centre ou en bas de la "boule"). Notons que les cristaux testés étaient tous de bonne qualité, ne présentant ni inclusions, ni stries ni centres diffusants. En outre, ils ont mesuré un niveau d'impuretés en ions métalliques inférieur à 0,1 ppm (limite détectable de leur dispositif). Cette très faible présence d'impuretés peut être expliquée par la structure du cristal, présentant très peu de sites accepteurs d'impuretés [78]. Cette qualité du cristal contribue vraisemblablement à la très haute tenue au flux observée.

Cependant, sous forte irradiation UV, des bandes d'absorption transitoires allant de 200 à 400 nm ont été mises en évidence par Hong *et al.* [180]. Ce phénomène peut conduire à un endommagement. Hong *et al.* ont également pu identifier la présence de centres pièges pouvant être responsables de l'apparition de ces bandes d'absorption. Ces centres pièges de nature intrinsèque ne peuvent pas être éliminés, en revanche, leur nombre peut être limité en minimisant les lacunes en oxygène.

D'autre part, la croissance du LBO à partir de flux  $\text{B}_2\text{O}_3$  (cf. section 2.3.1.2) a l'inconvénient de présenter une forte viscosité (paramètre défavorable à la croissance). L'incorporation de NaCl permet de diminuer cette viscosité de la solution  $\text{B}_2\text{O}_3$ . Cependant, l'incorporation des ions  $\text{Na}^+$  dans la matrice du cristal engendre des contraintes élevées. En effet, Kim *et al.* [181] ont montré qu'au delà de 250 ppm d'ions  $\text{Na}^+$  dans le cristal, les contraintes induites provoquent la diminution du seuil d'endommagement d'environ 30 %.

Nous pouvons retenir malgré les quelques restrictions observées sur ces études que le LBO constitue au regard de la tenue au flux laser un matériau de haute qualité, présentant

très peu de défauts et un niveau d'absorption plus faible que celui du KTP (cf. tableau 2.2).

### 6.1.2 Expériences préliminaires

Le manque de données sur ce matériau nous a conduit à mener une étude préliminaire sur la tenue au flux afin de mettre en évidence d'éventuels points critiques. Notons que l'ensemble des cristaux testés dans ce chapitre ne possède pas de traitements optiques sur les faces.

Lors de l'irradiation en faisceau parallèle à 1064 nm d'un cristal de LBO, des endommagements apparaissent en face arrière à des fluences supérieures à 60 J/cm<sup>2</sup>. Pour des fluences plus élevées (supérieures à 150 J/cm<sup>2</sup>), le volume commence également à casser. Le LBO présente donc clairement une meilleure tenue au flux à 1064 nm en volume qu'en surface. En revanche, à 355 nm, les endommagements apparaissent en volume à un seuil autour de 20 J/cm<sup>2</sup>, mettant cette fois en évidence une plus faible tenue au flux du volume que de la surface. Au regard des valeurs de tenue au flux obtenues, le point critique du cristal semble donc être la tenue au flux du volume dans l'UV.

Nous pouvons toutefois remarquer que dans certaines configurations d'utilisation, des endommagements sous irradiation UV peuvent également apparaître en surface. En effet, lors de la génération de 355 nm en longue durée (> 500 h à 20 kHz) en régime nanoseconde, Möller *et al.* [182] ont récemment montré l'apparition d'endommagements en surface. Un mécanisme en deux étapes est proposé. Tout d'abord, par l'excitation du LBO sous irradiation UV, il se forme une couche amorphe de SiO<sub>2</sub> grâce à l'oxygène de l'atmosphère ambiant et du silicium provenant de l'installation. Dans un second temps, cette couche absorbante va conduire à un endommagement caractérisé par l'ablation de la couche déposée et la formation d'un cratère en surface.

Dans ce chapitre, une approche systématique multi-paramètres de la tenue au flux en volume du LBO sera réalisée. Pour cela, la répétabilité des mesures entre deux cristaux différents est indispensable, quelque soit la localisation de l'échantillon dans la boule de croissance. Ceci a été vérifié expérimentalement (cf. section 3.4.2) et est en accord avec la littérature [179].

Les tests seront réalisés avec un faisceau suffisamment focalisé pour pouvoir réaliser une étude volumique aux différentes longueurs d'onde d'irradiation sans endommager les surfaces et suffisamment parallèle afin de ne pas être perturbé par les effets d'aberrations (voir chapitre 4). Par ailleurs, le calcul de la puissance critique nécessaire à l'autofocalisation dans le LBO ( $P_c = 5,4$  MW à 1064 nm) donne une valeur légèrement supérieure à celle de la silice ( $P_c = 3,1$  MW à 1064 nm). Aucun effet d'autofocalisation n'est donc attendu ici. Le faisceau de test ainsi défini a un diamètre proche de 25  $\mu\text{m}$  pour les trois longueurs d'onde d'intérêt : 1064, 532 et 355 nm. La caractérisation de ce faisceau est présentée à



532 nm dans le paragraphe 3.3.3.4. Afin de valider l'utilisation de ce faisceau, son profil spatial a été observé dans le cristal pour les différentes configurations de test. Le profil obtenu est identique à celui mesuré dans l'air, mettant en évidence l'absence d'aberrations et de walk-off. En outre, un test R-on-1 dans deux profondeurs différentes du cristal (2 et 3 mm, cristal de 5 mm d'épaisseur) a permis de vérifier que le seuil de tenue au flux est indépendant de la profondeur de focalisation et donc de confirmer l'absence d'aberrations (cf. chapitre 4).

## 6.2 Influence de la longueur d'onde sur la tenue au flux

Afin d'étudier l'influence de la longueur d'onde sur l'endommagement du LBO, nous avons choisi de limiter le nombre de paramètres à considérer. Ainsi, nous nous plaçons dans une configuration ne faisant intervenir aucun mécanisme de conversion de fréquence. Ce dernier fera l'objet d'une étude en section 6.5. Nous choisissons alors un cristal coupé selon l'axe X (X-cut) et nous définissons la polarisation selon l'axe Y (Y-pol).

### 6.2.1 Analyse des courbes d'endommagement laser

Les courbes de tenue au flux laser obtenues en mode 1-on-1 aux longueurs d'onde 1064, 532 et 355 nm sont représentées sur la figure 6.1. Les seuils d'endommagement sont reportés dans le tableau 6.1.

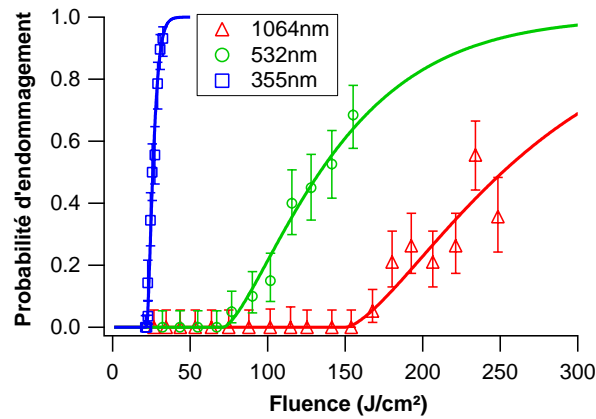


FIG. 6.1 – Courbes de tenue au flux laser du LBO (X-cut, Y-pol) en mode 1-on-1 aux longueurs d'onde 1064, 532 et 355 nm, faisceau focalisé en volume (diamètre  $24 \mu\text{m}$ ).

Nous constatons que le cristal de LBO présente une excellente tenue au flux laser. Le seuil d'endommagement à 1064 nm du LBO est 1,5 fois plus élevé que celui de la silice Suprasil, déjà considérée comme un matériau à haute tenue au flux laser (voir section

3.4.1). Cette constatation est parfaitement confirmée par la littérature. Furukawa *et al.* [179] ont obtenu un seuil 1,8 fois supérieur à celui de la silice et plus récemment, Yoshida *et al.* [160, 161] ont mesuré un facteur de 1,5, en accord avec nos résultats.

Par ailleurs, il apparaît clairement une décroissance du seuil d'endommagement du LBO lorsque la longueur d'onde diminue, comme sur la silice. Nous constatons qu'à 532 nm, le LBO tient légèrement moins bien au flux laser que la silice pour cette même longueur d'onde. Enfin, à 355 nm, le seuil du cristal est 2 fois plus faible que celui de la silice.

Cette décroissance avec la longueur d'onde d'irradiation a également été observée par Yoshida *et al.* [160, 161] à des durées d'impulsion autour de 1 ns, par rapport à environ 7 ns dans notre cas. Afin de comparer nos valeurs de seuils d'endommagement avec celles issues de l'étude de Yoshida *et al.*, il faut donc tenir compte de la différence des durées d'impulsion. Nous avons vu dans le paragraphe 3.3.3.3 qu'en régime nanoseconde, l'effet de la durée d'impulsion sur le seuil d'endommagement suit généralement une loi d'échelle empirique en  $\sqrt{\tau}$  [34]. Furukawa *et al.* ont observé dans le LBO une décroissance en accord avec cette loi entre les seuils à 1064 nm mesurés à 1,1 ns et 25 ns. Cette loi en  $\sqrt{\tau}$  paraît donc applicable dans le cas du LBO (extrapolation aux longueurs d'onde de 532 et 355 nm). Nous utilisons alors cette loi d'échelle pour ramener les valeurs mesurées par Yoshida *et al.* à nos durées d'impulsion. Nous obtenons les résultats présentés dans le tableau 6.1. Les seuils observés entre l'étude de Yoshida *et al.* et la notre se situent dans le même ordre de grandeur. Les différences que nous pouvons toutefois remarquer peuvent s'expliquer par des fournisseurs de cristaux différents. Les précurseurs responsables de l'endommagement ne seraient pas les mêmes entre les deux types de LBO.

|                                   |                       |                      |                      |
|-----------------------------------|-----------------------|----------------------|----------------------|
| Longueurs d'onde                  | 1064 nm               | 532 nm               | 355 nm               |
| Durées d'impulsion                | 8 ns                  | 6,5 ns               | 5,8 ns               |
| Seuils 1-on-1 mesurés             | 155 J/cm <sup>2</sup> | 74 J/cm <sup>2</sup> | 22 J/cm <sup>2</sup> |
| Seuils 1-on-1 issus de [160, 161] | 116 J/cm <sup>2</sup> | 64 J/cm <sup>2</sup> | 42 J/cm <sup>2</sup> |

TAB. 6.1 – Seuils d'endommagement du LBO X-cut obtenus aux différentes longueurs d'onde. Comparaison avec les valeurs issues de l'étude de Yoshida *et al.* [160, 161] ramenées à nos durées d'impulsion (loi en  $\sqrt{\tau}$ ).

D'après les courbes de tenue au flux laser (cf. figure 6.1), nous pouvons extraire la densité de précurseurs responsables de l'endommagement du cristal pour chaque longueur d'onde. Notons que l'ordre de grandeur des densités obtenues pour la configuration de test X-cut, Y-pol a été retrouvé dans l'ensemble des directions d'irradiation et polarisations effectuées en section 6.4. Les moyennes alors obtenues sont reportées dans le tableau 6.2.

Pour les longueurs d'onde de 1064 nm et 355 nm, les densités de précurseurs obtenues sont pratiquement identiques (12 000 et 11 000 précurseurs/mm<sup>3</sup> respectivement). Il est

donc probable que les mêmes types de précurseurs soient responsables de l'endommagement à ces deux longueurs d'onde. La différence des seuils de claquage de ces défauts à 1064 et 355 nm peut s'expliquer par une différence d'absorption entre ces deux longueurs d'onde ou par un mécanisme d'initiation plus efficace à 355 nm qu'à 1064 nm.

En revanche, à 532 nm, la densité de précurseurs obtenue est plus faible (3 000 précurseurs par  $\text{mm}^3$ ) qu'à 1064 et 355 nm. Nous identifions ici une autre classe de précurseurs présente en plus faible densité et étant pénalisante à cette longueur d'onde.

| Longueur d'onde                          | 1064 nm | 532 nm | 355 nm |
|--|---------|--------|--------|
| Densité de précurseurs par $\text{mm}^3$ | 12 000  | 3 000  | 11 000 |

TAB. 6.2 – Densités de précurseurs dans le LBO pour les différentes longueurs d'onde. Moyennes obtenues sur l'ensemble des directions d'irradiation et polarisations à chaque longueur d'onde.

### 6.2.2 Morphologie des endommagements

Comme généralement observée dans les cristaux, la morphologie des endommagements dans le LBO révèle des directions de cassure privilégiées. La figure 6.2 montre les dommages obtenus aux différentes longueurs d'onde dans un cristal de LBO X-cut. La morphologie est similaire pour les trois longueurs d'onde. Le clivage se fait selon trois axes : deux axes qui ne sont pas parallèles aux axes cristallins et une fissure plus fine selon l'axe Y. Contrairement aux cristaux de KTP et RTP (cf. section 5.5), les endommagements apparaissant dans le LBO montrent que les cassures ne se font pas nécessairement selon les axes cristallins.

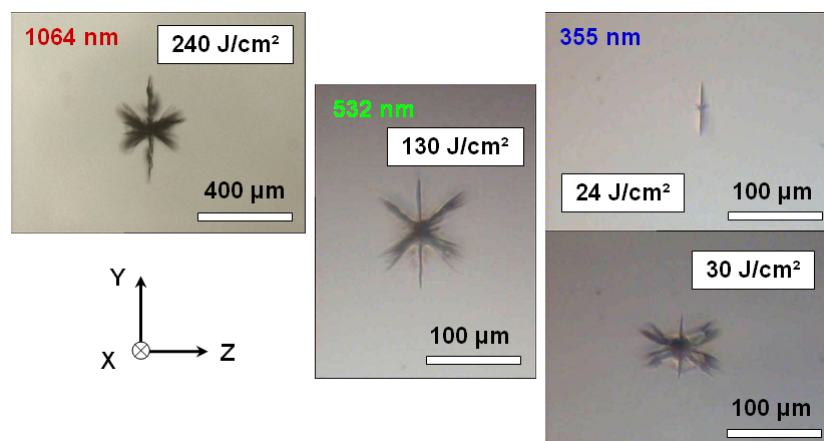


FIG. 6.2 – Morphologie des endommagements laser dans le LBO (X-cut, Y-pol) obtenus en mode 1-on-1 à 1064, 532 et 355 nm.

Furukawa *et al.* [179] et Yoshida *et al.* [161] ont observé exactement la même morphologie d'endommagement dans le LBO. Furukawa *et al.* ont supposé que cette morphologie reflète les deux axes de symétrie de rotation de la structure mm2 du cristal. Cependant, si on compare, les cristaux de LBO et de KTP, la morphologie des dommages diffère, alors que leur structure cristallographique est exactement la même (orthorhombique, groupe d'espace  $Pna2_1$ , et groupe de point mm2). Ainsi, contrairement à l'hypothèse émise par Furukawa *et al.* au vu de la comparaison entre les cristaux de LBO et KTP, la symétrie de la structure du cristal ne permet en général pas d'expliquer la morphologie observée.

Les directions préférentielles de clivage du LBO résultent vraisemblablement d'une fragilité mécanique de la structure dans ces directions, mais ne sont pas réellement interprétées à ce jour.

La morphologie des endommagements est identique pour les trois longueurs d'onde. En revanche, les dommages obtenus à 1064 nm sont de très grandes dimensions (environ 400  $\mu m$ ), tandis qu'ils sont plus petits à 532 nm (entre 100 et 150  $\mu m$ ) et à 355 nm (entre 50 et 100  $\mu m$ ). La diminution de la taille des dommages avec la longueur d'onde peut sans doute s'expliquer par une plus faible énergie déposée dans le matériau, car les fluences nécessaires pour initier l'endommagement sont moins élevées dans l'UV que dans l'infrarouge. Notons que les endommagements aux trois longueurs d'onde ont été créés avec la même taille de faisceau.

Par ailleurs, à 355 nm, nous arrivons à mettre en évidence à très faible fluence une première étape de l'initiation de l'endommagement qui est difficilement observable aux autres longueurs d'onde du à des fluences mises en jeu plus importantes. Ces dommages font apparaître uniquement un axe de cassure selon l'axe Y, et le début du clivage en croix présent sur les autres dommages est à peine distinguable. Il semblerait donc que la direction Y soit la moins résistante mécaniquement.

## 6.3 Évolution de la tenue au flux laser sous irradiation multiple

Dans le cas d'une étude fonctionnelle, il est intéressant d'évaluer le comportement des cristaux sous irradiation multiple avec un grand nombre de tirs aux différentes longueurs d'onde d'intérêt. Nous réalisons ici une étude de vieillissement du LBO à 1064, 532 et 355 nm avec 10 000 tirs par site.

Les courbes de tenue au flux laser sur la figure 6.3 présentent les données obtenues en mode 1-on-1, 200-on-1 et 10 000-on-1 pour les trois longueurs d'ondes dans le LBO (X-cut, Y-pol). Les seuils d'endommagement sont récapitulés dans le tableau 6.3.

### 6.3. ÉVOLUTION DE LA TENUE AU FLUX LASER SOUS IRRADIATION MULTIPLE

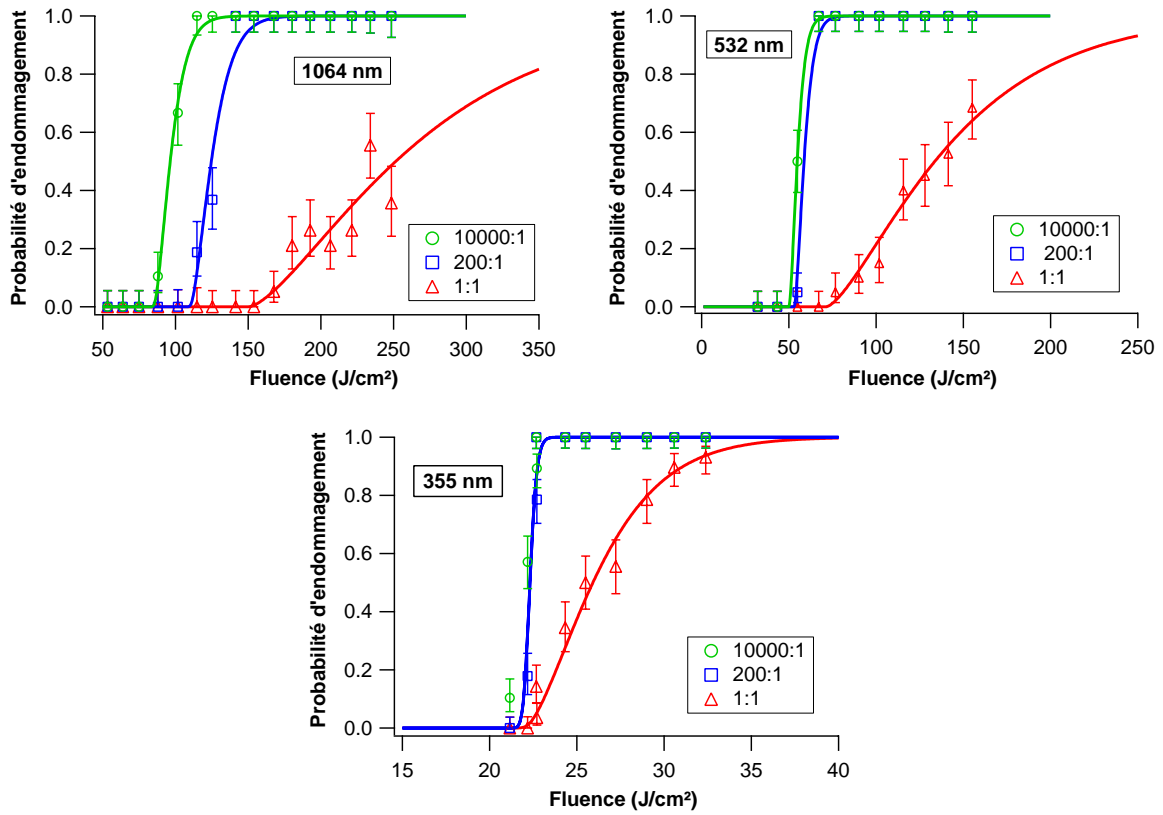


FIG. 6.3 – Courbes d’endommagement laser en volume du LBO (X-cut, Y-pol) à 1064, 532 et 355 nm en mode 1-on-1, 200-on-1 et 10 000-on-1.

| Longueur d’onde   | 1064 nm                 | 532 nm                 | 355 nm                 |
|-------------------|-------------------------|------------------------|------------------------|
| Seuil 1-on-1      | 155,0 J/cm <sup>2</sup> | 74,0 J/cm <sup>2</sup> | 22,1 J/cm <sup>2</sup> |
| Seuil 200-on-1    | 111,0 J/cm <sup>2</sup> | 53,5 J/cm <sup>2</sup> | 21,6 J/cm <sup>2</sup> |
| Seuil 10 000-on-1 | 85,0 J/cm <sup>2</sup>  | 51,5 J/cm <sup>2</sup> | 21,2 J/cm <sup>2</sup> |

TAB. 6.3 – Seuils 1-on-1, 200-on-1 et 10 000-on-1 du LBO (X-cut, Y-pol) à 1064, 532 et 355 nm.

L’ensemble des données S-on-1 avec  $S \leq 10\,000$  sont extraites du test 10 000-on-1 grâce à la procédure détaillée dans le paragraphe 4.2.4. L’évolution du seuil de tenue au flux laser en fonction du nombre de tirs est alors représentée sur la figure 6.4.

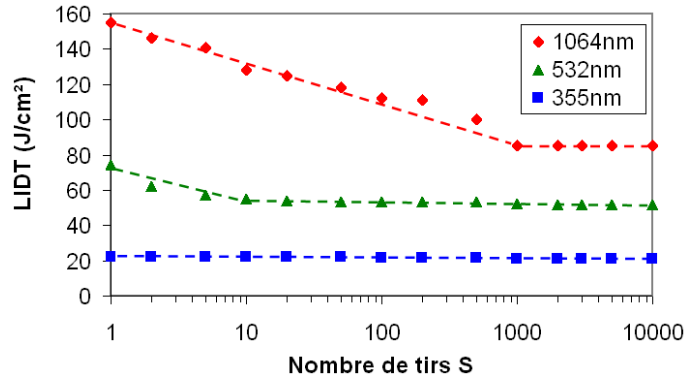


FIG. 6.4 – Évolution du seuil de tenue au flux laser du LBO (X-cut, Y-pol) en fonction du nombre de tirs.

À 1064 nm, nous observons une très forte diminution du seuil d'endommagement avec le nombre de tirs, mettant en évidence un effet de fatigue significatif du matériau à cette longueur d'onde. Deux régions peuvent être distinguées dans l'évolution du seuil en fonction du nombre de tirs (cf. figure 6.4) : Jusqu'à 1 000 tirs, le seuil décroît fortement jusqu'à atteindre une valeur 1,8 fois plus faible que le seuil 1-on-1. Après 1 000 tirs, le seuil reste constant lorsque le nombre de tirs augmente. Le seuil d'endommagement du LBO semble donc être stabilisé après 1 000 tirs à une valeur de 85 J/cm<sup>2</sup>.

À 532 nm, nous observons également un effet de fatigue du cristal. Contrairement à 1064 nm, la décroissance du seuil avec le nombre de tirs est plus faible. Pendant les 10 premiers tirs, le seuil décroît jusqu'à atteindre une valeur 1,4 fois plus faible que le seuil 1-on-1. Puis il se stabilise à une valeur de 51,5 J/cm<sup>2</sup> après seulement 10 tirs.

Enfin, à 355 nm, aucune modification du seuil avec le nombre de tirs n'est observée. Il semble donc qu'il n'y ait pas d'effet de vieillissement du cristal pour cette longueur d'onde. Nous pouvons alors nous demander s'il est possible d'améliorer la tenue au flux du LBO à 355 nm par une pré-irradiation laser à faible fluence (conditionnement laser). Pour voir une éventuelle tendance au conditionnement du cristal, un test R-on-1 à 355 nm est effectué (cf. section 3.1.1.3). Le seuil obtenu (moyenne sur 26 sites irradiés) est identique à celui observé en mode 1-on-1 et S-on-1. Une tendance au conditionnement aurait été mise en avant par un seuil R-on-1 supérieur au seuil en mode 1-on-1. Aucun effet de conditionnement n'a donc été mis en évidence ici pour permettre d'améliorer la résistance au flux du LBO.

Le comportement de fatigue du cristal et le nombre de tirs avant stabilisation dépend de la longueur d'onde d'irradiation. Lorsque la longueur d'onde d'irradiation est courte, nous observons que le seuil d'endommagement en mode 1-on-1 est plus faible, mais que l'effet de fatigue est alors moins prononcé voir absent. Remarquons que ceci est observé de

façon identique sur les cristaux de KTP, RTP et KDP (cf. section 5.7), tandis que concernant la silice (en volume), un important effet de fatigue est constaté aussi bien à 1064 qu'à 355 nm [101]. Dans le cas du LBO, étant donnée que la tenue au flux dans l'UV constitue le point critique du cristal, cette observation est particulièrement intéressante pour une utilisation du composant. Nous pouvons remarquer que dans tous les cas, une stabilisation du seuil apparaît après 1 000 tirs. Ceci nous permet donc de définir un seuil d'utilisation fonctionnelle du cristal pour les trois longueurs d'onde.

L'étude de la tenue au flux du LBO qui suit sera présentée en mode 1-on-1 et S-on-1. Tout comme pour l'étude sur KTP et RTP, nous choisirons  $S=200$ . En effet, au bout de 200 tirs, l'évolution du seuil est stabilisée pour les longueurs d'onde de 532 et 355 nm. En revanche, contrairement aux cristaux de KTP et RTP, la stabilisation pour l'irradiation à 1064 nm n'apparaît qu'après 1 000 tirs. Une étude systématique pour l'ensemble des configurations avec 1 000 tirs par site aurait été plus adaptée mais le temps de test deviendrait alors un paramètre critique. Notons que le seuil 200-on-1 à 1064 nm devrait être divisé d'un facteur 1,3 environ pour représenter le seuil après stabilisation.

## 6.4 Effet de la polarisation et de la direction d'irradiation

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, le LBO est utilisé notamment pour la génération de seconde et de troisième harmonique des lasers Nd:YAG. Nous étudierons donc l'influence de la direction d'irradiation et de la polarisation dans le cas d'un cristal coupé selon un de ses axes cristallins (X-cut) et dans les cas des directions fonctionnelles (SHG et THG) pour lesquelles la direction de propagation est dans le plan (Y, Z) (cf. section 2.2.2.4). Cette étude est réalisée aux trois longueurs d'onde d'utilisation.

### 6.4.1 Résultats à 1064 nm

L'influence de la direction d'irradiation et de la polarisation sur l'endommagement du LBO à 1064 nm a été étudiée par Furukawa *et al.* [179]. Ils ont testé les 6 combinaisons de polarisation et de direction d'irradiation parallèles aux axes cristallins (X, Y et Z) et n'ont constaté aucune différence à leur erreur expérimentale près de 10 %. En revanche, à notre connaissance, aucune étude n'a été effectuée pour les directions fonctionnelles SHG et THG.

Pour chacune des directions de coupe (X, SHG et THG), nous comparons la tenue au flux du cristal pour deux polarisations perpendiculaires entre elles, où une des polarisations testées est toujours parallèle à un axe cristallin. La figure 6.5 présente l'ensemble des courbes d'endommagement ainsi obtenues à 1064 nm en mode 1-on-1 et 200-on-1.

Pour les directions SHG et THG, les courbes d'endommagement comparant deux polarisations (fig.(c) à (f)) sont parfaitement identiques aussi bien en mode 1-on-1 (fig. (c)

et (e)) que 200-on-1 (fig. (d) et (f)). Aucun effet de la polarisation sur la tenue au flux du LBO n'est donc observé pour ces deux directions.

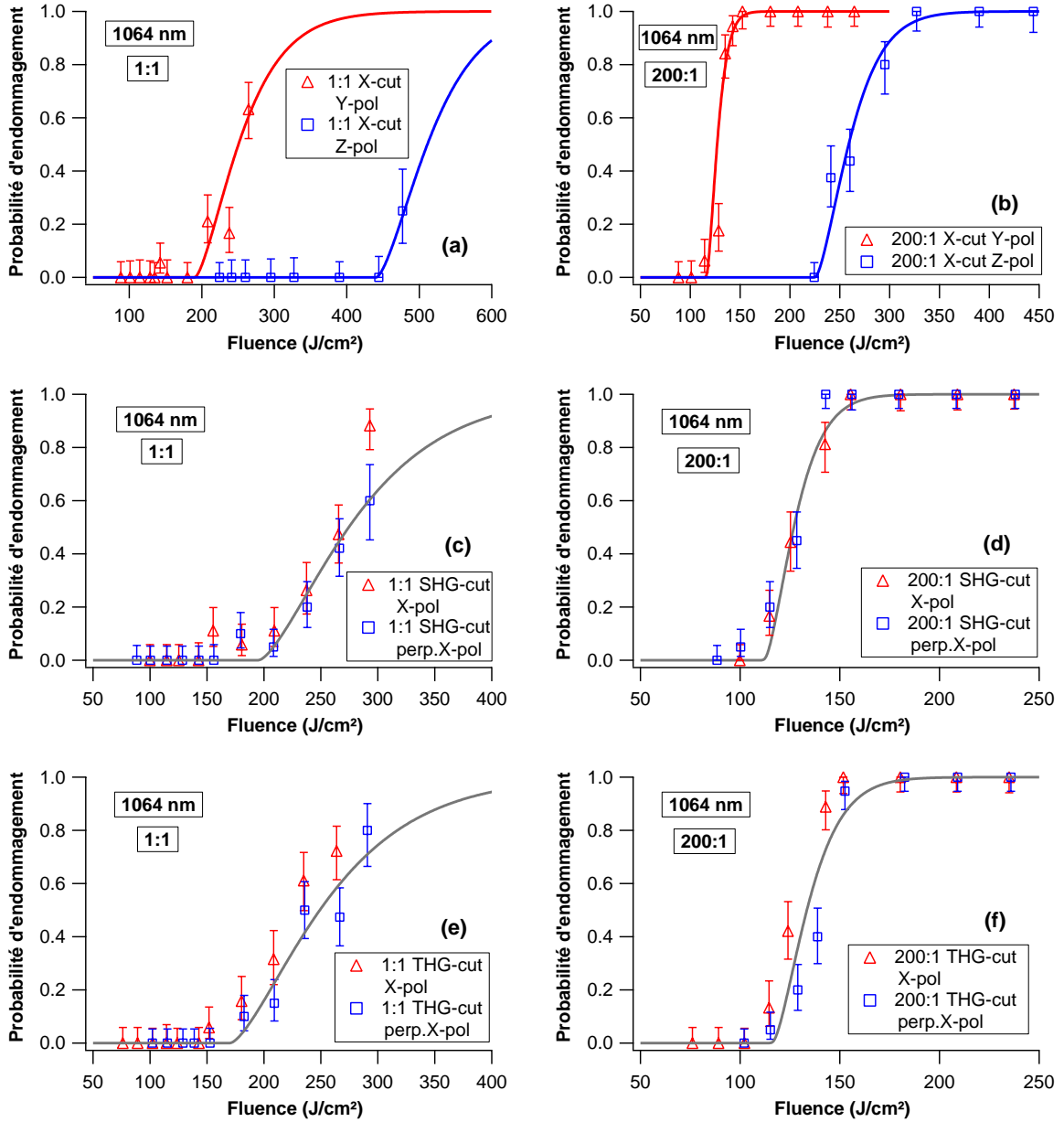


FIG. 6.5 – Courbes de tenue au flux laser du LBO à 1064 nm en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la polarisation pour les directions X, SHG et THG.

En revanche, pour la direction X, le cristal semble bien plus résistant au flux laser lorsque la polarisation est selon l'axe Z (fig. (a) et (b)) que selon Y. Contrairement aux résultats



obtenus par Furukawa *et al.* [179], le seuil mesuré en polarisation Z est plus de 2 fois plus élevé que celui en polarisation Y. Cette anisotropie de la tenue au flux laser s'interprète peut être par la structure du LBO. Nous proposons ici un mécanisme d'endommagement reposant sur la présence de centres pièges [180]. Nous avons vu au paragraphe 2.2.2.1 que le LBO présente une très grande conductivité ionique selon l'axe Z (jusqu'à un facteur  $10^4$  entre l'axe Z et les axes X, Y), liée à la mobilité des ions  $\text{Li}^+$  dans les canaux selon Z formés par la structure [79]. La présence de canaux selon Z peut nous amener à penser à un mécanisme très semblable à celui décrit dans les cristaux de KTP et RTP (cf. section 5.8.1). Lorsque le champ électrique du faisceau laser est orienté selon l'axe Z, l'énergie apportée permet le déplacement des ions  $\text{Li}^+$  qui vont déstabiliser les centres pièges responsables de l'initiation de l'endommagement. Hong *et al.* [180] ont en effet montré la présence de centres pièges stables proches des lacunes en  $\text{Li}^+$ . Ainsi, par le même mécanisme que dans le cas du KTP et RTP, cette déstabilisation des centres pièges conduit à une diminution de la probabilité d'endommagement.

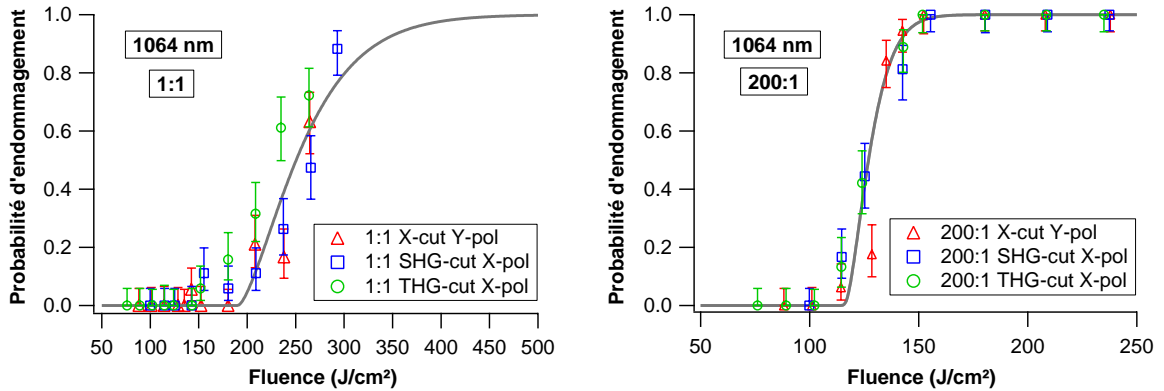


FIG. 6.6 – Courbes de tenue au flux laser du LBO en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la direction d'irradiation à 1064 nm.

De la même manière, nous pouvons comparer l'influence de la direction d'irradiation sur la tenue au flux pour une polarisation fixée. D'après la figure 6.6, aucune différence de tenue au flux n'est observée entre la direction X et les directions fonctionnelles SHG et THG. Nos résultats sont en accord avec ceux observés dans la littérature par Furukawa *et al.* [179] et Yoshida *et al.* [161], qui ont montré que la direction d'irradiation selon les axes X, Y et Z ne modifie pas la tenue au flux laser du cristal.

Notons toutefois que pour la comparaison des directions de coupe (figure 6.6), nous avons assimilé ici les polarisations X et Y, en supposant qu'il n'y avait aucune différence de tenue au flux laser. Cette supposition a été basée sur les données issues de la littérature.

Par ailleurs, remarquons que l'effet de fatigue observé après 200 tirs semble être identique quelque soit la polarisation ou la direction d'irradiation.

### 6.4.2 Résultats à 532 nm

Nous étudions ici l'anisotropie de la tenue au flux du LBO à 532 nm. A notre connaissance, aucune étude de l'influence de la polarisation et de la direction d'irradiation sur l'endommagement laser n'a été effectuée aux longueurs d'onde de 532 et 355 nm.

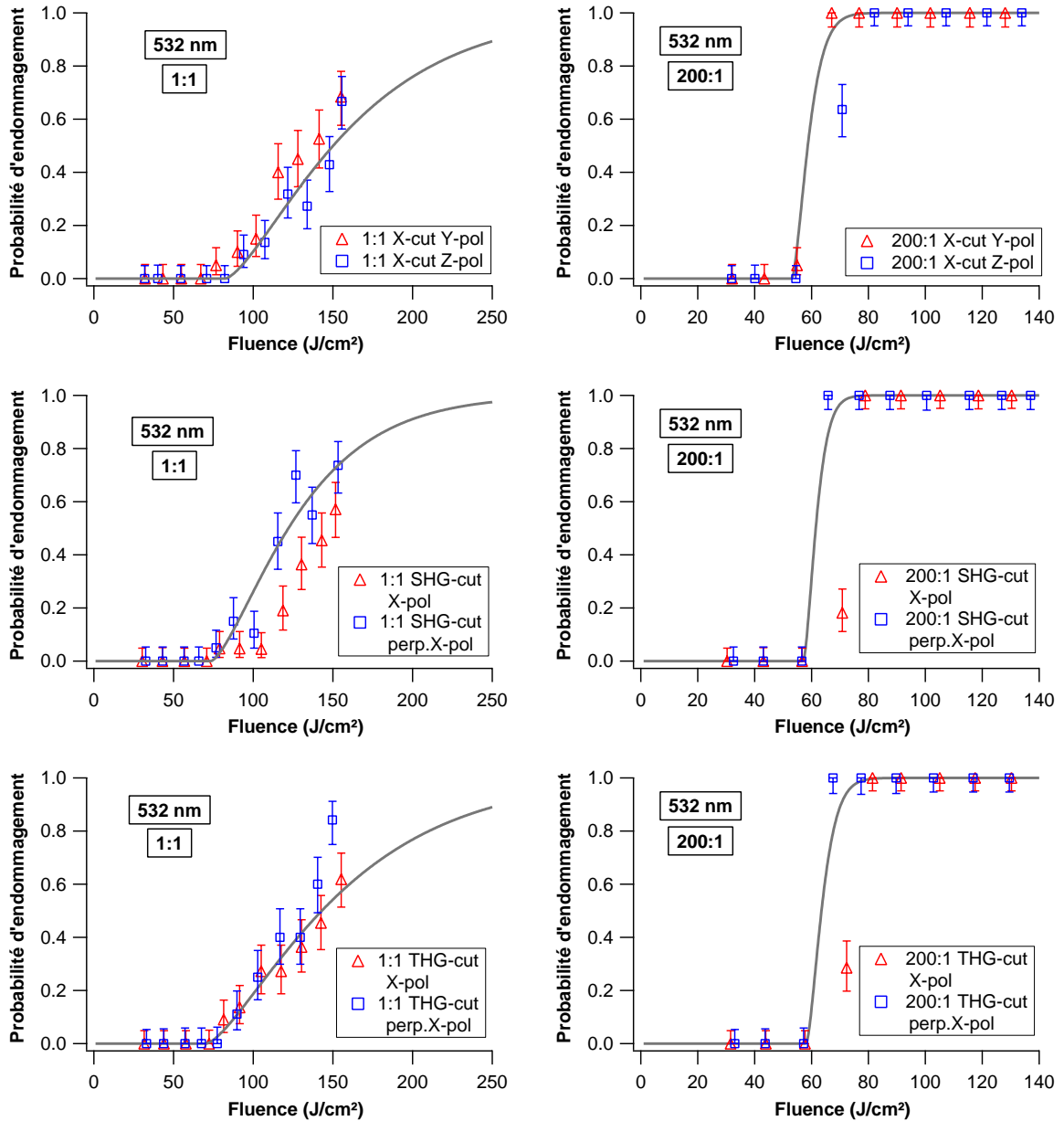


FIG. 6.7 – Courbes de tenue au flux laser du LBO à 532 nm en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la polarisation pour les directions X, SHG et THG.

Pour chacune des directions de coupe X, SHG et THG, nous observons l'influence de la polarisation sur la tenue au flux du cristal en mode 1-on-1 et 200-on-1 (cf. figure 6.7). A l'erreur expérimentale près, nous obtenons les mêmes courbes d'endommagement entre deux polarisations différentes et ceci pour les trois directions d'irradiation laser. Le seuil de tenue au flux laser à 532 nm ne semble donc pas dépendre de la polarisation. Ainsi, contrairement au comportement à 1064 nm, la tenue au flux laser lorsque la polarisation est selon l'axe Z n'est pas supérieure à celle obtenue dans les autres configurations.

En comparant les densités de précurseurs issues des courbes de probabilité 1-on-1, nous avons montré que les types de précurseurs responsables de l'endommagement à 1064 et 532 nm semblaient être différents. Il est donc probable selon cette hypothèse que les défauts initiant l'endommagement à 532 nm ne soient pas sensibles à la polarisation contrairement à ceux excités à 1064 nm.

En ce qui concerne l'influence de la direction d'irradiation sur la tenue au flux pour une polarisation fixée présentée en figure 6.8, aucune différence de tenue au flux n'est observée entre la direction X et les directions fonctionnelles SHG et THG. L'endommagement du LBO à 532 nm n'apparaît donc pas être dépendant de la direction d'irradiation laser, comme nous l'avons observé à 1064 nm.

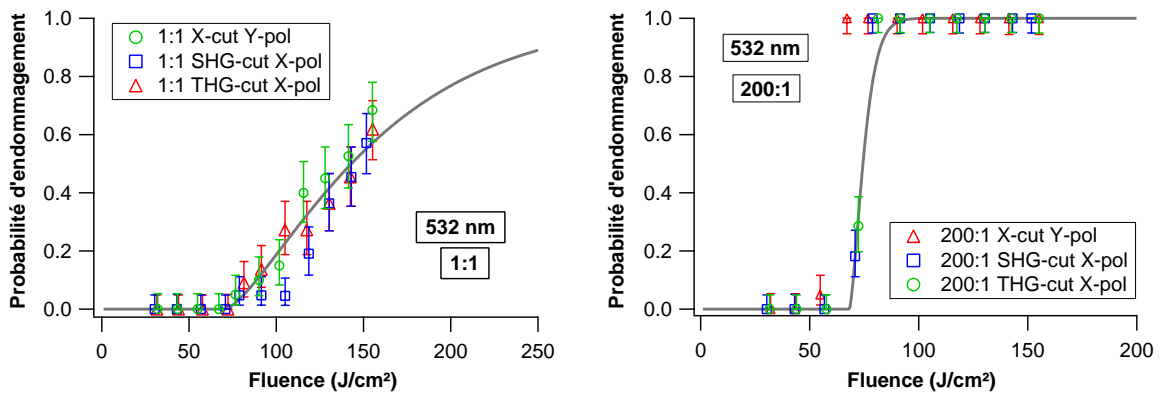


FIG. 6.8 – Courbes de tenue au flux laser du LBO en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la direction d'irradiation à 532 nm.

Le comportement de fatigue à 532 nm (figure 6.8, mode 200-on-1) ne semble pas dépendre de la polarisation ou direction d'irradiation, comme dans le cas 1064 nm.

### 6.4.3 Résultats à 355 nm

Pour les mesures réalisées à 355 nm, la direction SHG n'a pas été testée, car elle ne correspond pas à une configuration d'utilisation du cristal à cette longueur d'onde. Pour

les deux directions de coupe X et THG, l'influence de la polarisation sur la tenue au flux du cristal en mode 1-on-1 et 200-on-1 est présentée sur les figures 6.9 et 6.11.

Dans le cas de la direction X, une différence de tenue au flux laser est constatée entre les polarisations Y et Z sur les courbes 1-on-1 et 200-on-1 (cf. figure 6.9). Comme à 1064 nm, nous retrouvons une meilleure tenue au flux laser en polarisation selon l'axe Z.

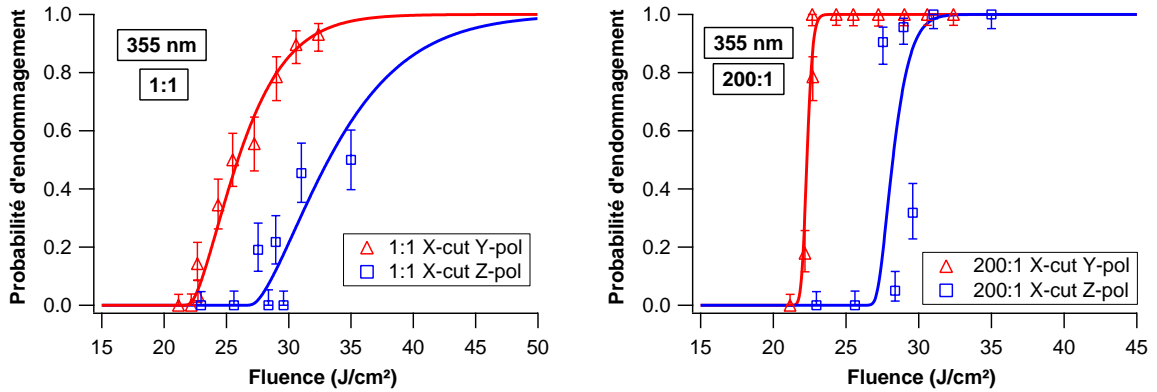


FIG. 6.9 – Courbes de tenue au flux laser du LBO à 355 nm en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la polarisation pour la direction X.

Ce comportement identique à 1064 et 355 nm et différent à 532 nm, tend à confirmer l'hypothèse de la présence du même type de précurseurs responsables de l'endommagement à 1064 et 355 nm, et d'un autre type à 532 nm. Les précurseurs à 1064 et 355 nm semblent être sensibles à la polarisation du faisceau. D'après le mécanisme d'endommagement proposé précédemment pour expliquer la meilleure tenue au flux en polarisation Z, les précurseurs de l'endommagement seraient des centres pièges dans le LBO. En revanche, les autres précurseurs mis en cause à 532 nm ne semblent pas être affectés par l'état de polarisation du faisceau laser.

Cette différence de comportement en polarisation selon Z s'observe également dans la morphologie des endommagements (cf. figure 6.10). Nous remarquons en effet que lorsque la polarisation est orientée selon l'axe Z, aucun clivage n'a lieu selon l'axe Y, alors que celui-ci se produit dans l'ensemble des autres configurations. Or, lors de l'étude de la morphologie présentée en section 6.2.2, nous avons montré que la fracture selon Y semble apparaître à plus basses fluences que le clivage en croix. Ainsi, lorsque la polarisation est selon l'axe Z, la cassure selon l'axe Y n'a pas lieu, ce qui est en accord avec la meilleure résistance au flux observée. Remarquons que cette différence de morphologie n'apparaît pas sur les endommagements obtenus à 532 nm, en accord avec le comportement identique en tenue au flux laser à cette longueur d'onde.

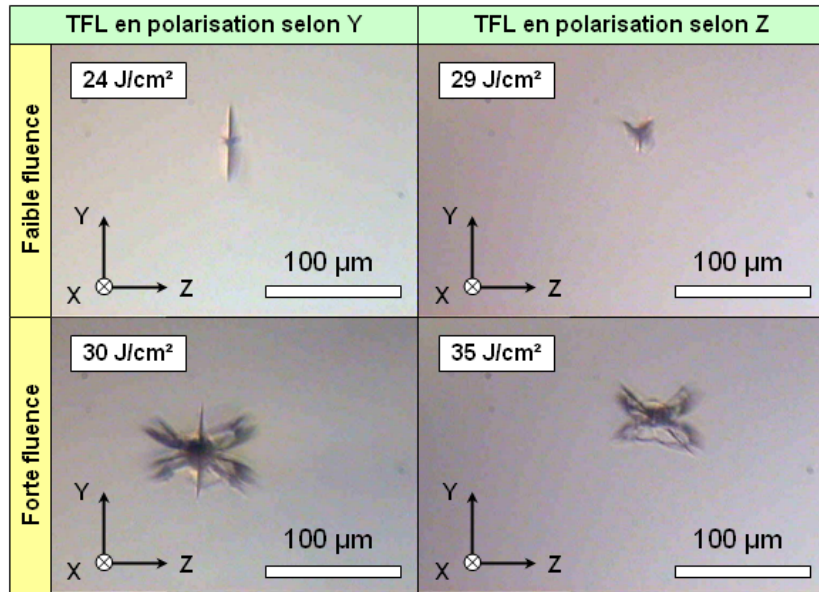


FIG. 6.10 – Morphologie des endommagements à 355 nm dans le LBO X-cut obtenus en polarisation selon les axes Y et Z.

Concernant la direction THG, un léger écart entre les courbes d'endommagement en polarisation X et perpendiculaire à X peut être constaté (cf. figure 6.11). Celui-ci se retrouve sur les courbes 1-on-1 et 200-on-1. Cette différence sera expliquée ci-après autour de l'effet plus significatif observé en figure 6.12.

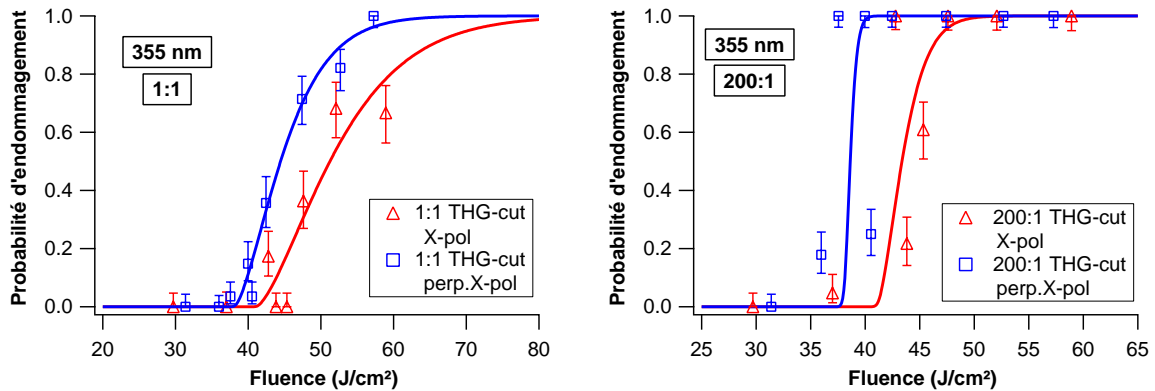


FIG. 6.11 – Courbes de tenue au flux laser du LBO à 355 nm en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la polarisation pour la direction THG.

Pour finir, nous nous intéressons à la comparaison de la tenue au flux du LBO entre les

directions d'irradiation X et THG pour une polarisation fixée (cf. figure 6.12). Pour cela, nous supposons à nouveau qu'aucune différence de tenue au flux n'est observable entre les polarisations X et Y. Nous observons que le seuil d'endommagement dans la direction THG est environ deux fois plus grand que dans la direction X.

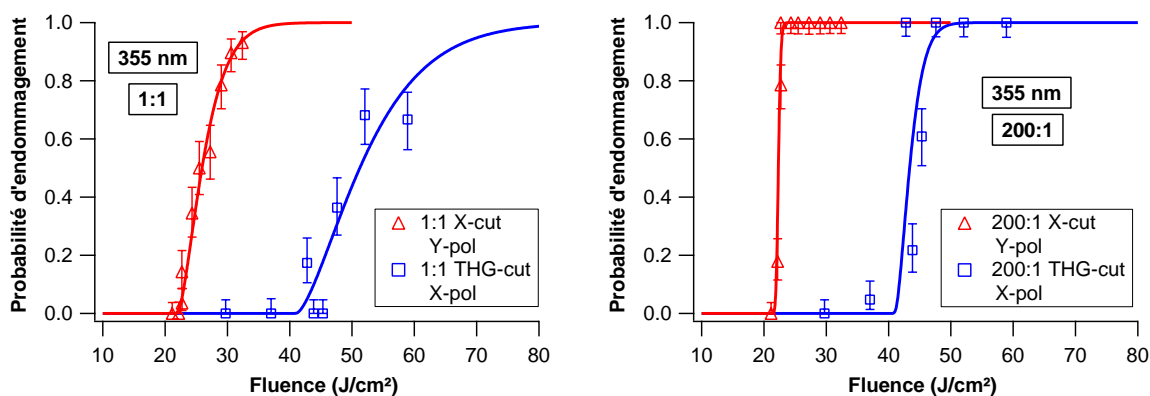


FIG. 6.12 – Courbes de tenue au flux laser du LBO en mode 1-on-1 et 200-on-1 : influence de la direction d'irradiation à 355 nm.

Nous avons vu au paragraphe 2.2.2.4 que lors de la génération de troisième harmonique, le 355 nm produit en sortie du LBO est polarisé selon l'axe X. Un mécanisme probable pour expliquer la plus haute tenue au flux observée pour le LBO THG-cut serait d'imaginer un mécanisme de conversion inverse dans le cristal lors de l'irradiation à 355 nm en polarisation X. Une partie de l'énergie à 355 nm serait convertie en des longueurs d'onde supérieures pour lesquelles le seuil d'endommagement du cristal est supérieur, engendrant donc une meilleure résistance à l'endommagement. Remarquons cependant que cette conversion n'a pas pu être mesurée, sans doute à cause d'un très faible rendement. Ce point est expliqué plus en détails dans le cas de la génération de seconde harmonique en section 6.5.

Par ailleurs, aucune différence d'effet de fatigue à 355 nm n'a été constatée entre les différentes configurations après 200 tirs, comme à 1064 et 532 nm.

#### 6.4.4 Bilan sur l'anisotropie

Nous avons montré que lors d'une irradiation laser à 1064 et 532 nm, aucun effet de la direction d'irradiation n'est constaté sur la tenue au flux du cristal. Par ailleurs, nous avons soupçonné un mécanisme de conversion inverse à 355 nm dans le LBO THG-cut en polarisation X, permettant d'expliquer la meilleure tenue au flux observée par rapport aux autres configurations.

En ce qui concerne l'influence de la polarisation, la tenue au flux du cristal ne semble pas dépendre de la polarisation lors d'irradiation à 532 nm. En revanche, à 1064 et 355 nm, le seuil d'endommagement du cristal est plus élevé lorsque la polarisation est selon l'axe Z, comme dans le cas des cristaux de KTP et RTP. Nous avons alors proposé un mécanisme d'endommagement reposant sur la déstabilisation de centres pièges dans le LBO due à la mobilité des ions  $\text{Li}^+$  lorsque le champ électrique est orienté selon l'axe Z. Ce comportement selon la polarisation identique aux longueurs d'onde de 1064 et 355 nm et différent à 532 nm semble confirmer l'hypothèse d'une même classe de précurseurs responsables de l'endommagement à 1064 et 355 nm et d'un autre type à 532 nm.

## 6.5 Cas de la génération de seconde harmonique

Afin de pouvoir interpréter les résultats, nous avons étudié jusqu'à présent des configurations ne faisant pas intervenir volontairement de mécanisme de conversion de fréquence. Dans cette partie, nous nous intéressons à l'étude de la tenue au flux du LBO dans le cas de la génération de seconde harmonique à 1064 nm.

Pour réaliser l'accord de phase de type II, le cristal est coupé selon l'axe SHG et la polarisation du faisceau incident à 1064 nm est à  $45^\circ$  de l'axe X (cf. section 2.2.1.4).

Les figures 6.13(a) et 6.13(b) présentent 4 courbes de tenue au flux laser en mode 200-on-1 du LBO SHG-cut :

- irradiation à 1064 nm (courbe (1))
- irradiation à 532 nm (courbe (2))
- irradiation à 1064 nm et génération de 532 nm (fig. (a), courbe (3))
- irradiation à 532 nm et génération de 1064 nm (fig. (b), courbe (4))

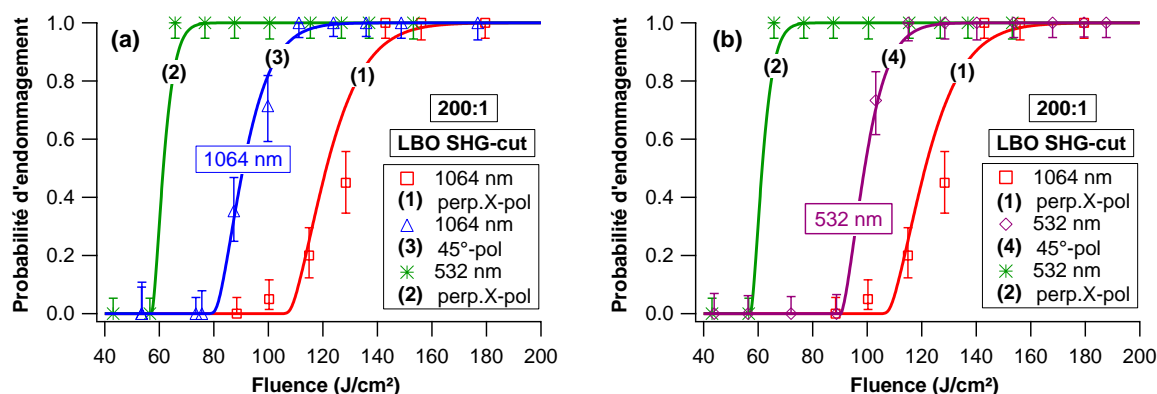


FIG. 6.13 – Courbes de tenue au flux laser en mode 200-on-1 du LBO SHG-cut : influence de la génération de seconde harmonique.



D'après l'étude précédente sur l'anisotropie de la tenue au flux du LBO, aucune différence de tenue au flux à 1064 et 532 nm n'a été observée pour la direction SHG entre la polarisation X et perpendiculaire à X. Nous pouvons donc comparer les courbes en polarisation à 45° à celles obtenues en polarisation perpendiculaire à X sans attendre un effet de la polarisation sur la tenue au flux du cristal.

Nous remarquons que lors de l'irradiation à 1064 nm, le LBO SHG-cut en polarisation à 45° (courbe (3)) présente une moins bonne tenue au flux laser qu'en polarisation perpendiculaire à X (courbe (1), cf. figure 6.13(a)). Cette différence peut s'expliquer par la génération de seconde harmonique. En effet, dans le cas de la polarisation perpendiculaire à X, le désaccord de phase est très grand, la génération de seconde harmonique est donc négligeable. En revanche, lorsque la polarisation du faisceau incident à 1064 nm est à 45°, les conditions d'accord de phase sont satisfaites. Une partie du fondamental est alors convertie en seconde harmonique. Or, la tenue au flux laser du cristal à 532 nm est plus faible que celle à 1064 nm. Ceci permet donc d'expliquer la diminution du seuil d'endommagement.

Cette génération de 532 nm a été confirmée par l'observation. En revanche, le rendement de conversion mesuré en sortie du cristal est très faible, car le faisceau utilisé est assez fortement focalisé (diamètre 24  $\mu\text{m}$ ) dans le cristal. En effet pour un tel faisceau, la longueur d'interaction est courte et la gamme d'angles trop grande par rapport à l'acceptance angulaire du cristal.

En outre, la tenue au flux laser du LBO lors de la SHG est supérieure à celle obtenue à 532 nm uniquement. En d'autres termes, la tenue au flux du cristal en présence du mélange 1064 + 532 nm est comprise entre les tenues au flux aux deux longueurs d'onde 1064 et 532 nm seules (figure 6.13(a)), contrairement au cas des cristaux de KTP où la tenue au flux du mélange est plus faible que celles aux deux longueurs d'onde seules (cf. section 5.9). Dans le cas du KTP, nous avons alors pu conclure à un mécanisme fortement coopératif. Concernant le cristal de LBO, les résultats obtenus ici ne nous permettent pas de statuer. Il serait en effet nécessaire pour conclure de poursuivre l'étude par différentes proportions de mélange des deux longueurs d'onde comme cela a été effectué dans le cas des cristaux de KTP. Toutefois, étant donné le faible rendement de conversion et l'effet important du mélange sur la tenue au flux du cristal, nous pouvons imaginer que l'existence d'un mécanisme coopératif est possible, comme observé dans la même situation dans le KDP [32, 177].

D'autre part, lors de l'irradiation à 532 nm du LBO SHG-cut en polarisation à 45° (courbe (4)), nous observons une meilleure tenue au flux qu'en polarisation perpendiculaire à X (courbe (2), cf. figure 6.13(b)). Un mécanisme de conversion inverse 532 nm  $\rightarrow$  1064 nm est alors soupçonné en polarisation à 45°. Une partie du faisceau incident de seconde harmonique serait convertie en infrarouge, expliquant le seuil d'endommagement plus élevé, car la tenue au flux dans l'infrarouge est supérieure à celle obtenue dans le vert.

Notons que cette génération d'infrarouge n'a pas pu être mesurée en sortie du cristal, sans doute du à un rendement de conversion trop faible. Ce même phénomène de conversion



inverse a en revanche pu être observée (au moyen d'une carte infrarouge) dans le cristal de KTP, grâce à des coefficients non linéaires plus élevés.

Par ailleurs, cette hypothèse est confirmée par l'observation de l'effet de fatigue. Lors de l'étude du vieillissement du LBO, nous avons constaté que le comportement de fatigue du cristal est différent selon la longueur d'onde d'irradiation, avec un effet plus prononcé à 1064 nm qu'à 532 nm. Nous pouvons donc utiliser cette différence pour discriminer la génération de 1064 nm. Nous définissons  $Ra$  le rapport entre les seuils 1-on-1 et 200-on-1. Lors de l'irradiation à 532 nm en polarisation perpendiculaire à X,  $Ra = 1,3$  comme dans les autres configurations à cette longueur d'onde. En revanche, en polarisation à  $45^\circ$ ,  $Ra = 1,7$ . Ce facteur se rapproche alors de celui obtenu lors d'une irradiation à 1064 nm ( $Ra = 1,85$ ). Nous observons donc une fatigue plus importante en polarisation à  $45^\circ$  qu'en polarisation perpendiculaire à X correspondant bien à un mélange des deux longueurs d'onde. Cette observation du phénomène de fatigue tend à confirmer la génération d'infrarouge dans le LBO SHG-cut lors d'une irradiation à 532 nm en polarisation à  $45^\circ$ .

## 6.6 Conclusion

Les cristaux de LBO sont parmi les matériaux optiques inorganiques les plus résistants au flux laser développés à ce jour. Nous avons montré qu'ils possèdent un seuil 1-on-1 de tenue au flux laser en volume à 1064 nm 1,5 fois supérieur à celui des meilleures silices. Ils présentent une très bonne qualité optique, ont très peu de défauts et un faible niveau d'absorption. Grâce à leur excellente résistance au flux laser et à leur gamme de transparence allant jusqu'à 160 nm, ils sont des composants de choix pour des applications de puissance dans l'UV, notamment pour la conversion de fréquence des lasers Nd:YAG. Cependant, nous avons identifié que le point faible du composant (sans traitements optiques) est le volume sous irradiation à 355 nm. Une étude multi-paramètres en volume du cristal a alors été réalisée pour permettre de mieux comprendre les mécanismes d'endommagement. L'ensemble des seuils obtenus en mode 1-on-1 dans les différentes configurations est récapitulé sur la figure 6.14.

L'étude de la tenue au flux du cristal pour les trois longueurs d'onde d'intérêt 1064, 532 et 355 nm a montré que le seuil d'endommagement décroît lorsque la longueur d'onde d'irradiation diminue. Par ailleurs, le comportement de fatigue du LBO sous irradiation multiple (10 000 tirs) est également dépendant de la longueur d'onde. Ainsi, lors d'une irradiation à 1064 nm, le seuil d'endommagement 1-on-1 est très élevé ( $155 \text{ J/cm}^2$ ), mais il décroît très fortement avec le nombre de tirs jusqu'à atteindre une valeur 1,8 fois plus faible sous 10 000 tirs. A 532 nm, l'effet de fatigue constaté est moins prononcé. Enfin, aucun vieillissement du LBO n'est observé sous irradiation répétée à 355 nm. Remarquons cependant qu'aucun conditionnement à 355 nm n'a pu être mis en évidence pour améliorer la tenue au flux du cristal. Malgré ce phénomène de fatigue, cette étude 10 000-on-1 a montré que pour les 3 longueurs d'onde, le seuil d'endommagement du cristal est stabilisé après environ 1 000 tirs, ce qui est particulièrement intéressant pour son utilisation fonctionnelle.

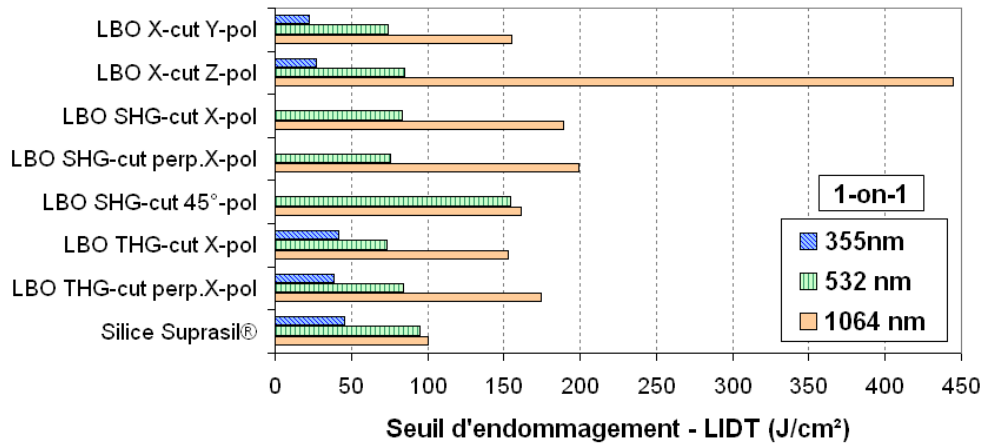


FIG. 6.14 – Récapitulatif des seuils d’endommagement laser 1-on-1 du LBO.

Il semble vraisemblable que l’endommagement laser du LBO à 1064 et 355 nm soit provoqué par le même type de précurseurs présent en forte densité ( $10^4$  défauts/mm<sup>3</sup>) dans le cristal. La différence de seuil de claquage entre les deux longueurs d’onde peut alors s’expliquer par un comportement différent du défaut selon la longueur d’onde en terme d’absorption. Nous pouvons également supposer un mécanisme d’excitation du précurseur plus efficace à 355 nm qu’à 1064 nm. Par ailleurs, nous avons montré que la tenue au flux laser à ces deux longueurs d’onde est plus élevée lorsque le faisceau incident est polarisé selon l’axe Z. Nous avons proposé un mécanisme d’endommagement semblable à celui des cristaux de KTP et RTP reposant sur la présence de centres pièges dans le cristal. Lorsque le champ électrique du faisceau laser est selon l’axe Z, la grande mobilité des ions Li<sup>+</sup> selon cette direction due aux canaux dans la structure cristalline engendrerait la déstabilisation des centres pièges, diminuant l’initiation de l’endommagement. Les précurseurs responsables de l’endommagement à 1064 et 355 nm seraient alors des centres pièges dans le cristal.

A 532 nm, l’endommagement du LBO semble être provoqué par un autre type de précurseurs que ceux rencontrés à 1064 et 355 nm, insensible à la polarisation ou à la direction d’irradiation laser et présents en plus faible densité ( $2 \cdot 10^3$  défauts/mm<sup>3</sup>).

La morphologie des endommagements aux 3 longueurs d’onde présente 3 directions privilégiées de clivage dans le cristal. Dans le cas du LBO X-cut, nous avons montré que la fracture selon l’axe Y semble être celle qui apparaît en premier lieu, pour des fluences plus faibles que les deux autres directions qui ne sont pas selon les axes cristallins.

Pour finir, nous nous sommes intéressés à l’influence de la conversion de fréquence sur l’endommagement laser du LBO. Nous avons mis en évidence une plus faible tenue au flux du cristal lors de la génération de seconde harmonique. La conversion d’une partie du

faisceau incident fondamental en faisceau de seconde harmonique, engendre la diminution du seuil d'endommagement par rapport à la présence d'infrarouge uniquement. Nous observons dans notre configuration que le seuil en présence du mélange 1064 + 532 nm est compris entre ceux aux deux longueurs d'onde seules.

Nous avons également supposé l'existence d'un mécanisme de conversion inverse dans le LBO dans les cas des directions de SHG sous irradiation à 532 nm en polarisation à 45° et de THG pour une irradiation à 355 nm en polarisation X. La génération des longueurs d'onde supérieures entraîne en effet un seuil de tenue au flux laser plus élevé, expliquant l'augmentation du seuil observée dans ces deux configurations.

# Conclusion

Les objectifs de cette thèse ont été d'étudier et de comprendre l'origine de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires qui constituent un verrou technologique au développement de sources de puissance actuelles. Ce travail a été orienté principalement sur l'étude des cristaux de KTP, RTP et LBO en étroite collaboration avec la société Cristal Laser, spécialiste de la croissance de ces cristaux. D'autre part, des études ont été menées sur des barreaux laser de Nd:KGW dans le cadre d'une collaboration avec le CNES et la société Thales Laser sur le projet spatial ChemCam, ainsi que sur des cristaux de KDP pour ses applications dans le cadre du projet Laser MégaJoule mené par le CEA.

## **(1) Mise en place d'une métrologie adaptée à l'étude des cristaux non linéaires**

Les mesures d'endommagement laser dans les cristaux non linéaires soulèvent des problèmes qui ne sont pas rencontrés dans le cas de matériaux isotropes tels que la silice. Ainsi, afin de permettre l'étude de la tenue au flux de ces cristaux, une métrologie de l'endommagement laser adaptée à ce type de matériau a tout d'abord dû être développée, permettant de prendre en compte l'influence des effets de non linéarité et d'anisotropie.

Dans un premier temps, un dispositif expérimental dédié à l'étude des cristaux a été mis en place. Le banc développé utilise un moyen de détection des endommagements avec une grande profondeur de champ pour l'observation des dommages sur une dizaine de millimètres de profondeur, ce qui autorise un taux d'échec de détection de l'endommagement extrêmement faible. Il permet de travailler aux trois longueurs d'onde d'intérêt : 1064, 532 et 355 nm, à des tailles de faisceau de test allant d'environ 10 à 200  $\mu m$  de diamètre.

Étant donné le coût élevé et les petites dimensions des cristaux étudiés, différents aspects ont été abordés pour optimiser la mesure destructive de l'endommagement laser. L'incertitude sur la mesure de la probabilité d'endommagement a notamment été calculée de façon systématique, afin de pouvoir distinguer les différences de tenue au flux laser des fluctuations inhérentes aux mesures statistiques. Nous avons également optimisé l'exploitation de la procédure de test en tir multiple (S-on-1) pour pouvoir remonter, à partir d'une seule mesure, à l'ensemble des courbes M-on-1 avec M variant de 1 à S, permettant ainsi de caractériser le comportement de fatigue du matériau sur une zone de test très réduite.

D'autre part, dans les cristaux, les effets de biréfringence (aberrations, walk-off) ou de non linéarité (autofocalisation) peuvent perturber le profil spatial du faisceau lors des mesures de tenue au flux engendrant des erreurs sur la détermination des fluences. Nous avons alors évalué théoriquement la contribution de ces effets pour pouvoir mettre en place une correction adaptée si besoin. Un modèle permettant de corriger l'effet des aberrations apparaissant en faisceau focalisé (de l'ordre de la dizaine de micromètres de diamètre) a en particulier été appliqué. En outre, lors de l'irradiation laser, la génération "parasite" de seconde harmonique peut également modifier la tenue au flux des cristaux. Nous avons montré que dans les cas de désaccord de phase, la génération observée en sortie ne donne aucune information sur l'intensité maximale du faisceau de seconde harmonique à l'intérieur du cristal. Enfin, contrairement aux matériaux isotropes, nous avons observé que le seuil d'endommagement laser des cristaux peut dépendre de la polarisation et de la direction de propagation du faisceau de test, montrant l'importance de réaliser des mesures systématiques pour les différentes configurations d'utilisation.

## (2) Endommagement laser dans le cas des cristaux de KTP et RTP

Appartenant à la même famille cristallographique, les cristaux de KTP et RTP présentent des propriétés optiques et physiques très similaires. Le KTP est surtout utilisé pour la génération de seconde harmonique (SHG) des lasers Nd:YAG, tandis que le RTP trouve son application dans les cellules électro-optiques. L'inconvénient majeur de ces cristaux est leur susceptibilité au gray-track qui limite notamment leur résistance au flux laser. Nous avons montré dans un premier temps que le comportement de ces deux cristaux en terme de tenue au flux laser est tout à fait similaire. Sous irradiation en faisceau parallèle, le point faible de ces composants apparaît être leur tenue au flux en volume. De plus, selon la taille du faisceau de test utilisé, des endommagements par autofocalisation peuvent apparaître.

La caractérisation de la tenue au flux laser à 1064 nm en surface du KTP a montré que pour le composant étudié, le seuil d'endommagement est limité par le polissage et non par le traitement antireflet. Au vu des résultats obtenus, nous pouvons faire l'hypothèse que des résidus du liquide de polissage (particules de diamant) se trouvent en surface du cristal et sont à l'origine de l'endommagement. En modifiant le procédé de polissage, il serait alors envisageable de parvenir à améliorer la résistance au flux laser de la surface du cristal.

Selon les procédés de croissance cristalline, des défauts tels que des inclusions, impuretés, secteurs de pousse, dislocations, peuvent apparaître dans les cristaux. Leurs propriétés physiques (absorption optique, conductivité ionique, résistance mécanique,...) peuvent alors être très différentes. Nous avons donc étudié l'influence de ces paramètres sur la tenue au flux laser à 1064 nm dans le cristal de RTP. Aucune corrélation n'a été constatée entre le niveau d'absorption moyen et le seuil d'endommagement laser du cristal, ceci pour de faibles niveaux d'absorption macroscopique. A cette échelle d'observation, l'absorption moyenne ne semble donc pas constituer un paramètre déterminant dans la tenue au flux laser du cristal. Par ailleurs, une étude sur des cristaux issus de différents procédés de croissance

a montré que la conductivité ionique et la qualité optique (secteurs de croissance, inclusions, stries) ne semblent pas modifier la tenue au flux laser. En revanche, ces paramètres demeurent importants pour le fonctionnement du cristal.

Nous avons réalisé une étude multi-paramètres (longueur d'onde, nombre de tirs, direction d'irradiation, polarisation) de la tenue au flux en volume des cristaux de KTP et RTP. Nous avons constaté que le seuil d'endommagement et le comportement de fatigue du cristal dépendent significativement de la longueur d'onde d'irradiation. En effet, le seuil d'endommagement en mode 1-on-1 est plus faible à 532 nm ( $7 \text{ J/cm}^2$ ) qu'à 1064 nm ( $18 \text{ J/cm}^2$ ) et la densité de précurseurs responsables de l'endommagement est proche d'une dizaine par  $\text{mm}^3$  à 1064 nm et d'environ dix fois plus à 532 nm. D'autre part, nous avons montré un important effet de fatigue à 1064 nm. Après 10 000 tirs, le seuil d'endommagement laser est deux fois plus faible que celui mesuré après un seul tir. En revanche, aucun effet de fatigue n'est observé à 532 nm. Ce résultat est d'autant plus intéressant que la tenue au flux laser à 532 nm est plus critique qu'à 1064 nm.

Sous irradiation laser à 1064 ou 532 nm, les cristaux de KTP et RTP sont significativement plus résistants au flux lorsque la polarisation du faisceau incident est dirigée selon l'axe Z. Cette anisotropie peut être expliquée par un mécanisme reposant sur l'absorption par des centres colorés de stabilité variable. La création d'une paire électron-trou induite par le faisceau d'irradiation peut être suivie du piégeage des trous par les ions  $\text{Fe}^{3+}$  (impuretés présentes dans le cristal) et des électrons par les ions  $\text{Ti}^{4+}$  adjacents à un oxygène. Ces centres colorés ainsi générés sont stables lorsqu'ils sont proches des lacunes d'ions  $\text{K}^+$ . Ils peuvent être responsables de l'endommagement laser par l'augmentation de l'absorption de la lumière. Lorsque la polarisation du faisceau incident est selon l'axe Z, les ions  $\text{K}^+$  peuvent se déplacer par un mécanisme de saut d'ions, car la barrière énergétique est très faible dans cette direction. La déstabilisation du centre coloré par l'arrivée d'un ion sur une lacune entraîne une décroissance de leur durée de vie, diminuant alors la probabilité d'initiation de l'endommagement.

Lors de la génération de seconde harmonique des cristaux de KTP, la conversion de 1064 nm vers 532 nm conduit à une diminution du seuil d'endommagement laser du cristal par rapport à l'irradiation en infrarouge uniquement. Nous constatons que le seuil obtenu en présence du mélange 1064 et 532 nm est plus faible que ceux aux deux longueurs d'onde seules. Cette observation met en évidence l'existence d'un mécanisme coopératif entre les deux longueurs d'onde. Pendant l'irradiation laser, le faisceau de seconde harmonique génère des centres colorés qui absorbent alors efficacement l'irradiation infrarouge, conduisant à un échauffement local du matériau pouvant mener à un endommagement.

Pour le fonctionnement en cellule de Pockels, nous avons montré que le RTP X-cut présente une résistance au flux laser deux fois plus grande que le Y-cut, ce qui peut s'expliquer par la présence de génération "parasite" de seconde harmonique. L'ensemble de l'étude fonctionnelle a donc révélé que le seuil d'endommagement laser est fortement dépendant des conditions d'utilisation et de l'application du composant.

### (3) Étude de la tenue au flux laser des cristaux de LBO

Les cristaux de LBO sont parmi les matériaux optiques présentant les plus hautes tenues au flux laser connus à ce jour. Nous avons montré qu'à 1064 nm, ils possèdent un seuil 1-on-1 de tenue au flux laser en volume 1,5 fois supérieur à celui des meilleures silices. Ils présentent une excellente qualité optique, ont très peu de défauts et un faible niveau d'absorption. De par l'ensemble de ces caractéristiques et leur gamme de transparence allant jusqu'à 160 nm, ils possèdent un avantage évident pour des applications de puissance dans le domaine UV, notamment pour la conversion de fréquence des lasers Nd:YAG. En revanche, le point critique de ces composants (sans traitements optiques) apparaît être le volume sous irradiation à 355 nm.

Une étude multi-paramètres de la tenue au flux en volume du cristal a alors été réalisée pour les trois longueurs d'onde d'intérêt 1064, 532 et 355 nm. Nous avons montré que le seuil d'endommagement et le comportement de fatigue du LBO dépendent fortement de la longueur d'onde d'irradiation. A 1064 nm, le seuil d'endommagement 1-on-1 est très élevé ( $155 \text{ J/cm}^2$ ), mais il décroît de façon significative avec le nombre de tirs jusqu'à atteindre une valeur 1,8 fois plus faible sous 10 000 tirs. A 532 nm, le seuil 1-on-1 est plus faible qu'à 1064 nm ( $74 \text{ J/cm}^2$ ), en revanche l'effet de fatigue constaté est moins prononcé et le seuil se stabilise à une valeur 1,4 fois plus faible après seulement une dizaine de tirs. Enfin, le seuil 1-on-1 à 355 nm est le plus critique ( $22 \text{ J/cm}^2$ ), cependant aucun vieillissement n'est observé sous irradiation répétée jusqu'à 10 000 tirs. De plus, aucun conditionnement à 355 nm n'a pu être mis en évidence pour améliorer la tenue au flux du cristal. Pour les trois longueurs d'onde, le seuil d'endommagement est stabilisé après environ 1 000 tirs, ce qui est particulièrement intéressant pour définir un seuil d'utilisation fonctionnelle.

Les résultats indiquent que l'endommagement laser du LBO à 1064 et 355 nm est engendré par un seul type de précurseurs présent en forte densité ( $10^4$  défauts/ $\text{mm}^3$ ) dans le cristal. La différence de seuil de claquage entre les deux longueurs d'onde peut s'expliquer par un comportement différent du précurseur selon la longueur d'onde notamment en terme d'absorption. Par ailleurs, à ces deux longueurs d'onde, nous avons montré que le cristal est plus résistant au flux laser lorsque la polarisation du faisceau d'irradiation est selon l'axe Z. Pour expliquer cette anisotropie du seuil d'endommagement, nous avons proposé un mécanisme d'endommagement reposant sur l'absorption optique par des centres pièges de stabilité variable; la déstabilisation de ces centres pièges dans le LBO étant due à la mobilité accrue des ions  $\text{Li}^+$  lorsque le champ électrique est orienté selon l'axe Z. Les précurseurs responsables de l'endommagement à 1064 et 355 nm seraient alors des centres pièges dans le cristal. A 532 nm, l'endommagement du LBO semble être provoqué par un autre type de précurseurs que ceux rencontrés à 1064 et 355 nm. Ces défauts sont présents en plus faible densité ( $2 \cdot 10^3$  défauts/ $\text{mm}^3$ ) et sont insensibles à la polarisation et à la direction d'irradiation laser.

Enfin, lors de la génération de seconde harmonique, la conversion 1064 vers 532 nm engendre une diminution du seuil d'endommagement laser du cristal par rapport à l'irradiation en infrarouge uniquement. Dans notre configuration de test, le seuil obtenu en présence du mélange 1064 et 532 nm est compris entre ceux aux deux longueurs d'onde seules.

### **Perspectives**

Ce travail a permis d'établir un ensemble vaste et cohérent de mesures sur différents cristaux non linéaires dans diverses configurations d'utilisation. La démarche expérimentale et théorique mise en oeuvre a contribué à améliorer notre compréhension des phénomènes d'endommagement laser dans les cristaux. Il reste néanmoins beaucoup de questions ouvertes sur la nature des mécanismes mis en jeu et des défauts initiateurs. En effet, hormis le KDP qui a suscité de nombreuses études dans le cadre du développement des lasers pour la fusion, les autres cristaux ont été peu caractérisés comme en témoigne la bibliographie. Nous avons vu que les précurseurs responsables de l'endommagement peuvent être de nature et de densité différentes. Pour aller plus loin dans l'investigation, il semble indispensable de passer par une étude non destructive des défauts présents dans les cristaux par des techniques d'imagerie et de spectroscopie d'absorption, de diffusion linéaires et non linéaires, ainsi que de luminescence. La difficulté de cette étude réside d'une part dans la détection de défauts de taille nanométrique présents en faible densité, ce qui est encore actuellement un challenge dans le cas de matériaux optiques de haute qualité tels que la silice. D'autre part, la complexité se trouve accrue dans le cas des cristaux non linéaires du fait de leur anisotropie et de leur non linéarité.





# Annexe A

## Propriétés physiques et optiques des matériaux étudiés

### Sommaire

---

|   |            |
|---|------------|
| <b>A.1 Cristaux non linéaires</b> . . . . .           | <b>166</b> |
| A.1.1 KTP . . . . .                                   | 166        |
| A.1.2 RTP . . . . .                                   | 167        |
| A.1.3 LBO . . . . .                                   | 168        |
| A.1.4 KDP et DKDP . . . . .                           | 169        |
| A.1.5 Nd:KGW . . . . .                                | 171        |
| <b>A.2 Silice Suprasil / Silice Heraeus</b> . . . . . | <b>173</b> |

---

## A.1 Cristaux non linéaires

### A.1.1 KTP

#### Physical properties

|   |                     |       |
|---|---------------------|-------|
| Chemical formula  | KTiOPO <sub>4</sub> |       |
| Crystal structure   | Orthorhombic        |       |
| Point group   | mm2                 |       |
| Lattice parameters, Å   | a                   | 12.82 |
|   | b                   | 6.40  |
|   | c                   | 10.59 |
| Hardness (Mohs)   | Near 5              |       |
| Hygroscopic susceptibility  | none                |       |
| Density, g.cm <sup>-3</sup>                                       | 3.03                |       |
| Specific heat, cal.g <sup>-1</sup> .°C <sup>-1</sup>              | 0.1737              |       |
| Ionic conductivity (room temperature, 10 kHz), S.cm <sup>-1</sup> | 10 <sup>-6</sup>    |       |
| Aperture, mm <sup>2</sup> :                                       | up to 18 x 18       |       |
| Length, mm:   | up to 35            |       |

FIG. A.1 – Propriétés physiques des cristaux de KTP. *Source* : Cristal Laser S.A. [183]

#### Optical properties

|   |                          |          |                 |          |   |
|---|--------------------------|----------|-----------------|----------|---|
| Average refractive index  | 1.8                      |          |                 |          |   |
| Coefficients in Sellmeier's equation )                                    | Index                    | A        | B               | C        | D                                       |
| $[n_i^2 = A_i + \frac{B_i}{(\lambda^2 - C_i)} - D_i \lambda^2]$           | n <sub>x</sub>           | 3.006700 | 0.039500        | 0.042510 | 0.012470                                |
|   | n <sub>y</sub>           | 3.031900 | 0.041520        | 0.045860 | 0.013370                                |
|   | n <sub>z</sub>           | 3.313400 | 0.056940        | 0.059410 | 0.016713                                |
| for 0,5 < λ < 3,5 μm  | C. Bonnin, Cristal Laser |          |                 |          |   |
| Temperature coefficients of refractive indices, °C <sup>-1</sup>          |                          |          | β <sub>nx</sub> |          | 3.12 x 10 <sup>-6</sup>                 |
| $[T=25^\circ\text{C and } \beta = \frac{1}{n} \frac{\Delta n}{\Delta T}]$ |                          |          | β <sub>ny</sub> |          | 3.6 x 10 <sup>-6</sup>                  |
|   |                          |          | β <sub>nz</sub> |          | 6.24 x 10 <sup>-6</sup>                 |
| Transparency range, μm  |                          |          |                 |          | 0.35 - 4.5                              |
| Residual absorption (Photo-thermal Common-path Interferometer):           |                          |          |                 |          | <50 ppm/cm at 1064 nm, <1%/cm at 532 nm |

FIG. A.2 – Propriétés optiques des cristaux de KTP. *Source* : Cristal Laser S.A. [183]

## A.1.2 RTP

## Physical properties

|   |                                       |       |
|---|---------------------------------------|-------|
| Chemical formula  | RbTiOPO <sub>4</sub>                  |       |
| Crystal structure   | Orthorhombic                          |       |
| Point group   | mm2                                   |       |
| Lattice parameters, Å   | a                                     | 12.96 |
|   | b                                     | 10.56 |
|   | c                                     | 6.49  |
| Hygroscopic susceptibility  | None                                  |       |
| Density, g.cm <sup>-3</sup>                                       | 3.6                                   |       |
| Ionic conductivity (room temperature, 10 kHz), S.cm <sup>-1</sup> | 10 <sup>-10</sup> to 10 <sup>-9</sup> |       |
| Aperture mm <sup>2</sup> :  | up to 9x9                             |       |
| Length mm:  | up to 10                              |       |

FIG. A.3 – Propriétés physiques des cristaux de RTP. *Source* : Cristal Laser S.A. [183]

## Optical properties

|   |                                       |                |                |                 |                   |                |                |        |
|---|---------------------------------------|----------------|----------------|-----------------|-------------------|----------------|----------------|--------|
| Average refractive index  | 1.8                                   |                |                |                 |                   |                |                |        |
| Coefficients in Sellmeier's equation  | A <sub>i</sub>                        | B <sub>i</sub> | C <sub>i</sub> | D <sub>i</sub>  | E <sub>i</sub>    | p <sub>i</sub> | q <sub>i</sub> |        |
| $n_i^2(\lambda) = A_i + \frac{B_i}{1 - \left(\frac{C_i}{\lambda}\right)^{p_i}} + \frac{D_i}{1 - \left(\frac{E_i}{\lambda}\right)^{q_i}}$ for 0.5 < λ < 3,5 μm | n <sub>x</sub>                        | 2.1982         | 0.8995         | 0.2152          | 1.5433            | 11.585         | 1.9727         | 1.9505 |
|   | n <sub>y</sub>                        | 2.2804         | 0.8459         | 0.2296          | 1.1009            | 9.660          | 1.9696         | 1.9369 |
|   | n <sub>z</sub>                        | 2.3412         | 1.0609         | 0.2646          | 0.9714            | 8.149          | 2.0585         | 2.0038 |
|   | Y. Guillien et al., Optical Materials |                |                |                 | 22 (2003) 155-162 |                |                |        |
| Transparency range, μm  | 0.35 - 4.5                            |                |                |                 |                   |                |                |        |
| Residual absorption (Photo-thermal Common-path Interferometer): 100 ppm/cm at 1064 nm, 1%/cm at 532 nm  |                                       |                |                |                 |                   |                |                |        |
| Electro-optical constants (@ 633 nm, 1 kHz), pm. V <sup>-1</sup>  |                                       |                |                | r <sub>33</sub> | 33.0              |                |                |        |
|   |                                       |                |                | r <sub>13</sub> | 10.9              |                |                |        |
|   |                                       |                |                | r <sub>23</sub> | 15.0              |                |                |        |
| Dielectric constant (ε <sub>eff</sub> )   | 13                                    |                |                |                 |                   |                |                |        |

FIG. A.4 – Propriétés optiques des cristaux de RTP. *Source* : Cristal Laser S.A. [183]

## A.1.3 LBO

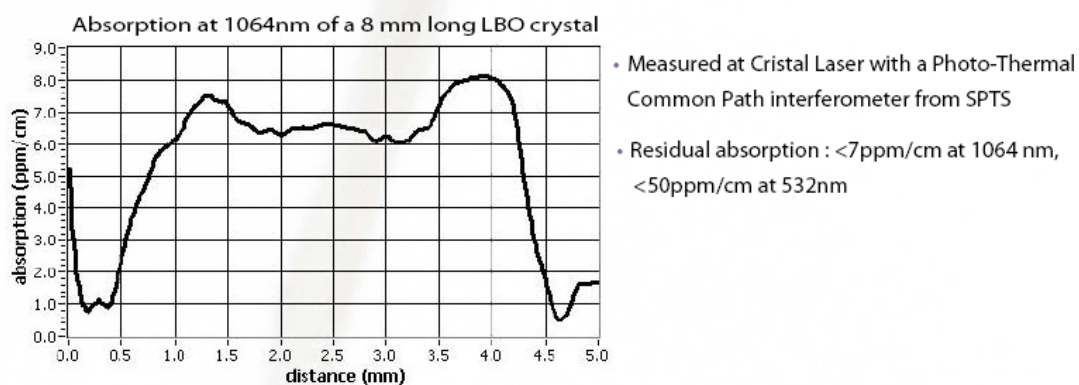
## Physical properties

|   |                                 |      |
|---|---------------------------------|------|
| Chemical formula  | LiB <sub>3</sub> O <sub>5</sub> |      |
| Crystal structure   | Orthorhombic                    |      |
| Point group   | mm2                             |      |
| Lattice parameters, Å                                       | a                               | 8.44 |
|   | b                               | 7.37 |
|   | c                               | 5.14 |
| Hardness, Mohs  | 5.5                             |      |
| Hygroscopic susceptibility                                  | weak                            |      |
| Density, g.cm <sup>-3</sup>                                 | 2.47                            |      |
| Specific heat, J/kg.K                                       | 1060                            |      |
| Thermal conductivity, mW.cm <sup>-1</sup> .°C <sup>-1</sup> | 35                              |      |
| Aperture, mm <sup>2</sup> :                                 | up to 30 x 30                   |      |
| Length, mm:   | up to 50                        |      |

FIG. A.5 – Propriétés physiques des cristaux de LBO. *Source : Cristal Laser S.A. [183]*

## Optical properties

|   |                       |        |             |         |         |
|---|-----------------------|--------|-------------|---------|---------|
| Average refractive index  | 1.6                   |        |             |         |         |
| Coefficients in Sellmeier's equation                            | Index                 | A      | B           | C       | D       |
| $[n_i^2 = A_i + \frac{B_i}{(\lambda^2 - C_i)} - D_i \lambda^2]$ | n <sub>x</sub>        | 2.4542 | 0.01125     | 0.01135 | 0.01388 |
|   | n <sub>y</sub>        | 2.5390 | 0.01277     | 0.01189 | 0.01848 |
|   | n <sub>z</sub>        | 2.5865 | 0.01310     | 0.01223 | 0.01861 |
|   | K. Kato IEEE J.QE-26, |        | 1173 (1900) |         |         |
| Transparency range, μm  | 0.16-2.6              |        |             |         |         |

FIG. A.6 – Propriétés optiques des cristaux de LBO. *Source : Cristal Laser S.A. [183]*

### A.1.4 KDP et DKDP

Les cristaux de KDP et DKDP sont utilisés pour la génération de second harmonique (SHG), de troisième harmonique (THG) et les cellules électro-optiques. Leur fabrication est obtenue à partir de la croissance d'un germe de ce cristal. Différentes méthodes de croissance existent : d'une part, une croissance dite "lente" qui fournit des cristaux au bout d'une dizaine de mois et d'autre part une croissance "rapide" permettant d'obtenir des cristaux de grande taille en quelques mois seulement. Dans le contexte de notre étude (projet Laser MégaJoule, collaboration CEA/Institut Fresnel), seuls des cristaux obtenus par croissance rapide ont été testés en tenue au flux laser.

| Crystals   |       | KDP   | DKDP   |
|--|-------|---|--|
| Chemical formula   |       | $\text{KH}_2\text{PO}_4$  | $\text{KD}_2\text{PO}_4$                                       |
| Symmetry   |       | 42 m  | 42 m   |
| Hygroscopicity   |       | high  | high   |
| Density, g/cm <sup>3</sup>                                       |       | 2.332   | 2.355  |
| Thermal conductivity, W/cm×K                                     |       | $k_{11} = 1.9 \times 10^{-2}$   | $k_{11} = 1.9 \times 10^{-2}$<br>$k_{33} = 2.1 \times 10^{-2}$ |
| Thermal expansion coefficients, K <sup>-1</sup>                  |       | $a_{11} = 2.5 \times 10^{-5}$<br>$a_{33} = 4.4 \times 10^{-5}$          | $a_{11} = 1.9 \times 10^{-5}$<br>$a_{33} = 4.4 \times 10^{-5}$ |
| Transmission range, $\mu\text{m}$                                |       | 0.18–1.5  | 0.2–2.0  |
| Residual absorption, cm <sup>-1</sup> (at 1.06 $\mu\text{m}$ )   |       | 0.04  | 0.005  |
| Measured refractive index (at 1.06 $\mu\text{m}$ )               |       | $n_o = 1.4938$<br>$n_e = 1.4599$  | $n_o = 1.4931$<br>$n_e = 1.4582$                               |
| Sellmeier coeff., $\lambda$ – wavelength in $\mu\text{m}$        |       | $n^2 = A + \frac{B \lambda^2}{\lambda^2 - C} + \frac{D}{\lambda^2 - E}$ |  |
| A  | $n_o$ | 2.259276  | 2.2409   |
|  | $n_e$ | 2.132668  | 2.1260   |
| B  | $n_o$ | 13.00522  | 2.2470   |
|  | $n_e$ | 3.2279924   | 0.7844   |
| C  | $n_o$ | 400   | 126.9205   |
|  | $n_e$ | 400   | 123.4032   |
| D  | $n_o$ | 0.01008956  | 0.0097   |
|  | $n_e$ | 0.008637494   | 0.0086   |
| E  | $n_o$ | 0.012942625   | 0.0156   |
|  | $n_e$ | 0.012281043   | 0.0120   |
| Nonlinear coeff. $d_{36}$ , pm/V (at 1.06 $\mu\text{m}$ )        |       | 0.43  | 0.40   |
| Laser damage threshold, GW/cm <sup>2</sup> at 1.06 $\mu\text{m}$ |       | 10 ps – 100   | 250 ps – 6   |
|  |       | 1 ns – 10   | 10 ns – 0.5  |
|  |       | 15 ns – 14.4  |  |

FIG. A.7 – Propriétés physiques et optiques des cristaux de KDP et DKDP. *Source* : *Eksma Optics* [184].

| Type of phase matching                      | ooe  | ooe  | ooe  | ooe  |
|---|------|------|------|------|
| Cut angle $\theta$ , deg                    | 41.2 | 59.1 | 36.6 | 53.7 |
| Acceptances (FWHM):                         |      |      |      |      |
| $\Delta\theta$ (internal), mrad $\times$ cm | 1.1  | 2.2  | 1.2  | 2.3  |
| $\Delta T$ thermal, K $\times$ cm           | 11   | 13.2 |      | 6.7  |
| $\Delta\lambda$ spectral, nm $\times$ cm    | 7.25 | 5.57 |      | 5.57 |
| Walk off, mrad                              | 27   | 24   | 25   | 24   |

FIG. A.8 – Différents types d'accord de phase du cristal de KDP pour la SHG à 1064 nm. *Source : Eksma Optics [184].*

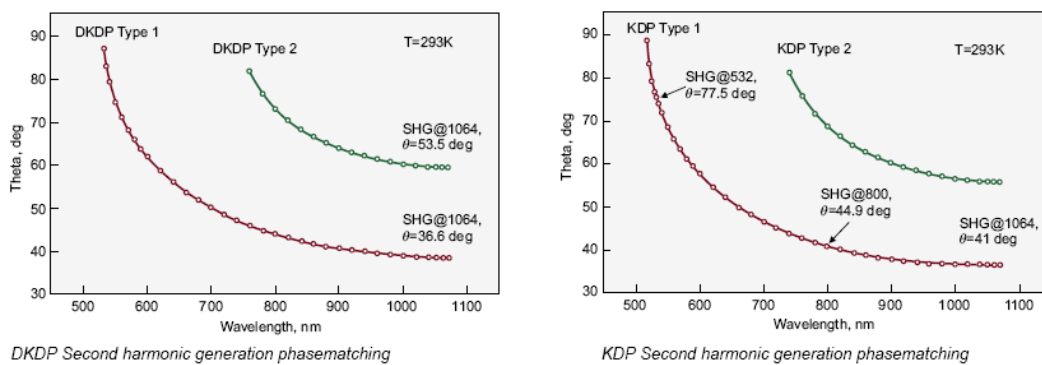


FIG. A.9 – Angles d'accord de phase des cristaux de KDP et DKDP pour la SHG. *Source : Eksma Optics [184].*

### A.1.5 Nd:KGW

Le cristal de Nd:KGW est un milieu à activité laser dont les principales propriétés sont présentées en figure A.10. Il a l'avantage de présenter une large bande d'absorption, une efficacité quasiment deux fois plus grande que celle du cristal de Nd:YAG et un seuil laser plus bas [26]. Il est donc un matériau de choix pour les lasers à faible énergie de pompe (0,5 - 1 J).

|                            |   |
|----------------------------|---|
| Chemical formula           | KGd(WO <sub>4</sub> ):Nd  |
| Lattice constants          | a = 8.095 Å, b = 10 Å, c = 7.588 Å  |
| Optical orientation        | n <sub>g</sub> = b, n <sub>p</sub> c = 20 deg   |
| Angle between optical axis | 86.5 angular grad   |
| Density                    | 7.27 g/cm <sup>3</sup>  |
| Mohs hardness              | 5   |
| Thermal conductivity       | 2.8 W/(m×grad) [100]<br>2.2 W/(m×grad) [010]<br>3.5 W/(m×grad) [001]  |
| Thermal expansion          | 4×10 <sup>-6</sup> grad <sup>-1</sup> [100]<br>3.6×10 <sup>-6</sup> grad <sup>-1</sup> [010]<br>8.5×10 <sup>-6</sup> grad <sup>-1</sup> [001] |
| Phase transition           | 1005 °C   |
| Melting point              | 1075 °C   |
| Transmission range         | 0.35–5.5 μm   |
| Refractive index           | n <sub>g</sub> = 2.033 @ 1.067 μm<br>n <sub>p</sub> = 1.937 @ 1.067 μm<br>n <sub>m</sub> = 1.986 @ 1.067 μm                                   |
| Transition                 | <sup>4</sup> F <sub>3/2</sub> → <sup>4</sup> I <sub>11/2</sub>  |
| Laser wavelength           | 1.0672 μm   |
| Fluorescence lifetime      | 120 ms  |
| Fluorescent width          | 24 cm <sup>-1</sup>   |
| Emission cross-section     | 4.3×10 <sup>-19</sup> cm <sup>-2</sup>  |
| Emission temperature drift | 8.5×10 <sup>-4</sup> nm, K <sup>-1</sup>  |

FIG. A.10 – Propriétés physiques et optiques des cristaux de Nd:KGW. *Source* : *Eksma Optics* [184].

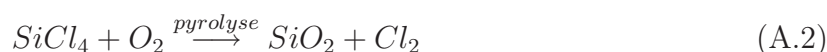
Cependant, sa croissance cristalline n'est pas facile dans de grandes dimensions (typiquement supérieures à 10 mm). De plus, ses propriétés thermomécaniques ne sont pas très avantageuses : une mauvaise conduction thermique ainsi qu'un coefficient d'expansion thermique très anisotrope engendrent des effets thermiques très importants, tels que



le phénomène de lentille thermique. En revanche, il possède une forte susceptibilité non linéaire du troisième ordre et donc un effet Raman, ce qui permet de réaliser directement de nouvelles longueurs d'ondes, telle que  $1,54 \mu m$  (longueur d'onde de sécurité oculaire). Cette dernière propriété est particulièrement adaptée aux applications médicales.

## A.2 Silice Suprasil / Silice Herasil (Heraeus)

La silice  $SiO_2$  peut être obtenue par fusion de quartz naturel dans un four électrique (silice fondue) ou de manière synthétique par hydrolyse ou pyrolyse du  $SiCl_4$  (silice synthétique) selon les réactions chimiques :



Les caractéristiques des deux types de verres Herasil (silice fondue) et Suprasil (silice synthétique) fabriqués par Heraeus [185] sont données en figure A.11.

| Technical properties     |                   | Suprasil               | Homosil/Herasil/<br>Infrasil/HOO |
|--------------------------|-------------------|------------------------|----------------------------------|
| <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    | N/mm <sup>2</sup> | (at 20°C)              |                                  |
|                          |                   | 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                             |
|                          |                   | 1200                   | 1300                             |
| Mean                     | 0 ... 100°C       | 772                    |                                  |
| specific heat            | 0 ... 500°C       | 964                    |                                  |
|                          | J/kg · K          | 1052                   |                                  |
| Heat conductivity        | 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                     | 0 ... 100°C       | 5.1 · 10 <sup>-7</sup> |                                  |
| expansion                | 0 ... 200°C       | 5.8 · 10 <sup>-7</sup> |                                  |
| coefficient              | 0 ... 300°C       | 5.9 · 10 <sup>-7</sup> |                                  |
|                          | K <sup>-1</sup>   | 5.4 · 10 <sup>-7</sup> |                                  |
|                          | 0 ... 900°C       | 4.8 · 10 <sup>-7</sup> |                                  |
|                          | -50 ... 0°C       | 2.7 · 10 <sup>-7</sup> |                                  |
|                          | 0 ... -160°C      | 0                      |                                  |

| Electrical data of quartz glass                                  |                         |      |
|--|-------------------------|------|
| <b>Resistivity in Ω · m</b>                                      |                         |      |
| 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>   |      |
| <b>Dielectric strength in kV/mm</b><br>(sample thickness ≥ 5 mm) |                         |      |
| 20°C   | 25 ... 40               |      |
| 500°C  | 4 ... 5                 |      |
| <b>Dielectric loss angle (tg δ)</b>                              |                         |      |
| 1 kHz  | 0.0005                  |      |
| 1 ... 1000 MHz   | 0.0001                  |      |
| 3 · 10 <sup>4</sup> MHz  | 0.0004                  |      |
| <b>Dielectric constant (ε)</b>                                   |                         |      |
| 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<br>ppm (µg/g) | Homosil/Herasil/<br>Infrasil/HOO<br>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.11 – Propriétés physiques des différents verres Heraeus. *Source : Heraeus [185].*

La différence de fabrication entre la silice fondue et synthétique se traduit par un écart important de concentration d'impuretés dans le matériau (cf. figure A.11). Ces écarts ont des répercussions directes sur les spectres de transmission et d'absorption des deux types de verres Heraasil et Suprasil (cf. figures A.12 et A.13). Nous pouvons en particulier observer des différences d'absorption dans le domaine UV. L'intérêt de la silice Suprasil est de présenter une meilleure transmission et une plus grande résistance au flux laser dans l'UV. Notons que d'autres fabricants développent des silices UV de bonne qualité. Nous pouvons citer entre autre Corning et Schott.

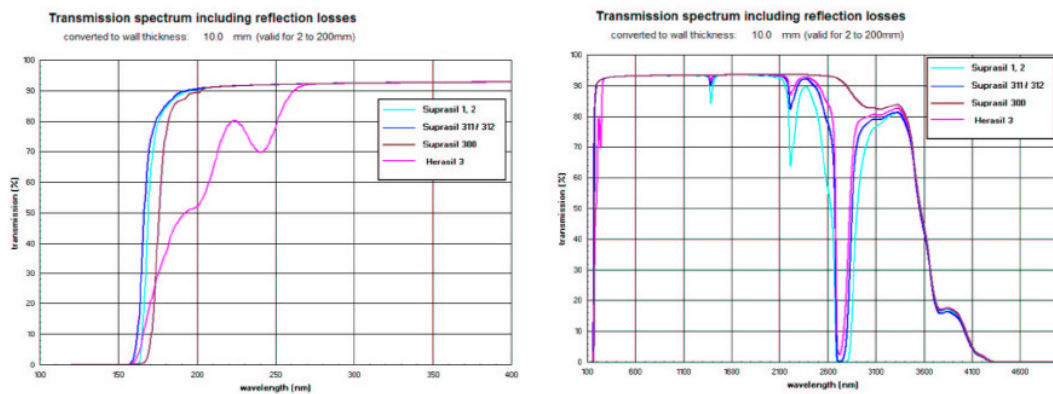


FIG. A.12 – Spectre de transmission dans l'UV et dans l'infrarouge de différents verres Heraeus. *Source : Heraeus [185].*

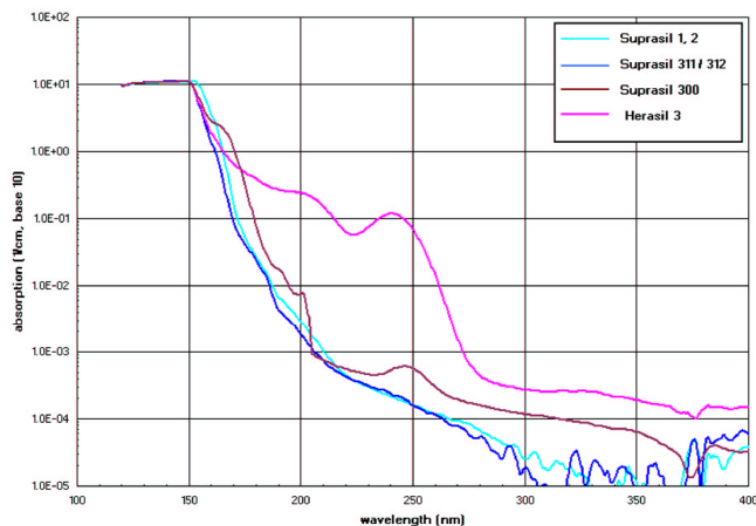


FIG. A.13 – Spectre d'absorption UV de différents verres Heraeus. *Source : Heraeus [185].*

# Bibliographie

- [1] P. VOLTO, *Etude de l'endommagement laser dans les couches minces optiques*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 1998.
- [2] A. GATTO, *Défauts locaux absorbants et diffusants : rôle et évolution dans l'irradiation, corrélation, étude multi-échelles*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 1999.
- [3] A. DURING, *Microscopie photothermique et endommagement laser*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 2002.
- [4] L. GALLAIS, *Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 2002.
- [5] B. BERTUSSI, *Etude des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser dans les composants optiques : vers une amélioration de la tenue au flux*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 2005.
- [6] H. KROL, *Etude de l'endommagement laser dans les composants optiques pour le domaine de l'infrarouge*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 2006.
- [7] J. CAPOULADE, *Etude multi-échelle de l'initiation de l'endommagement laser en surface et dans le volume de matériaux optiques*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 2008.
- [8] W. W. DULEY, *CO<sub>2</sub> laser: effects and applications*. Academic Press, 1976.
- [9] E. MENDEZ, K. M. NOWAK, H. J. BAKER, F. J. VILLARREAL et D. R. HALL, « Localized CO<sub>2</sub> laser damage repair of fused silica optics », *Applied Optics*, vol. 45, p. 5358–5367, 2006.
- [10] M. C. GOWER, « Industrial applications of laser micro-machining », *Optics Express*, vol. 7, no. 2, p. 56–57, 2000.
- [11] <https://lasers.llnl.gov/>.
- [12] C. A. HAYNAM, P. J. WEGNER, J. M. AUERBACH, M. W. BOWERS, S. N. DIXIT, G. V. ERBERT, G. M. HEESTAND, M. A. HENESIAN, M. R. HERMANN, K. S. JANCAITIS, K. R. MANES, C. D. MARSHALL, N. C. MEHTA, J. MENAPACE, E. MOSES, J. R. MURRAY, M. C. NOSTRAND, C. D. ORTH, R. PATTERSON, R. A. SACKS, M. J. SHAW, M. SPAETH, S. B. SUTTON, W. H. WILLIAMS, C. C. WIDMAYER,

- R. K. WHITE, S. T. YANG et B. M. V. WONTERGHEM, « National Ignition Facility laser performance status », *Applied Optics*, vol. 46, p. 3276–3303, 2007.
- [13] <http://www-lmj.cea.fr/html/cea.htm>.
- [14] C. LABAUNE, A. ROUSSEL, C. ROUYER et G. THIELL, « Les lasers intenses Mégajoule et PETAL : de somptueux outils pour la recherche », *Photoniques*, vol. 28, p. 26–35, mars-avril 2007.
- [15] C. CAVAILLER, N. A. FLEUROT et J.-M. D. NICOLA, « LIL and LMJ laser facility status », *Proc. SPIE*, vol. 5580, p. 443–454, 2005.
- [16] <http://www.hiper-laser.org/>.
- [17] <http://www.extreme-light-infrastructure.eu/>.
- [18] J.-P. CHAMBARET et F. CANOVA, « Le projet ELI-ILE : une infrastructure laser de puissance unique au monde pour la physique de l'extrême », *Photoniques*, vol. 28, p. 36–41, mars-avril 2007.
- [19] J. P. CHAMBARET, F. CANOVA, R. MARTENS, G. LOPEZ-CHERIAUX, G. MOUROU, A. COTEL, C. L. BLANC, F. DRUON, P. GEORGES, N. FORGET, F. PLE et M. PITTMAN, « ILE 25 PW single laser beamline : The French step for the Extreme Light Infrastructure (ELI) », *Quantum Electronics and Laser Science Conference*, 2007.
- [20] [http://smsc.cnes.fr/MSL09/Fr/GP\\_chemcam.htm](http://smsc.cnes.fr/MSL09/Fr/GP_chemcam.htm).
- [21] E. DURAND, S. MULLER, S. MAURICE, M. SACCOCIO, B. FAURE et A. GABORIAUD, « Le développement d'un laser pour l'espace : l'exemple du projet CHEMCAM », *Photoniques*, vol. 28, p. 42–44, mars-avril 2007.
- [22] [http://www.esa.int/esaLP/ESAV062VM0C\\_LPadmaeolus\\_0.html](http://www.esa.int/esaLP/ESAV062VM0C_LPadmaeolus_0.html).
- [23] « Determination of laser induced threshold on optical surfaces - part 1 : 1-on-1 », *Norme ISO 11254-1*, 2000.
- [24] « Determination of laser induced threshold on optical surfaces - part 2 : S-on-1 », *Norme ISO 11254-2*, 2001.
- [25] S. MAURICE, R. C. WIENS, M. SACCOCCIO, L. PARÈS, D. KOUACH, B. BARRACLOUGH, B. SALLÉ et S. M. CLEGG, « Expected performances of the ChemCam instrument for the Mars Science Laboratory (MSL) Rover », *Lunar and Planetary Science XXXVIII*, vol. 1563, 2007.
- [26] R. MONCORGÉ, B. CHAMBON, J. RIVOIRE, N. GAMIER, E. DESCROIX, P. LAPORTE, H. GUILLET, S. ROY, J. MARESCAL, D. PELENC, J. DOURY et P. FARGE, « Nd doped crystals for medical laser applications », *Optical Materials*, vol. 8, p. 109–119, 1997.
- [27] V. GRACHEV, G. MALOVICHKO, V. PANKRATOV, T. RUST et Y. BURAK, « Flight to Mars and radiation defects in  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  and  $\text{KTiOPO}_4$  crystals », *Phys. Stat. Sol.*, vol. 4, no. 3, p. 1288–1292, 2007.
- [28] F. WAGNER, « Literature study on the laser damage risk for the CHEMCAM laser components », *Institut Fresnel Marseille - contrat THALES / CNES n° 4700015184*, Octobre 2005.

- 
- [29] F. WAGNER, A. HILDENBRAND, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Etude expérimentale de l'endommagement laser des cristaux du laser CHEMCAM : Barreau et SLAB en Nd:KGW, cellule de Pockels en RTP », *Institut Fresnel Marseille - contrat THALES / CNES n° 260090*, juillet 2006.
- [30] F. WAGNER, A. HILDENBRAND, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Test de qualification en endommagement laser des cristaux du laser CHEMCAM : Barreau et SLAB en Nd:KGW, cellule de Pockels en RTP », *Institut Fresnel Marseille - contrat THALES / CNES n° 261639*, février 2008.
- [31] [http://www.rop.cnrs.fr/JNRDP\\_2007/materiaux\\_optique\\_II/H\\_Bercegol.pdf](http://www.rop.cnrs.fr/JNRDP_2007/materiaux_optique_II/H_Bercegol.pdf).
- [32] P. DEMANGE, R. A. NEGRES, A. M. RUBENCHIK, H. B. RADOUSKY, M. D. FEIT et S. G. DEMOS, « Understanding and predicting the damage performance of  $\text{KD}_x\text{H}_{2-x}\text{PO}_4$  crystals under simultaneous exposure to 532- and 355-nm pulses », *Applied Physics Letters*, vol. 89, p. 181922–1, 2006.
- [33] C. W. CARR et J. M. AUERBACH, « Effect of multiple wavelengths on laser-induced damage in  $\text{KH}_{2-x}\text{D}_x\text{PO}_4$  crystals », *Optics Letters*, vol. 31, no. 5, p. 595–597, 2006.
- [34] R. M. WOOD, *Laser-Induced damage of optical materials*. Institut of Physics Publishing, 2003.
- [35] P. LAURENS, C. DUBOUCHET et D. KECHMAIR, *Application des lasers aux traitements de surface*. Techniques de l'Ingénieur, 2005.
- [36] D. PANTELIS, *Laser de puissance : interaction, traitement, utilisation*. Techniques de l'Ingénieur, 2005.
- [37] N. BLOEMBERGEN, « Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics », *Applied Optics*, vol. 12, p. 661–664, 1973.
- [38] M. SPARKS, D. L. MILLS, R. WARREN, T. HOLSTEIN, A. A. MARADUDIN, L. J. SHAM, E. LOH et D. F. KING, « Theory of electron-avalanche breakdown in solids », *Physical Review B*, vol. 24, p. 3519–3536, 1981.
- [39] A. M. RUBENCHIK et M. D. FEIT, « Initiation, growth, and mitigation of UV-laser-induced damage in fused silica », *Proc. SPIE*, vol. 4679, p. 79–95, 2002.
- [40] L. GALLAIS, J. CAPOULADE, F. WAGNER, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Analysis of material modifications induced during laser damage in  $\text{SiO}_2$  thin films », *Optics Communications*, vol. 272, p. 221–226, 2007.
- [41] R. W. HOPPER et D. R. UHLMANN, « Mechanism of inclusion damage in laser glass », *Journal of Applied Physics*, vol. 41, p. 4023–4037, 1970.
- [42] G. DUCHATEAU et A. DYAN, « Coupling statistics and heat transfer to study laser-induced crystal damage by nanosecond pulses », *Optics Express*, vol. 15, no. 8, p. 4557, 2007.
- [43] L. GALLAIS, J. CAPOULADE, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Investigation of nanodefekt properties in optical coatings by coupling measured and simulated laser damage statistics », *Journal of Applied Physics*, vol. 104, p. 053120, 2008.



- 
- [44] S. PAPERNOV et A. W. SCHMID, « Correlations between embedded single gold nanoparticles in SiO<sub>2</sub> thin film and nanoscale crater formation induced by pulsed-laser radiation », *Journal of Applied Physics*, vol. 92, no. 10, p. 5720–5728, 2002.
- [45] S. PAPERNOV, « Using gold nanoparticles as artificial defects in thin films : What have we learned about laser-induced damage driven by localized absorbers? », *Proc. SPIE*, vol. 6403, p. 64030D, 2007.
- [46] F. BONNEAU, P. COMBIS, J.-L. RULLIER, J. VIERNE, M. PELLIN, M. SAVINA, M. BROYER, E. COTTANCIN, J. TUAILLON, M. PELLARIN, L. GALLAIS, J.-Y. NATOLI, M. PERRA, H. BERCEGOL, L. LAMAIGNÈRE, M. LOISEAU et J. T. DONOHUE, « Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica », *Applied Physics B*, vol. 75, no. 8, p. 803–815, 2002.
- [47] J.-Y. NATOLI, L. GALLAIS, B. BERTUSSI, A. DURING, M. COMMANDRÉ, J.-L. RULLIER, F. BONNEAU et P. COMBIS, « Localized pulsed laser interaction with submicronic gold particles embedded in silica : a method for investigating laser damage initiation », *Optics Express*, vol. 11, no. 7, p. 824–829, 2003.
- [48] F. BONNEAU, P. COMBIS, J.-L. RULLIER, M. COMMANDRÉ, A. DURING, J.-Y. NATOLI, M. J. PELLIN, M. R. SAVINA, E. COTTANCIN et M. PELLARIN, « Observation by photothermal microscopy of increased silica absorption in laser damage induced by gold nanoparticles », *Applied Physics Letters*, vol. 83, no. 19, p. 3855–3857, 2003.
- [49] L. SKUJA, H. HOSONO et M. HIRANO, « Laser-induced color centers in silica », *Applied Physics Letters*, vol. 52, p. 857–859, 1988.
- [50] O. M. EFIMOV, K. GABEL, S. V. GARNOV, L. B. GLEBOV, S. GRANTHAM, M. RICHARDSON et M. J. SOILEAU, « Color-center generation in silicate glasses exposed to infrared femtosecond pulses », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 15, p. 193–199, 1998.
- [51] G. PHILIPPS et J. VATER, « 1.06  $\mu\text{m}$  absorption caused by stable color centers in flash lamp pumped Nd:YAG laser rod », *Applied Optics*, vol. 32, p. 3210–3216, 1993.
- [52] B. BERTUSSI, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Effect of polishing process on silica surface laser-induced damage threshold at 355 nm », *Optics Communications*, vol. 242, p. 227–231, 2004.
- [53] J. NEAUPORT, D. VALLA, J. DUCHESNE, P. BOUCHUT, L. LAMAIGNÈRE, J. BIGARRÉ et N. DAURRIOS, « Building high damage threshold surfaces at 351 nm », *Proc. SPIE*, vol. 5252, p. 131–139, 2004.
- [54] F. Y. GENIN, M. D. FEIT, M. R. KOZLOWSKI, A. M. RUBENCHIK, A. SALLES et J. YOSHIYAMA, « Rear-surface laser damage on 355-nm silica optics owing to fresnel diffraction on front-surface contamination particles », *Applied Optics*, vol. 39, p. 3654–3663, 2000.
- [55] G. GUÉHENNEUX, P. BOUCHUT, M. VEILLEROT, A. PEREIRA et I. TOVENA, « Impact of outgassing organic contamination on laser-induced damage threshold of optics : effect of laser conditioning », *Proc. SPIE*, vol. 5991, p. 59910F, 2006.

- 
- [56] S. PALMIER, *Etude de la pollution particulaire d'une chaîne laser de puissance*. Thèse doctorat, Bordeaux I, 2007.
- [57] F. Y. GENIN, A. SALLES, T. V. PISTOR et L. L. CHASE, « Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces », *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 18, p. 2607–2616, 2001.
- [58] A. SALLES, F. Y. GENIN et J. M. YOSHIYAMA, « Laser-induced damage of fused silica at 355 nm initiated at scratches », *Proc. SPIE*, vol. 3244, p. 341–347, 1998.
- [59] H. BERCEGOL, R. COURCHINOX, M. JOSSE et J.-L. RULLIER, « Observation of laser-induced damage on fused silica initiated by scratches », *Proc. SPIE*, vol. 5647, p. 78–85, 2005.
- [60] M. R. KOZLOWSKI, M. STAGGS, M. BALOOCH, R. TENCH et W. SIEKHAUS, « The surface morphology of as-deposited and laser damaged dielectric mirror coatings studied in situ by atomic force microscope », *Proc. SPIE*, vol. 1556, p. 68–78, 1991.
- [61] M. R. KOZLOWSKI et R. CHOW, « The role of defects in laser multilayer coatings », *Proc. SPIE*, vol. 2114, p. 640, 1994.
- [62] M. POULINGUE, *Le rôle des nodules dans l'endommagement laser des miroirs à 1.06  $\mu\text{m}$* . Thèse doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1999.
- [63] C. STOLZ, M. FEIT et T. PISTOR, « Laser intensification by spherical inclusions embedded within multilayer coatings », *Applied Optics*, vol. 45, p. 1594–1601, 2006.
- [64] T. SASAKI, Y. MORI, M. YOSHIMURA, Y. K. YAP et T. KAMIMURA, « Recent development of nonlinear optical borate crystals: key materials for generation of visible and UV light », *Materials Science and Engineering*, vol. 30, p. 1–54, 2000.
- [65] B. E. A. SALEH et M. C. TEICH, *Fundamentals of photonics*, vol. Optics of anisotropic media. New York: Wiley-Interscience, 1991.
- [66] M. ROTH, M. TSEITLIN et N. ANGERT, « Oxide crystals for electro-optic Q-Switching of lasers », *Glass Physics and Chemistry*, vol. 31, no. 1, p. 86–95, 2005.
- [67] H. ALBRECHT, C. BONNIN, Y. GROMFELD et M. HERRMANN, « Characterization of RbTiOPO<sub>4</sub> crystal for nonlinear and electro-optic applications », *Proc. SPIE*, vol. 6100, p. 61001F, 2006.
- [68] A. HILDENBRAND, F. WAGNER, J.-Y. NATOLI, M. COMMANDRÉ, H. ALBRECHT et F. THEODORE, « Laser damage investigation in RbTiOPO<sub>4</sub> crystals: a study on the anisotropy of the laser induced damage threshold », *Proc. SPIE*, vol. 6403, p. 64031W, 2007.
- [69] G. C. BHAR, A. M. RUDRA, P. K. DATTA, U. N. ROY, V. K. WADHAWAN et T. SASAKI, « A comparative study of laser second harmonic generation in some crystals », *Pramana J. phys.*, vol. 44, no. 1, p. 45–53, 1995.
- [70] I. TORDJMAN, R. MASSE et J. C. GUITEL, « Structure cristalline du monophosphate KTiPO<sub>5</sub> », *Z. Kristallogr.*, vol. 139, p. 103–115, 1974.



- [71] K. ZHANG et X. WANG, « Structure sensitive properties of KTP-type crystals », *Chinese Science Bulletin*, vol. 46, no. 24, p. 2028–2036, 2001.
- [72] J. D. BIERLEIN et H. VANHERZEELE, « Potassium titanyl phosphate: Properties and new applications », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 6, no. 4, p. 622–633, 1989.
- [73] G. D. STUCKY, M. L. F. PHILLIPS et T. E. GIER, « The potassium titanyl phosphate structure field: a model for new nonlinear optical materials », *Chem. Mater.*, vol. 1, no. 5, p. 492–509, 1989.
- [74] M. MUNOWITZ, R. H. JARMAN et J. F. HARRISON, « Theoretical study of the nonlinear optical properties of  $\text{KTiOPO}_4$ : Effects of Ti-O-Ti bond angles and oxygen electronegativity », *Chem. Mater.*, vol. 5, p. 1257–1267, 1993.
- [75] C. CANALIAS, J. HIROHASHI, V. PASISKEVICIUS et F. LAURELL, « Polarization-switching characteristics of flux-grown  $\text{KTiOPO}_4$  and  $\text{RbTiOPO}_4$  at room temperature », *J. Appl. Phys.*, vol. 97, p. 124105, 2005.
- [76] M. ROTH, M. TSEITLIN et N. ANGERT, « Composition-dependent electro-optic and nonlinear optical properties of KTP-family crystals », *Opt. Mat.*, vol. 28, p. 71–76, 2006.
- [77] Y. S. OSELEDCHIK, A. I. PISAREVSKY, A. L. PROSVIRNIN, V. V. STARSHENKO et N. V. SVITANKO, « Nonlinear optical properties of the flux grown  $\text{RbTiOPO}_4$  crystal », *Opt. Mat.*, vol. 3, p. 237–242, 1994.
- [78] C. CHEN, Y. WU, A. JIANG, B. WU, G. YOU, R. LI et S. LIN, « New nonlinear-optical crystal:  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  », *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 6, p. 616–621, 1989.
- [79] S. F. RADAEV, N. I. SOROKIN et V. I. SIMONOV, « Atomic structure and one-dimensional ion conductivity of lithium triborate  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  », *Sov. Phys.-Solid State*, vol. 33, no. 12, p. 2024–2025, 1991.
- [80] D. XUE et S. ZHANG, « Nonlinear optical properties of  $(\text{B}_3\text{O}_7)^{5-}$  and  $(\text{B}_3\text{O}_6)^{3-}$  groups », *Applied Physics A*, vol. 65, p. 451–456, 1997.
- [81] D. N. NIKOGOSYAN, « Lithium triborate LBO: a review of its properties and applications », *Applied Physics A*, vol. 58, p. 181–190, 1994.
- [82] C.-L. ZHANG, L.-X. HUANG, W.-N. ZHOU, G. ZHANG, H.-D. HOU, Q.-F. RUAN, W. LEI, S.-J. QIN, F.-H. LU, Y.-B. ZUO, H.-Y. SHEN et G.-F. WANG, « Growth of KTP crystals with high damage threshold by hydrothermal method », *Journal of Crystal Growth*, vol. 292, p. 364–367, 2006.
- [83] J. JACCO, G. M. LOIACONO, M. JASO, G. MIZELL et B. GREENBERG, « Flux growth and properties of  $\text{KTiOPO}_4$  », *Journal of Crystal Growth*, vol. 70, p. 484–488, 1984.
- [84] I. BHAUMIK, S. GANESAMOORTHY, R. BHATT, R. SUNDAR, A. K. KARNAL et V. K. WADHAWAN, « Novel seeding technique for growing  $\text{KTiOPO}_4$  single crystals by the TSSG method », *Journal of Crystal Growth*, vol. 243, p. 522–525, 2002.

- 
- [85] Y. S. OSELEDCHIK, S. P. BELOKRYSS, V. V. OSADCHUK, A. L. PROSVIRNIN, A. F. SELEVICH, V. V. STARSHENKO et K. V. KUZEMCHENKO, « Growth of  $\text{RbTiOPO}_4$  single crystals from phosphate systems », *Journal of Crystal Growth*, vol. 125, p. 639–643, 1992.
- [86] C. V. KANNANA, S. G. MOORTHY, V. KANNANA, C. SUBRAMANIANA et P. RAMASAMY, « TSSG of  $\text{RbTiOPO}_4$  single crystals from phosphate flux and their characterization », *Journal of Crystal Growth*, vol. 245, p. 289–296, 2002.
- [87] C.-L. ZHANG, Z.-G. HUB, L.-X. HUANG, W.-N. ZHOU, Z. LU, G. ZHANG, Y.-C. LIU, Y.-B. ZOU, F.-H. LU, H.-D. HOU, S.-J. QIN, H.-X. ZHANG et L. BAI, « Growth and optical properties of bulk KTP crystals by hydrothermal method », *Journal of Crystal Growth*, 2008.
- [88] S. ZHAO, C. HUANG et H. ZHANG, « Crystal growth and properties of lithium triborate », *Journal of Crystal Growth*, vol. 99, p. 805–810, 1990.
- [89] S. SABHARWAL, B. TIWARI et SANGEETA, « Investigations on the growth of  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  crystal by top-seeded solution growth technique », *Journal of Crystal Growth*, vol. 263, p. 327–331, 2004.
- [90] C. KANNANA, H. KIMURA, A. MIYAZAKI et P. RAMASAMY, « Nucleation, growth and characterization of  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  single crystals », *Journal of Crystal Growth*, vol. 275, p. 769–774, 2005.
- [91] E. G. TSVETKOV, N. A. PYLNEVA et A. V. DAVYDOV, « Some aspects of lithium–boron melts structuring », *Journal of Crystal Growth*, vol. 292, p. 358–363, 2006.
- [92] J. P. MARIOGE, *Surfaces optiques*. EDP Sciences, Paris, 2000.
- [93] L. NEVOT et P. CROCE, « Caractérisation des surfaces par réflexion rasante de rayons X. application à l'étude du polissage de quelques verres silicates. », *Revue Phys. Appl.*, vol. 14, p. 761–779, 1980.
- [94] H. KROL, L. GALLAIS, M. COMMANDRÉ, C. GRÈZES-BESSET, D. TORRICINI et G. LAGIER, « Influence of polishing and cleaning on the laser-induced damage threshold of substrates and coatings at 1064 nm », *Optical Engineering*, vol. 46, no. 2, 2007.
- [95] J. NEAUPORT, L. LAMAIGNERE, H. BERCEGOL, F. PILON et J.-C. BIROLLEAU, « Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm », *Optics Express*, vol. 13, no. 25, p. 10163–10171, 2005.
- [96] J. NEAUPORT, P. CORMONT, L. LAMAIGNERE, C. AMBARD, F. PILON et H. BERCEGOL, « Concerning the impact of polishing induced contamination of fused silica optics on the laser-induced damage density at 351 nm », *Optics Communications*, vol. 281, no. 14, p. 3802–3805, 2008.
- [97] L. GALLAIS, H. KROL, J.-Y. NATOLI, M. COMMANDRÉ, M. CATHELINAUD, L. ROUSSEL, M. LEQUIME et C. AMRA, « Laser damage resistance of silica thin films deposited by electron beam deposition, ion assisted deposition, reactive low

- voltage ion plating and dual ion beam sputtering », *Thin Solid Films*, vol. 515, no. 7, p. 3830–3836, 2007.
- [98] L. GALLAIS, J. CAPOULADE, J.-Y. NATOLI, M. COMMANDRÉ, M. CATHELINAUD, C. KOC et M. LEQUIME, « Laser damage resistance of hafnia thin films deposited by electron beam deposition, reactive low voltage ion plating, and dual ion beam sputtering », *Applied Optics*, vol. 47, no. 13, p. 107–113, 2008.
- [99] N. SANNER, B. BUSSIERE, O. UTÉZA, A. LERAY, T. ITINA, M. SENTIS, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Influence of the beam-focus size on femtosecond laser-induced damage threshold in fused silica », *Proc. SPIE*, vol. 6881, p. 68810W, 2008.
- [100] A. E. CHMEL, « Fatigue laser-induced damage in transparent materials », *Materials Science and Engineering B*, vol. 49, no. 3, p. 175–190, 1997.
- [101] J.-Y. NATOLI, B. BERTUSSI et M. COMMANDRÉ, « Effect of multiple laser irradiations on silica at 1064 and 355 nm », *Optics Letters*, vol. 30, no. 10, 2005.
- [102] C. R. WOLFE, M. R. KOZLOWSKI, J. H. CAMPBELL, M. STAGGS et F. RAINIER, « Permanent laser conditioning of thin film optical materials », *United States Patent*, vol. 5, p. 472, 1995.
- [103] R. BRUSASCO, B. PENETRANTE, J. BUTLER, S. MARICLE et J. PETERSON, « CO<sub>2</sub> laser polishing for reduction of 351 nm surface damage initiation in fused silica », *Proc. SPIE*, vol. 4679, p. 34–39, 2002.
- [104] P. A. TEMPLE, W. H. LOWDERMILK et D. MILAM, « Carbon dioxide laser polishing of fused silica surfaces for increased laser damage resistance at 1064 nm », *Applied Optics*, vol. 21, p. 3249–3255, 1982.
- [105] J. E. PETERSON, S. M. MARICLE, R. M. BRUSACO et B. M. PENETRANTE, « Reduction of damage initiation density in fused silica optics via UV laser conditioning », *United States Patent*, vol. 0046579, 2002.
- [106] M. C. STAGGS, M. YAN et M. J. RUNKEL, « Laser raster conditioning of KDP and DKDP crystals using XeCl and Nd:YAG lasers », *Proc. SPIE*, vol. 4347, 2001.
- [107] C. MAUNIER, B. BERTUSSI, D. DAMIANI, T. DONVAL, G. DUCHATEAU, A. DYAN, G. GABORIT, L. LAMAIGNÈRE, X. LEBORGNE, M. LOISEAU, H. MATHIS et G. RAZE, « Comparison of ns and sub-ns laser conditioning of KDP and DKDP crystals for high power lasers », *Proc. SPIE*, vol. 6720, 2007.
- [108] L. LAMAIGNÈRE, S. BOUILLET, R. COURCHINOX, T. DONVAL, M. JOSSE, J.-C. PONCETTA et H. BERCEGOL, « An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials », *Review of Scientific Instruments*, vol. 78, p. 103105, 2007.
- [109] M. BASS et H. H. BARRETT, « Laser-induced damage probability at 1.06 micrometer and 0.69 micrometer », *Applied Optics*, vol. 12, p. 690–699, 1973.
- [110] J. O. PORTEUS et S. C. SEITEL, « Absolute onset of optical surface damage using distributed defect ensembles », *Applied Optics*, vol. 23, p. 3796–3805, 1984.

- 
- [111] R. M. O'CONNELL, T. F. DEATON et T. T. SAITO, « Single- and multiple-shot laser-damaged properties of commercial grade PMMA », *Applied Optics*, vol. 23, p. 682–687, 1984.
- [112] R. O'CONNELL, « Onset threshold analysis of defect-driven surface and bulk laser damage », *Applied Optics*, vol. 31, p. 4143–4153, 1992.
- [113] R. H. PICARD, D. MILAM et R. A. BRADBURY, « Statistical analysis of defect-caused laser damage in thin films », *Applied Optics*, vol. 16, p. 1563, 1977.
- [114] J.-Y. NATOLI, L. GALLAIS, H. AKHOUAYRI et C. AMRA, « Laser-induced damage of materials in bulk, thin-film, and liquid forms », *Applied Optics*, vol. 41, p. 3156–3166, 2002.
- [115] L. GALLAIS, J.-Y. NATOLI et C. AMRA, « Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses », *Optics Express*, vol. 10, p. 1465–1474, 2002.
- [116] H. KROL, L. GALLAIS, C. GRÈZES-BESSET, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing », *Optics Communications*, vol. 256, p. 184–189, 2005.
- [117] H. A. MACLEOD, *Thin film optical filters, 3<sup>d</sup> Edition*. Institute of Physics Publishing, 2001.
- [118] J. CAPOULADE, J.-Y. NATOLI, B. BERTUSSI, M. POMMIES, A. DYAN, D. DAMIAN et H. PIOMBINI, « Influence of the laser beam size on laser-induced damage in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  », *Proc. SPIE*, vol. 6403, p. 64031R, 2007.
- [119] P. DEMANGE, R. A. NEGRES, H. B. RADOUSKY et S. G. DEMOS, « Differentiation of defect populations responsible for bulk laser-induced damage in potassium dihydrogen phosphate crystals », *Optical Engineering*, vol. 45, 2006.
- [120] J.-Y. NATOLI, J. CAPOULADE, A. CIAPPONI, A. HILDENBRAND, F. WAGNER et L. GALLAIS, « Rapport final relatif au contrat n°46291 entre le CEA Le Ripault (Monts) et l'Institut Fresnel Marseille », juillet 2008.
- [121] L. D. MERKLE, N. KOUMVAKALIS et M. BASS, « Laser-induced bulk damage in  $\text{SiO}_2$  at 1.064, 0.532 and 0.355  $\mu\text{m}$  », *Journal of Applied Physics*, vol. 55, no. 3, p. 772–775, 1983.
- [122] B. C. STUART, M. D. FEIT, A. M. RUBENCHIK, B. W. SHORE et M. D. PERRY, « Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses », *Physical Review Letters*, vol. 74, p. 2248, 1995.
- [123] C. W. CARR, J. B. TRENHOLME et M. L. SPAETH, « Effect of temporal pulse shape on optical damage », *Applied Physics Letters*, vol. 90, p. 041110, 2007.
- [124] J. M. LIU, « Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes », *Optics Letters*, vol. 7, no. 5, p. 196–198, 1982.
- [125] N. KUZUU, K. YOSHIDA, H. YOSHIDA, T. KAMIMURA et N. KAMISUGI, « Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica at 1064, 532, 355 and 266 nm : evidence of different damage mechanisms between 266 nm and longer wavelengths », *Applied Optics*, vol. 38, no. 12, p. 2510–2515, 1999.

- 
- [126] A. DURING, C. FOSSATI et M. COMMANDRÉ, « Multiwavelength imaging of defects in ultraviolet optical materials », *Applied Optics*, vol. 41, no. 16, p. 3118–3126, 2002.
- [127] A. HILDENBRAND, F. R. WAGNER, H. AKHOUAYRI, J.-Y. NATOLI et M. COMMANDRÉ, « Accurate metrology for laser damage measurements in nonlinear crystals », *Optical Engineering*, vol. 47, no. 8, p. 083603, 2008.
- [128] L. GALLAIS et J.-Y. NATOLI, « Optimized metrology for laser-damage measurement: application to multiparameter study », *Applied Optics*, vol. 42, no. 6, p. 960–971, 2003.
- [129] R. J. BOLT et M. V. der MOOREN, « Single shot bulk damage threshold and conversion efficiency measurements on flux grown  $\text{KTiOPO}_4$  », *Optics Communications*, vol. 100, p. 399–410, 1993.
- [130] J. J. STAMNES, G. S. SITHAMBARANATHAN, M. JAIN, J. K. LOTSBERG et V. DHAYALAN, « Focusing of electromagnetic waves into a biaxial crystal », *Optics Communications*, vol. 226, p. 107–123, 2003.
- [131] M. JAIN, J. K. LOTSBERG, J. J. STAMNES et O. FRETTE, « Effects of aperture size on focusing of electromagnetic waves into a biaxial crystal », *Optics Communications*, vol. 266, p. 438–447, 2006.
- [132] M. JAIN, J. K. LOTSBERG et J. J. STAMNES, « Comparisons of exact and paraxial intensities of electromagnetic waves focused into uniaxial crystals », *Journal of Optics A*, vol. 8, no. 9, p. 709–719, 2006.
- [133] J. K. LOTSBERG, X. ZHAO, M. JAIN, V. DHAYALAN, G. S. SITHAMBARANATHAN, J. J. STAMNES et D. JIANG, « Focusing of electromagnetic waves into a biaxial crystal, experimental results », *Optics Communications*, vol. 250, p. 231–240, 2005.
- [134] K. ASAUMI, « Fundamental walk-off compensated type II second harmonic generation in  $\text{KTiOPO}_4$  and  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  », *Applied Optics*, vol. 37, no. 3, 1998.
- [135] J. P. FÈVE, B. BOULANGER et G. MARNIER, « Experimental study of walk-off attenuation for type II second harmonic generation in KTP », *IEEE J. Quant. Electr.*, vol. 31, no. 8, 1995.
- [136] J.-J. ZONDY, M. ABED et S. KHODJA, « Twin-crystal walk-off compensated type II second harmonic generation: single-pass and extra-enhanced experiments in  $\text{KTiOPO}_4$  », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 11, no. 12, 1994.
- [137] D. EGER, M. B. ORON, A. BRUNNER, M. KATZ, Y. TZUK et A. ENGLANDER, « Doubling the frequency of depleted fundamental waves in periodically poled  $\text{KTiOPO}_4$  », *Applied Physics Letters*, vol. 76, no. 4, 2000.
- [138] S. FAVRE, *Génération de deuxième et troisième harmonique avec un laser Nd:YAG en régime pulsé libre*. Thèse doctorat, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne, 2001.
- [139] H. BERCEGOL, L. LAMAIGNERE, B. LE-GARREC, M. LOISEAU et P. VOLTO, « Self-focusing and rear surface damage in a fused silica window at 1064 nm and 355 nm », *Proc. SPIE*, vol. 4932, p. 276–285, 2003.



- 
- [140] W. G. WAGNER, H. A. HAUS et J. H. MARBURGER, « Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation », *Physical Review*, vol. 175, no. 1, p. 256–266, 1968.
- [141] T. OLIVIER, *Contribution à la métrologie de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaires dans le régime nanoseconde: Amélioration de la méthode de z-scan et simulations numériques*. Thèse doctorat, Université Paul Cézanne Aix-Marseille III, 2004.
- [142] E. L. DAWES et J. H. MARBURGER, « Computer studies of self-focusing », *Physical Review*, vol. 179, no. 3, p. 862–868, 1969.
- [143] H. LI, F. ZHOU, X. ZHANG et W. JI, « Bound electronic kerr effect and self-focusing induced damage in second-harmonic-generation crystals », *Optics Communications*, vol. 144, p. 75–81, 1997.
- [144] C. A. KLEIN, « Corrections for self-focusing in laser-damage experiments », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 10, no. 12, p. 2416–2419, 1993.
- [145] A. V. SMITH, B. DO et M. SODERLUND, « Nanosecond laser-induced breakdown in pure and Yb<sup>3+</sup> doped fused silica », *Proc. SPIE*, vol. 6403, p. 640321, 2006.
- [146] C. CARR, H. B. RADOUSKY et S. DEMOS, « Wavelength dependence of laser-induced damage: determining the damage initiation mechanisms », *Physical Review Letters*, vol. 91, no. 12, p. 127402–1, 2003.
- [147] W. LAUTERBORN, T. KURZ et M. WIESENFELDT, *Coherent optics: Fundamentals and applications*, vol. Nonlinear optics. Springer, 1999.
- [148] H. YOSHIDA, T. JITSUNO, H. FUJITA, M. NAKATSUKA, M. YOSHIMURA, T. SASAKI et K. YOSHIDA, « Investigation of bulk laser damage in KDP crystal as a function of laser irradiation direction, polarization, and wavelength », *Applied Physics B*, vol. 70, p. 195–201, 2000.
- [149] M. RUNKEL et A. K. BURNHAM, « Differences in bulk damage probability distributions between tripler and z-cuts of KDP and DKDP at 355 nm », *Proc. SPIE*, vol. 4347, p. 408–419, 2001.
- [150] A. K. BURNHAM, M. RUNKEL, M. D. FEIT, A. M. RUBENCHIK, R. L. FLOYD, T. A. LAND, W. J. SIEKHAUS et R. A. HAWLEY-FEDDER, « Laser-induced damage in deuterated potassium dihydrogen phosphate », *Applied Optics*, vol. 42, no. 27, p. 5483–5495, 2003.
- [151] H. PIOMBINI, M. POMMIES, D. DAMIANI, H. MATHIS, L. LAMAGNERE, T. DONVAL, M. LOISEAU, J. CAPOULADE, B. BERTUSSI et J.-Y. NATOLI, « Influence of the cut angle on the laser damage threshold of KDP », *Proc. SPIE*, vol. 5991, 2006.
- [152] J. R. QUAGLIANO, R. R. PETRIN, T. C. TRUJILLO, R. WENZEL, L. J. JOLIN, M. T. PAFFETT, C. J. MAGGIORE, N. J. COCKROFT et J. C. JACCO, « Materials characterization, optical spectroscopy, and laser damage studies of electrochromically and photochromically damaged KTP », *Proc. SPIE*, vol. 2428, 1995.

- 
- [153] M. P. SCRIPSICK, D. N. LOIACONO, J. ROTTENBERG, S. H. GOELLNER, L. E. HALBURTON et F. K. HOPKINS, « Defects responsible for gray tracks in flux grown KTP », *Applied Physics Letters*, vol. 66, no. 25, p. 3428, 1995.
- [154] M. N. SATIYANARAYAN, H. L. BHAT, M. R. SRINIVASAN, P. AYYUB et M. S. M. ., « Evidence for the presence of remnant strain in grey-tracked  $\text{KTiOPO}_4$  », *Applied Physics Letters*, vol. 67, no. 19, 1995.
- [155] R. BLACHMAN, P. F. BORDUI et M. M. FEJER, « Laser induced photochromic damage in potassium titanyl phosphate », *Applied Physics Letters*, vol. 64, no. 11, p. 1318–1320, 1994.
- [156] X. B. HU, J. Y. WANG, H. J. ZHANG, H. D. JIANG, H. LIU, X. D. MU et Y. J. DING, « Dependence of photochromic damage on polarization in  $\text{KTiOPO}_4$  crystals », *Journal of Crystal Growth*, vol. 247, p. 137–140, 2003.
- [157] B. BOULANGER, M. M. FEJER, R. BLACHMAN et P. F. BORDUI, « Study of KTP gray-track @ 1064, 532 & 355 nm », *Applied Physics Letters*, vol. 65, no. 19, p. 2401–2403, 1994.
- [158] B. BOULANGER, I. ROUSSEAU, J. P. FÈVE, M. MAGLIONE, B. MÉNAERT et G. MARNIER, « Optical studies of laser induced Gray-tracking in KTP », *IEEE J. Quant. Electr.*, vol. 35, no. 3, 1999.
- [159] J. C. JACCO, D. R. ROCKAFELLOW et E. A. TEPPPO, « Bulk darkening threshold of flux grown KTP », *Optics Letters*, vol. 16, no. 17, p. 1307, 1991.
- [160] H. YOSHIDA, T. JITSUNO, H. FUJITA, M. NAKATSUKA, T. KAMIMURA, M. YOSHIMURA, T. SASAKI, A. MIYAMOTO et K. YOSHIDA, « Laser-induced damage in nonlinear crystals on irradiation direction and polarization », *Proc. SPIE*, vol. 3902, p. 418–422, 2000.
- [161] H. YOSHIDA, H. FUJITA, M. NAKATSUKA, M. YOSHIMURA, T. SASAKI, T. KAMIMURA et K. YOSHIDA, « Dependences of laser-induced bulk damage threshold and crack patterns in several nonlinear crystals on irradiation direction », *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 45, no. 2A, p. 766–769, 2006.
- [162] A. L. ALEXANDROVSKI, M. M. FEJER, R. P. ROUTE et R. L. BYER, « Photothermal absorption measurements in optical materials », *IEEE Lasers and Electro-Optics (CLEO)*, p. 320–321, 2000.
- [163] M. COMMANDRÉ et P. ROCHE, « Characterization of optical coatings by photothermal deflection », *Applied Optics*, vol. 35, p. 5021–5034, 1996.
- [164] A. DURING, C. FOSSATI et M. COMMANDRÉ, « Photothermal deflection microscopy for imaging sub-micronic defects in optical materials », *Optics Communications*, vol. 230, p. 279–286, 2004.
- [165] A. SURMIN, *Détermination des éléments structuraux et microstructuraux responsables des phénomènes d'endommagement laser dans les cristaux de KDP*. Thèse doctorat, Université Francois Rabelais Tours, 2007.

- [166] M. POMMIÈS, D. DAMIANI, B. BERTUSSI, J. CAPOULADE, H. PIOMBINI, J.-Y. NATOLI et H. MATHIS, « Detection and characterization of absorption heterogeneities in  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  crystals », *Optics Communications*, vol. 267, p. 154–161, 2006.
- [167] M. TSEITLIN, E. MOJAEV et M. ROTH, « Growth of high resistivity  $\text{RbTiOPO}_4$  crystals », *Journal of Crystal Growth*, vol. 310, p. 1929–1933, 2008.
- [168] K. FUJIOKA, S. MATSUO, T. KANABE, H. FUJITA et M. NAKATSUKA, « Optical properties of rapidly grown KDP crystal improved by thermal conditioning », *Journal Of Crystal Growth*, vol. 181, no. 3, p. 265–271, 1997.
- [169] L. M. SHEEHAN, M. R. KOZLOWSKI, F. RAINER et M. STAGGS, « Large area conditioning of optics for high power laser systems », *Proc. SPIE*, vol. 2114, p. 559–568, 1994.
- [170] M. RUNKEL, M. YA, J. J. D. YOREO et N. P. ZAITSEVA, « Effect of impurities and stress on the damage distributions of rapidly grown KDP crystals », *Proc. SPIE*, vol. 3244, p. 211–221, 1998.
- [171] G. E. KUGEL, F. BREHAT, B. WYNCKE, M. D. FONTANA, G. MARNIER, C. CARABATOS-NEDELEC et J. MANGIN, « The vibrational spectrum of a  $\text{KTiOPO}_4$  single crystal studied by raman and infrared reflectivity spectroscopy », *J. Phys. C. : Solid State Phys.*, vol. 21, p. 5563–5583, 1988.
- [172] K. NODA, W. SAKAMOTO, T. YOGO et S. HIRANO, « Dielectric properties of  $\text{KTiOPO}_4$  (KTP) single crystals at low temperature », *Journal of materials science letters*, vol. 19, p. 69–72, 2000.
- [173] F. R. WAGNER, A. HILDENBRAND, J.-Y. NATOLI, M. COMMANDRÉ, F. THEODORE et H. ALBRECHT, « Laser damage resistance of  $\text{RbTiOPO}_4$ : evidence of polarization dependent anisotropy », *Optics Express*, vol. 15, no. 21, p. 13849–13857, 2007.
- [174] Y. JIANG, L. E. HALLIBURTON, M. ROTH, M. TSEITLIN et N. ANGERT, « Hyperfine structure associated with the dominant radiation-induced trapped hole center in  $\text{RbTiOPO}_4$  crystals », *Phys. Status Solidi B*, vol. 242, p. 2489–2496, 2005.
- [175] Q. JIANG, A. LOVEJOY, P. A. THOMAS, K. B. HUTTON et R. C. C. WARD, « Ferroelectricity, conductivity, domain structure and poling conditions of rubidium titanyl phosphate », *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 33, p. 2831–2836, 2000.
- [176] S. FAVRE, T. C. SIDLER et R. P. SALATHE, « High-power long-pulse second harmonic generation and optical damage with free-running Nd:YAG laser », *IEEE J. Quant. Electr.*, vol. 39, no. 6, p. 733–740, 2003.
- [177] P. DEMANGE, R. A. NEGRES, A. M. RUBENCHIK, H. B. RADOUSKY, M. D. FEIT et S. G. DEMOS, « The energy coupling efficiency of multiwavelength laser pulses to damage initiating defects in deuterated  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  nonlinear crystals », *Journal of Applied Physics*, vol. 103, p. 083122, 2008.
- [178] Y. GUILLIEN, B. MENAERT, J. P. FEVE, P. SEGONDS, J. DOUADY, B. BOULANGER et O. PACAUD, « Crystal growth and refined sellmeier equations over the complete transparency range of  $\text{RbTiOPO}_4$  », *Optical Materials*, vol. 22, p. 155–162, 2003.



- [179] Y. FURUKAWA, S. A. MARKGRAF, M. SATO, H. YOSHIDA, T. SASAKI, H. FUJITA, T. YAMANAKA et S. NAKAI, « Investigation of the bulk laser damage of lithium triborate,  $\text{LiB}_3\text{O}_5$ , single crystals », *Applied Physics Letters*, vol. 65, no. 12, p. 1480–1482, 1994.
- [180] W. HONG, M. M. CHIRILA, N. Y. GARCES, L. E. HALLIBURTON, D. LUPINSKI et P. VILLEVAL, « Electron paramagnetic resonance and electron-nuclear double resonance study of trapped-hole centers in  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  crystals », *Physical Review B*, vol. 68, p. 094111, 2003.
- [181] J. W. KIM, C. S. YOONA et H. G. GALLAGHERB, « The effect of NaCl melt-additive on the growth and morphology of  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO) crystals », *Journal of Crystal Growth*, vol. 222, p. 760–766, 2001.
- [182] S. MÖLLER, A. ANDRESEN, C. MERSCHJANN, B. ZIMMERMANN, M. PRINZ et M. IMLAU, « Insight to uv-induced formation of laser damage on  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  optical surfaces during long-term sum-frequency generation », *Optics Express*, vol. 15, no. 12, p. 7351–7356, 2007.
- [183] <http://www.cristal-laser.fr/>.
- [184] <http://www.eksmaoptics.com/>.
- [185] <http://www.heraeus-quarzglas.com/>.





## Résumé

---

L'émergence de lasers de plus en plus puissants et compacts et le développement de leurs applications engendrent des problèmes de tenue au flux des composants optiques et tout particulièrement des cristaux non linéaires. Dans ce contexte, cette thèse s'attache à l'étude de l'endommagement laser en régime nanoseconde dans les cristaux non linéaires utilisés principalement pour la conversion de fréquence (KTP, KDP, LBO) et les applications électro-optiques (RTP, KDP). Les effets spécifiques aux cristaux liés à leur anisotropie et leurs non linéarités ont imposé le développement d'une métrologie de l'endommagement laser adaptée. Cette métrologie a ensuite été appliquée à l'étude détaillée des cristaux isomorphes de KTP et RTP, et du cristal de LBO. L'influence sur leur tenue au flux laser de multiples paramètres, tels que la longueur d'onde d'irradiation, la polarisation, la direction de coupe du cristal, a pu être étudiée permettant de mieux comprendre les mécanismes responsables de l'endommagement laser dans ces cristaux. L'importance de la caractérisation de la tenue au flux laser de ces cristaux sous irradiation multiple et dans leurs conditions fonctionnelles d'utilisation a été mise en évidence. Par exemple, la coexistence de plusieurs longueurs d'onde au sein du matériau modifie de façon importante la tenue au flux laser du composant.

**Mots clés :** Endommagement laser, métrologie, cristaux non linéaires, KTP, RTP, LBO, KDP, silice, couches minces, génération de seconde harmonique.

## Abstract

---

Lasers become more and more powerful and compact. This raises laser induced damage issues in optical components, especially in nonlinear crystals. This thesis deals with nanosecond laser damage investigations in nonlinear crystals used for frequency conversion (KTP, KDP LBO) and electro-optic applications (RTP, KDP). First, due to nonlinear and anisotropic effects of the crystals, the development of a metrology dedicated to laser damage studies of crystals was necessary. This metrology was then applied to the study of KTP and RTP isomorphous crystals, and LBO crystals. The influence of many parameters on the laser damage resistance, such as wavelength, polarization and crystal orientation, was studied allowing a better understanding of the laser damage phenomena in these crystals. Moreover, laser induced damage characterization was realized on these crystals with a high number of shots and in the real operating conditions, showing that the laser damage threshold of the component depends on its use. For example, the coexistence of multiple wavelengths inside the crystal takes a great part in the damage phenomena.

**Keywords :** Laser damage, metrology, nonlinear crystals, KTP, RTP, LBO, KDP, silica, optical coating, second harmonic generation (SHG).