



**HAL**  
open science

# Etude des phénomènes d'endommagement laser dans les couches minces et sur les surfaces optiques aux échelles nanoseconde à femtoseconde.

Laurent Gallais

## ► To cite this version:

Laurent Gallais. Etude des phénomènes d'endommagement laser dans les couches minces et sur les surfaces optiques aux échelles nanoseconde à femtoseconde.. Optique [physics.optics]. Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III, 2011. tel-00639461

**HAL Id: tel-00639461**

**<https://theses.hal.science/tel-00639461>**

Submitted on 10 Nov 2011

**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.

## HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

Présentée et soutenue publiquement par

**Laurent GALLAIS**

Maître de Conférences à l'Ecole Centrale Marseille

le 8 novembre 2011

Discipline : Electronique, Optronique et Systèmes

École Doctorale : Physique & Sciences de la Matière (ED352)

**Etude des phénomènes d'endommagement laser dans les couches minces et sur les surfaces optiques aux échelles nanoseconde à femtoseconde.**

### **Jury :**

<b>Rapporteurs :</b>	H. Bercegol	Ingénieur-chercheur, CEA Saclay
	D. Ristau	Professeur, Laser Zentrum Hannover
	V. Vigneras	Professeur, ENSCPB, Bordeaux
<b>Examineurs :</b>	M. Commandré	Professeur, Ecole Centrale Marseille
	F. Fotiadu	Professeur, Ecole Centrale Marseille
	J.Y. Natoli	Professeur, Université Aix Marseille



# Table des matières

<b>Préambule</b>	<b>1</b>
<b>Première Partie</b>	<b>3</b>
<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>1 L'endommagement laser des couches minces optiques en régime nanoseconde</b>	<b>9</b>
1.1 Introduction . . . . .	11
1.2 Développement d'outils expérimentaux pour l'analyse des phénomènes d'endommagement . . . . .	14
1.3 Approche statistique du phénomène d'initiation . . . . .	23
1.4 Couplage de l'approche statistique à des modèles physiques . . . . .	29
1.5 Modélisation multiphysique pour l'étude de défauts et de structures complexes . . . . .	34
1.6 Conclusion & perspectives . . . . .	35
<b>2 L'endommagement laser des couches minces optiques en régime sub-picoseconde</b>	<b>37</b>
2.1 Introduction . . . . .	39
2.2 Banc d'interaction laser sub-picoseconde / couches minces optiques . . . . .	42
2.3 Interaction d'une impulsion laser ultra-courte avec un système multicouche diélectrique . . . . .	45
2.4 Etude des oxydes simples . . . . .	48
2.5 Etude des mixtures d'oxydes . . . . .	57
2.6 Conclusions, perspectives . . . . .	59

<b>3</b>	<b>Développement de procédés pour l'amélioration de la tenue au flux laser des optiques</b>	<b>61</b>
3.1	Introduction, contexte des travaux . . . . .	63
3.2	Analyse des modifications du matériau liées à l'endommagement laser sur la silice . . . . .	65
3.3	Etude thermomécanique de l'interaction laser CO <sub>2</sub> /silice . . .	67
3.4	Mise au point d'une méthode de stabilisation d'optiques endommagées par laser . . . . .	72
3.5	Conclusion & perspectives . . . . .	75
<b>4</b>	<b>Projet de recherche</b>	<b>77</b>
4.1	Introduction . . . . .	79
4.2	Endommagement laser des couches minces optiques . . . . .	79
4.3	Composants multicouches pour lasers de puissance . . . . .	81
4.4	Applications des modifications induites par laser femtoseconde dans les couches minces . . . . .	81
4.5	Ouverture vers de nouvelles thématiques . . . . .	84
	<b>Deuxième Partie</b>	<b>87</b>
<b>5</b>	<b>Activités et responsabilités en recherche et formation</b>	<b>91</b>
5.1	Responsabilités scientifiques . . . . .	93
5.2	Actions de valorisation, de diffusion des activités de recherche et d'expertise . . . . .	97
5.3	Responsabilités collectives . . . . .	100
5.4	Encadrement doctoral et scientifique . . . . .	101
5.5	Activités d'enseignement . . . . .	103
5.6	Publications et production scientifique . . . . .	108
	<b>Bibliographie</b>	<b>122</b>
	<b>Sélection de quelques publications</b>	<b>139</b>

# Préambule

La rédaction d'un tel document est l'occasion de se replonger dans les activités passées et de faire un bilan du chemin parcouru. C'est donc plutôt avec plaisir qu'il a été rédigé. Ces années ont été vécues de façon intense et c'est avec passion que j'ai exercé mon métier. Ce document est destiné à dresser un bilan de mes travaux de recherche et à décrire les chemins qui ont mené aux différents développements et résultats que je vais présenter. Il s'agit ici de décrire l'historique, la démarche, les explications de principe et les résultats auxquels ont abouti mes travaux de recherche. On ne trouvera par exemple pas d'équations dans le document, et le lecteur intéressé par une description plus détaillée pourra se reporter aux thèses et articles auxquels notre travail a donné lieu. Le document est articulé de la façon suivante :

- Une première partie, la plus conséquente, est consacrée à mes activités de recherche menées depuis 2003 à l'Institut Fresnel. Ces travaux ne sont pas présentés par ordre chronologique mais suivant trois grandes thématiques qui permettent de donner une cohérence à ce document. A la fin de cette partie je détaillerai mon projet de recherche à court et moyen terme.
- La deuxième partie est consacrée à des informations sur le déroulement de ma carrière d'enseignant et de chercheur, comme cela est l'usage dans ce type de document.
- Pour finir j'ai annexé à ce document quelques publications qui à mes yeux et pour différentes raisons sont les plus significatives de mon travail de recherche.

Bonne lecture.

L. Gallais, le 2 octobre 2011.



# Première Partie





# Introduction

Depuis la réalisation du premier laser dans les années 60, un des principaux facteurs limitant le fonctionnement de ce type de source est la dégradation des optiques sous flux. Ceci est un frein majeur au développement des systèmes lasers et de leurs applications. La première mise en évidence de ce phénomène 'd'endommagement laser' remonte au milieu des années 60 [1,2]. Depuis cette époque, toute une communauté s'est mobilisée pour comprendre les mécanismes fondamentaux gouvernant ces effets et améliorer les techniques de fabrication et de conception des composants et systèmes. On peut trouver, par exemple dans les proceedings de la conférence annuelle 'Laser Damage Symposium' créée en 1969, une base de données impressionnante sur le sujet [3]. Cette thématique est en constant renouvellement : d'une part les récents développements permettent d'atteindre des puissances de plus en plus élevées (du milliwatt dans les années 70 nous sommes passés au domaine kilowatt en continu et au petawatt en impulsionnel...) et des systèmes de plus en plus compacts (pompés par diode par exemple); d'autre part l'émergence des lasers femtoseconde et leur montée en puissance a fait soumettre les optiques à une nouvelle classe de phénomènes physiques. Or une source ou un système laser nécessite des traitements multicouches pour filtrer, transporter, mettre en forme temporellement ou spatialement le faisceau. Ces traitements sont à la fois le point clé du système mais souvent également le point limitant au niveau de la résistance au flux. Par conséquent la tenue au flux des couches minces optiques a toujours été un sujet d'étude accompagnant le développement des lasers depuis le départ (voir par exemple les articles de revue sur ces sujets par Kozlowski [4], Stolz [5], Wood [6] ou Ristau [7]). L'évolution permanente des technologies de dépôt et l'émergence de nouvelles applications appellent également à un renouvellement constant dans la recherche sur ce sujet. Cependant, l'amélioration de la tenue au flux des couches minces est

souvent délicate en raison du grand nombre de paramètres liés aux processus de fabrication qui peuvent à la fois affecter les propriétés des couches et modifier leur seuil d'endommagement laser. Les couches minces à haute tenue au flux ne peuvent donc être réalisées que lorsque les mécanismes et les causes de l'endommagement sont bien identifiés et les paramètres de fabrication parfaitement maîtrisés. 40 années de recherche ont permis de progresser énormément tant sur l'aspect fabrication et amélioration de la tenue au flux que sur la compréhension des principaux mécanismes d'endommagement. Il est par exemple bien établi que 2 types de mécanismes gouvernent l'amorçage, que l'on peut qualifier de 'électronique' et 'thermique', qui peuvent être différenciés suivant les caractéristiques temporelles de l'irradiation. Les effets thermiques surviennent essentiellement pour de longues durées d'interaction et les effets électroniques interviennent majoritairement aux courtes durées d'interaction. La limite entre ces 2 domaines, se situant entre la ps et la centaine de ps [8,9], correspond au temps de thermalisation d'un gaz d'électrons dans un diélectrique.

Témoin de la dynamique de recherche sur cette thématique, le nombre de publications sur l'endommagement laser ne cesse de croître ces dernières années (figure 1). Ceci s'explique notamment par les grands projets laser mobilisant toute une communauté (LMJ, NIF, ELI, PETAL, HIPER...), par l'essor considérable qu'ont pris les lasers, notamment de type femtoseconde, dans un grand nombre d'applications médicales, industrielles et scientifiques, et par l'arrivée de nouveaux acteurs publiant sur cette thématique (équipes chinoises notamment).

Pour ma part, j'ai commencé à travailler sur ce sujet en 1999 au cours de ma thèse effectuée à l'Institut Fresnel, co-encadrée par Claude Amra et Jean-Yves Natoli, et soutenue en 2002. Durant ces 3 ans, je me suis intéressé aux phénomènes d'endommagement en régime nanoseconde dans les diélectriques. Il s'agissait alors d'une thématique récente dans l'équipe et les travaux que j'ai réalisés pendant cette période m'ont permis de me rendre compte de la richesse du sujet et des nombreuses questions encore ouvertes dans ce domaine d'étude. A partir de 2002 j'ai été recruté en tant qu'ATER (2002-2003) puis

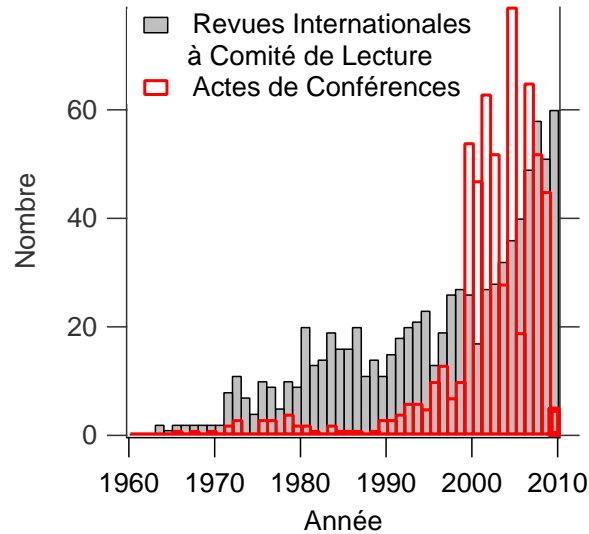


FIG. 1 – Nombre de publications correspondant à la recherche "laser damage" dans la base de données WebSpiris.

Maître de Conférences à l'Ecole Centrale Marseille en effectuant ma recherche dans l'équipe MAP2 de l'Institut Fresnel, sous la responsabilité de Mireille Commandré. J'ai ainsi eu la chance de pouvoir continuer à travailler sur cette thématique passionnante, mêlant plusieurs pans de la physique : optique, électromagnétisme, thermique, matériaux, physique du solide, mécanique...

Dans ce contexte les travaux que j'ai menés ont tout d'abord été concentrés sur la tenue au flux des couches minces optiques en régime nanoseconde, au travers notamment du co-encadrement de plusieurs thèse sur ces thématiques (Hélène Krol, Jérémie Capoulade et Xinghai Fu) et de post-doctorants (Guillaume Demesy, Wang Ying). La tenue au flux laser des couches minces optiques en régime pico/femtoseconde est la thématique principale sur laquelle j'ai orienté mes activités de recherche depuis 2009 (encadrement de la thèse de Benoît Mangote sur le sujet). En parallèle de ces 2 activités principales je travaille depuis 2005 en étroite collaboration avec le CEA sur la mise au point de procédés pour l'amélioration de la résistance au flux laser des optiques en silice. Je décris ainsi dans ce document les grandes lignes des travaux de recherche que j'ai menés au laboratoire depuis la fin de ma thèse, suivant les 3 axes cités plus haut. Nous ne rentrerons pas dans tous les détails de nos travaux, le lecteur intéressé les trouvera dans les différents articles, thèses,

rapports de stages et de contrats que nous citons dans la bibliographie, mais nous essayerons de présenter notre démarche et les principaux résultats obtenus. Soulignons que ce travail est avant tout celui d'une équipe, je tiens donc à associer les collègues de l'équipe (C. Amra, M. Commandré, J.Y. Natoli, F. Wagner et M. Zerrad), les différents doctorants (J. Capoulade, A. Ciapponi, H. Krol, B. Mangote, X. Fu), post-doctorants (S. Palmier, G. Demesy, W. Ying) et stagiaires (S. Alenda, V. Brandli, L. Debeire, H. Hinsch, M. Jahjah, M. Lay, G. Mahé, J. Gon, J. Alanis) qui ont participé à ces études.

# Chapitre 1

## L'endommagement laser des couches minces optiques en régime nanoseconde

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b> . . . . .	<b>39</b>
<b>2.2</b>	<b>Banc d'interaction laser sub-picoseconde / couches minces optiques</b> . . . . .	<b>42</b>
2.2.1	Configuration expérimentale et spécificités du système développé	42
2.2.2	Mesure de seuil de dommage à très haute précision et étude du déterminisme . . . . .	43
<b>2.3</b>	<b>Interaction d'une impulsion laser ultra-courte avec un système multicouche diélectrique</b> . . . . .	<b>45</b>
<b>2.4</b>	<b>Etude des oxydes simples</b> . . . . .	<b>48</b>
2.4.1	Influence de l'épaisseur . . . . .	49
2.4.2	Influence de la largeur de bande interdite du matériau . . . . .	50
2.4.3	Influence de la durée de l'impulsion . . . . .	53
2.4.4	Influence des paramètres de dépôt . . . . .	54
<b>2.5</b>	<b>Etude des mixtures d'oxydes</b> . . . . .	<b>57</b>
<b>2.6</b>	<b>Conclusions, perspectives</b> . . . . .	<b>59</b>

---



## 1.1 Introduction

Les travaux que j'ai menés dans l'équipe directement après ma thèse ont principalement eu pour objectif la compréhension des mécanismes d'initiation de l'endommagement laser en régime nanoseconde dans les couches minces optiques. A ces durées d'impulsion des effets thermiques et mécaniques sont principalement mis en jeu (échauffements causant la dégradation du matériau et de la structure). Une des causes d'endommagement couramment rencontrée est liée à une absorption intrinsèque à la couche entraînant le couplage de l'énergie dans la structure. Ce type de phénomène se produit lorsque de l'absorption résiduelle à la longueur d'onde de travail ne peut être évitée, même par les procédés de dépôt les plus modernes (typiquement dans l'ultraviolet et le moyen infrarouge). Dans les domaines visible et proche infrarouge cependant, les progrès accomplis permettent d'atteindre actuellement des pertes moyennes inférieures à  $10^{-6}$  du flux incident [7]. L'endommagement est alors initié par des défauts exhibant une absorption supérieure à celle de la couche et entraînant un échauffement rapide et localisé [10]. Ces défauts peuvent avoir des origines diverses : préparation du substrat (polissage, nettoyage, stockage), chambre à vide (abrasion, délamination des parois et pièces diverses), source (canon, creuset, matériau)...C'est précisément sur cette thématique des défauts et des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser que nous avons consacré une importante partie de nos efforts, notamment lors des thèses de H. Krol, J. Capoulade, X. Fu. et des post-doctorats de G. Demésy et W. Ying. Pour étudier ces phénomènes il est nécessaire de disposer de mesures fiables et de moyens de caractérisation performants. L'avancée dans ce domaine de la physique ne peut avoir lieu sans faire appel à des développements d'instruments de caractérisation et de métrologie. Il s'agit par exemple d'être capable de suivre en temps réel la réponse d'un matériau à une irradiation laser, d'analyser les modifications induites à l'échelle micronique, d'effectuer des millions de tirs sur une optique dans des conditions parfaitement contrôlées, de détecter des défauts nanométriques,...Dans le cadre de mes travaux de recherche dans l'équipe, j'ai donc été amené à mettre en place et à développer un certain nombre de dispositifs expérimentaux, particulièrement adaptés à l'étude des surfaces et des couches minces optiques. Nous présenterons ainsi dans la première partie de ce chapitre les outils expérimentaux relatifs à l'étude de



l'endommagement laser des couches minces optiques, le contexte de leur développement et les résultats auxquels nous avons abouti.

Dans le cas de couches minces de très bonne qualité, c'est à dire ne présentant aucun défaut visible en microscopie classique (Nomarski ou fond noir), les morphologies d'endommagement observées à des énergies proches du seuil d'endommagement mettent clairement en évidence des mécanismes d'endommagement liés à des défauts (figures 1.1, 1.2 et 1.3), particulièrement lorsque l'on étudie des monocouches (des effets d'écaillage apparaissent dans les multicouches qui peuvent masquer cet effet).

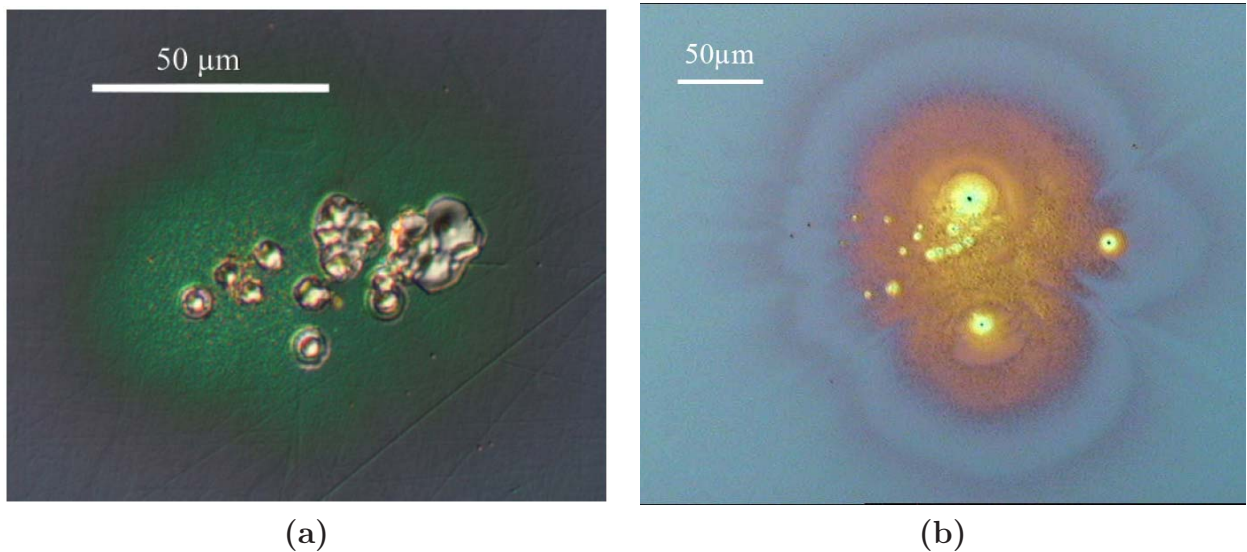


FIG. 1.1 – (a) Morphologie d'endommagement observée par microscopie Nomarski sur une couche bas indice déposée par évaporation classique sur un substrat de ZnSe et irradiée à  $2 \mu\text{m}/12\text{ns}$  avec un faisceau de diamètre  $100 \mu\text{m}$ . (b) Endommagement d'une couche de  $\text{HfO}_2$  irradiée à  $1064\text{nm}/12\text{ns}$  avec un faisceau de diamètre  $400 \mu\text{m}$ .

La caractéristique essentielle de l'endommagement laser initié par des défauts est que les effets observés présentent un caractère statistique : l'endommagement a lieu si un défaut est présent sous le spot laser, et s'il est irradié avec une énergie suffisante pour enclencher un mécanisme d'endommagement. Une méthode intéressante pour obtenir des informations sur ces défauts (nature, taille, densité,...) est d'étudier les probabilités ou densités de dommages en fonction des paramètres d'irradiation. Nous avons ainsi travaillé sur le déve-

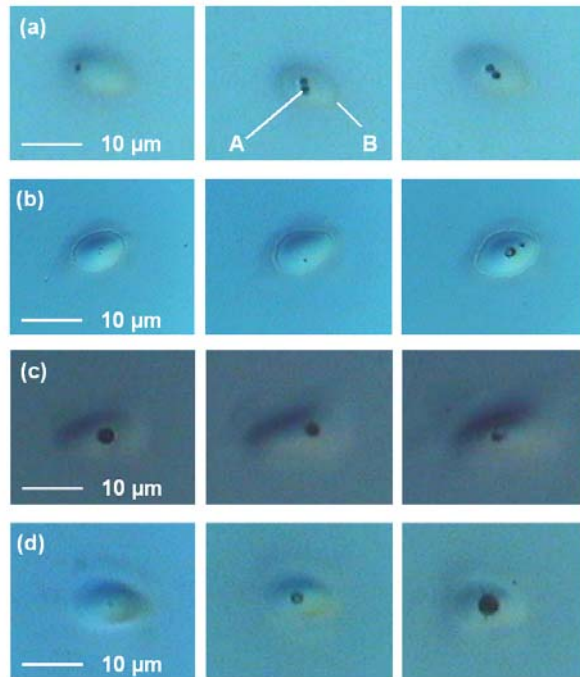


FIG. 1.2 – Morphologies d'endommagement observées sur des couches minces de  $\text{SiO}_2$  déposées par différentes technologies et irradiées à  $1064\text{nm}$ ,  $6\text{ns}$  avec un faisceau de  $12\mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$ . (a) correspond à des couches déposées par évaporation par canon à électron, (b) par pulvérisation ionique, (c) évaporation par canon à électron assistée par plasma, et (d) assistée par faisceau d'ion [11].

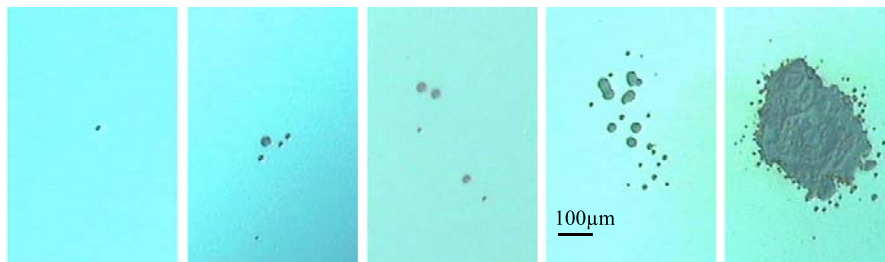


FIG. 1.3 – Morphologies d'endommagement observées sur une couche mince de  $\text{HfO}_2$  en augmentant progressivement la densité d'énergie (chaque image correspond à une zone différente). Caractéristiques du faisceau d'irradiation :  $1064\text{nm}$ ,  $12\text{ns}$  avec un diamètre de  $460\mu\text{m}$  à  $1/e^2$

loppement de modèles statistiques permettant d'obtenir de telles informations et d'interpréter nos expériences.

Finalement pour aller plus loin dans l'analyse et mieux cerner les mécanismes mis en jeu nous avons cherché à introduire de la physique dans les modèles statistiques, c'est à dire prendre en compte l'aspect électromagnétique et thermique intervenant dans les phénomènes d'initiation, dans l'objectif d'identifier les propriétés des défauts potentiels et interpréter qualitativement les données expérimentales. Cet axe de recherche est toujours poursuivi à l'heure actuelle, particulièrement dans le cadre de la thèse de X. Fu qui travaille sur des simulations multiphysiques utilisant des méthodes de résolution par éléments finis pour modéliser le phénomène très complexe de l'endommagement laser.

Précisons qu'une grande partie des travaux que nous avons menés ont été effectués dans le cadre de collaborations avec des partenaires académiques et industriels : équipe RCMO de l'Institut Fresnel [11, 12], CILAS [13], SILIOS Technologies [14], State Key Laboratory of Modern Optics (Chine) [15], Vilnius University Laser Research Center (Lituanie) [16, 17, 18] et très récemment le Laser Zentrum Hannover (Allemagne). Ces différentes collaborations nous ont permis d'étudier le comportement d'une grande variété de matériaux parmi les oxides et les mélanges d'oxides (que nous désignerons par le terme anglais "mixtures" dans la suite du document), déposés avec des techniques très diverses.

## 1.2 Développement d'outils expérimentaux pour l'analyse des phénomènes d'endommagement

Au cours des différentes études que nous avons menées, qui ont pu avoir des objectifs différents (compréhension fondamentale, amélioration d'un procédé de fabrication), une étape importante sur laquelle nous avons travaillé a été l'analyse des échantillons pour obtenir des informations sur le mécanisme d'initiation et d'extension des dommages laser. La mesure précise des seuils de tenue au flux mais aussi la caractérisation non destructive avant et après irradiation sont en effet des approches indispensables pour analyser les processus d'endommagement. C'est pourquoi un effort important a été fait dans l'équipe pour développer en interne des outils de caractérisation très performants et spécifiques à nos études. J'ai particulièrement contribué au développement de plusieurs de ces outils : plate forme de tenue au flux laser

nanoseconde et système de cartographie d'absorption et de luminescence qui vont être détaillés plus bas. Ces dispositifs viennent en complément d'autres systèmes développés par les doctorants et les chercheurs de l'équipe : banc de tenue au flux dédié à l'étude des cristaux non-linéaires [19] (thèse de A. Hildenbrand), de spectroscopie de luminescence résolue en temps [20] et de vieillissement sous flux (thèse de A. Ciapponi). En parallèle les projets que nous avons montés au cours des années nous ont permis de nous équiper également d'un parc d'outils commerciaux adaptés à nos études : microscope Nomarski/fond noir, microscope à force atomique, profilomètre par interférométrie en lumière blanche, microscope confocale, microscope électronique à balayage et mesureur de pertes. A l'aide de ce panel d'outils il est possible d'irradier un échantillon dans des conditions parfaitement contrôlées et d'analyser à l'échelle sub-micrométrique les modifications morphologiques ou structurelles du matériau.

### 1.2.1 Mesure de la tenue au flux laser des surfaces et couches minces

Dans le régime nanoseconde que nous avons décrit précédemment, les défauts présents sur la surface ou dans le volume des matériaux optiques peuvent être engendrés lors des processus de fabrication des composants optiques mais également être induits par l'interaction laser/matière. La conséquence de ceci est que les phénomènes d'endommagement dans ce domaine temporel présentent un caractère statistique (figure 1.4).

Les populations de défauts concernés et leur comportement sous flux dépendent très fortement des paramètres de l'irradiation laser (longueur d'onde, durée et nombre d'irradiations, dimensions de la surface irradiée,...). La mesure et l'interprétation des phénomènes d'endommagement laser peuvent ainsi s'avérer délicates. Dans ce contexte, le développement de techniques et de moyens de mesure de l'endommagement laser est un sujet très actif et fondamental pour enrichir notre compréhension des mécanismes. Les équipes du LLNL et du CEA ont notamment développé des moyens de métrologie très performants. A ce titre nous pouvons par exemple citer les travaux de DeMange et al. [21], ou Lamagnère et al. [22]. Cependant la majorité de ces

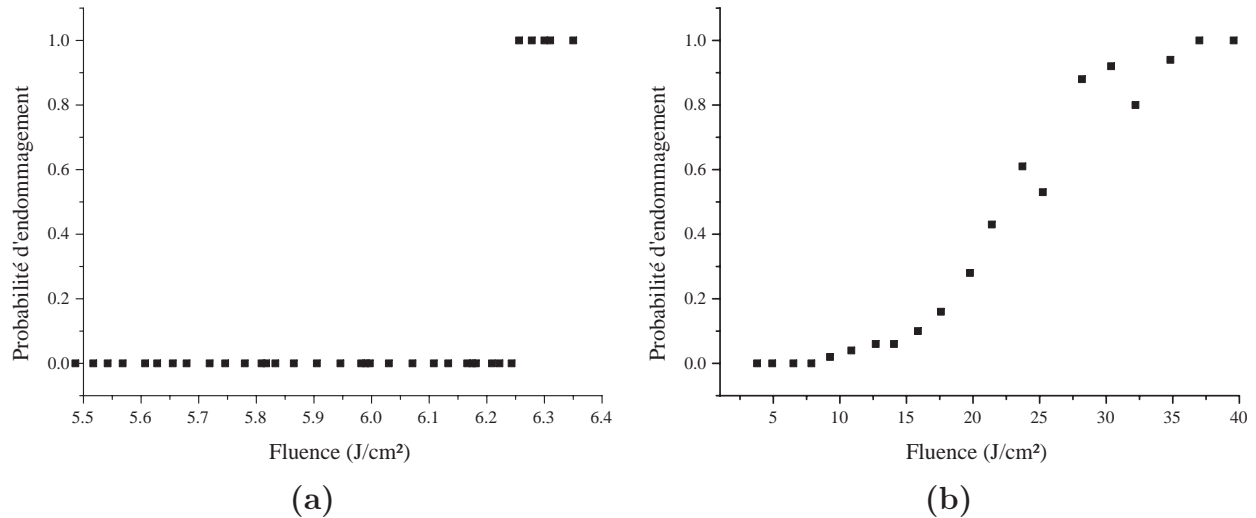


FIG. 1.4 – *Comparaison de 2 courbes de probabilité d'endommagement mesurées en régime sub-picoseconde à 1030nm (a) et nanoseconde à 1064nm (b) sur une couche mince de silice. Les 2 faisceaux de test ont des diamètres du même ordre de grandeur : quelques dizaines de microns. En régime sub-picoseconde le seuil est déterminé par les propriétés intrinsèques du matériau, en régime nanoseconde c'est la probabilité de rencontre avec un défaut initiateur qui gouverne le seuil d'endommagement*

travaux sont liés à une application particulière ayant ses propres spécificités. L'originalité de notre travail a consisté à mettre en place des dispositifs expérimentaux de la tenue au flux laser très versatiles. L'objectif étant de pouvoir s'adapter à l'étude de matériaux et de conditions d'irradiation très diverses, mais aussi de pouvoir faire varier sur une large gamme les paramètres d'irradiation (ce que nous désignons sous le terme 'multi-échelle') pour obtenir des informations sur les défauts initiateurs et les mécanismes d'endommagement. Soulignons également qu'un point majeur pour l'étude des effets d'endommagement et pour effectuer des liens avec les modèles théoriques est la nécessité sur ces bancs de contrôler très précisément les conditions d'irradiation et d'être en mesure de tester rapidement et de façon fiable un grand nombre de zones sur un échantillon. Nous décrivons donc ci-dessous les dispositifs de mesure de tenue au flux laser que nous avons développés dans l'équipe et qui nous permettent de nous situer au meilleur niveau international dans ce domaine.

### 1.2.1.1 Banc multi-échelle / Plate forme 'Photonique de Puissance'

Le développement du banc que nous qualifions de 'multi-échelle' s'est inscrit dans le cadre de la mise en place à l'Institut Fresnel d'une plateforme mutualisée (Plateforme 'Photonique de puissance') labellisée par le Pôle Optique et Photonique sud et financée par le Conseil Général 13, la Région PACA, le Fond Européen de Développement Régional et le Fond de Solidarité Européen. Le développement de ce banc s'est effectué au cours des thèses de H. Krol (2003-2006) et J. Capoulade (2004-2008). Nous présentons un schéma simplifié de ce système sur la figure 1.5.

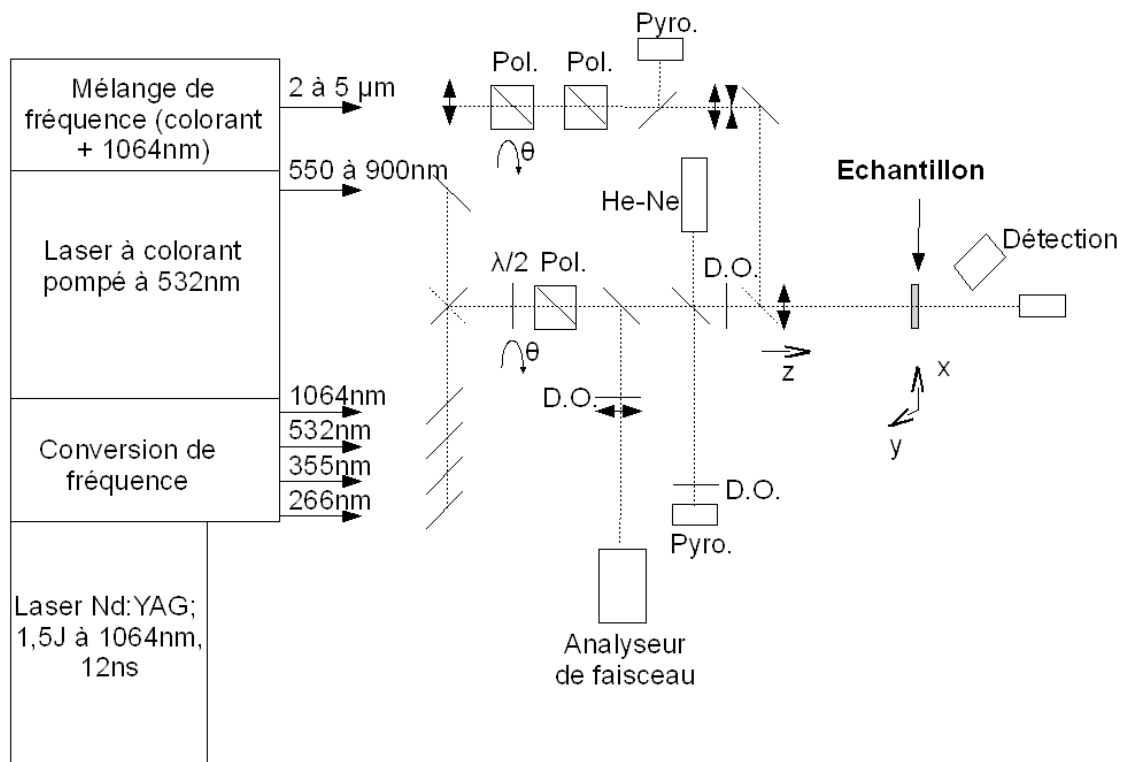


FIG. 1.5 – Banc 'multi-échelle' de tenue au flux laser en régime nanoseconde.

La caractéristique principale de ce dispositif est le large domaine spectral qu'il est possible d'explorer : de l'UV profond (266nm - quatrième harmonique du Nd :YAG) au moyen infrarouge ( $5 \mu\text{m}$ ) en passant par des domaines où il est possible de varier de façon continue la longueur d'onde. L'énergie disponible en sortie du système (environ 1,4J) permet également de tester des échantillons sur une gamme étendue de dimensions de faisceau au niveau de

l'échantillon : de quelques microns à plusieurs centaines de microns. Cet aspect 'multi-échelle' a une importance particulière pour l'étude de la tenue au flux laser en régime nanoseconde : nous avons pu montrer qu'en effectuant des tests avec plusieurs tailles de faisceau il était possible de discriminer différentes sortes de défauts initiateurs, ce qui a pu être validé par des modèles (que nous présenterons plus loin). Enfin une particularité également essentielle est de pouvoir utiliser les différentes méthodes de test employées dans le domaine de l'endommagement laser (1-on-1, R-on-1, S-on-1, Raster Scan). Il est alors possible d'étudier les effets de conditionnement et de fatigue des matériaux.

Grâce à ce banc et à ses différentes spécificités, nous avons pu étudier des substrats et des couches minces optiques pour l'infrarouge (1064nm et bande 2-5 $\mu$ m) lors de la thèse d'H. Krol [13, 23, 24, 25, 11], effectuée sous convention CIFRE avec la société CILAS (Compagnie Industrielle des Lasers). Lors de la thèse de J. Capoulade [26] des couches minces optiques (collaboration avec l'équipe RCMO) et des cristaux non-linéaires (collaboration avec le CEA) ont été étudiés sur ce banc à 1064 et 355nm [27, 28, 12]. En 2009, dans le cadre d'une collaboration que nous avons montée avec le State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation (Université de Zhejiang - Chine), nous avons étudié des couches minces optiques à 2 microns dans le contexte du développement de lasers OPO [15] (travaux de post-doctorat de Ying Wang). Actuellement ce système est utilisé pour les travaux de thèse de X. Fu pour l'étude de mixtures d'oxydes dans le cadre d'une collaboration avec le Laser Research Center de Vilnius University [18].

#### 1.2.1.2 Banc *compact*

L'intérêt du banc que nous avons présenté précédemment est d'offrir une grande souplesse pour réaliser des expériences permettant d'étudier les mécanismes de l'endommagement laser. Pour certaines études il est au contraire crucial qu'aucun paramètre ne varie entre les différentes expériences sur de très longues périodes. Par exemple la comparaison de la tenue au flux d'échantillons ayant subi différentes conditions de dépôt, de nettoyage, de stockage,...et testés à plusieurs mois d'intervalle, nécessite une stabilité temporelle de la mesure. Dans ce sens, nous avons donc développé en 2008 un banc de tenue au

flux entièrement automatique et faisant le moins possible appel à des interventions et réglages de l'expérimentateur (figure 1.6). Ce banc était notamment destiné à être utilisé pour comparer des couches minces optiques ayant été fabriquées avec différentes conditions de dépôt.

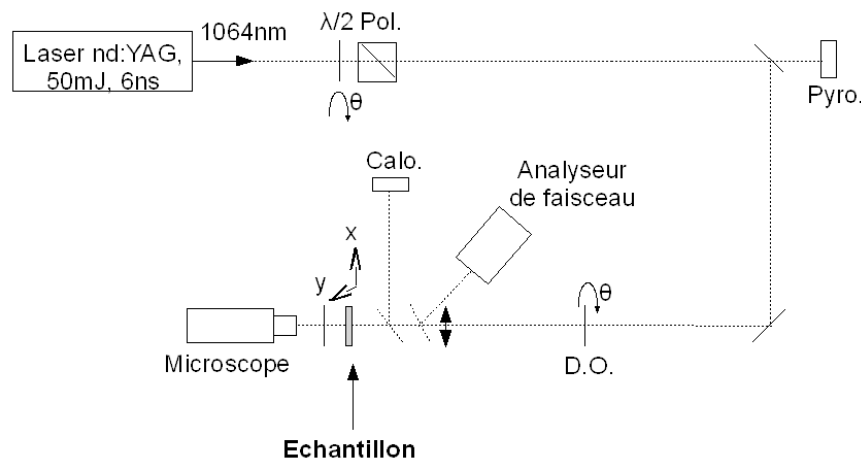


FIG. 1.6 – Banc de tenue au flux laser en régime nanoseconde, 1064nm.

### 1.2.2 Mesure d'absorption et de luminescence

Les défauts initiateurs n'étant pas détectables par des moyens classiques dans la majorité des cas avant irradiation laser, en tout cas avec les moyens dont nous disposons (microscopies, cartographies d'absorption ou de luminescence), nous parlerons de 'nanodéfauts' pour les désigner. Lors d'études sur des couches de SiO<sub>2</sub> [11] nous n'avons par exemple pas pu établir de corrélation entre les défauts résiduels dus à la contamination surfacique et la présence des défauts initiateurs, ce qui indiquait que les défauts étaient propres à la couche et liés au procédé de dépôt. Pour progresser dans la compréhension de l'endommagement laser et l'amélioration des procédés de fabrication, il est important de développer des outils de caractérisation performants de ces défauts. Dans ce domaine l'équipe MAP2 a une renommée internationale grâce au développement d'outils basés sur la déflexion photothermique [29], permettant une très haute sensibilité [30, 31] (absorption mesurée jusqu'à 10<sup>-7</sup> du flux incident) et résolution [32, 33, 34] (détection de défauts de 50nm dans des couches minces optiques). Dans le cadre de mon travail de recherche j'ai profité de



cette expertise et développé un nouvel outil permettant la caractérisation de surfaces dans le domaine UV. Ce travail de développement s'est fait sur plusieurs années, avec l'aide de différents stagiaires : H. Hinsch, M. Lay et L. Debeire. Le dispositif mis en oeuvre, et décrit sur la figure 1.7 permet d'effectuer des cartographies d'absorption d'une surface (à 244, 351 ou 488nm) avec une détectivité de 0,4ppm et une résolution spatiale micronique (le faisceau pompe pouvant être focalisé jusqu'au micron). En outre, l'originalité de ce dispositif est l'intégration de diagnostics complémentaires et simultanés pouvant permettre d'obtenir des informations sur la nature des défauts : mesure de diffusion et de luminescence. Les spécificités et performances de ce système qui permet de réaliser des cartographies simultanées d'absorption, de diffusion et de luminescence sont décrites plus en détail dans la référence [35].

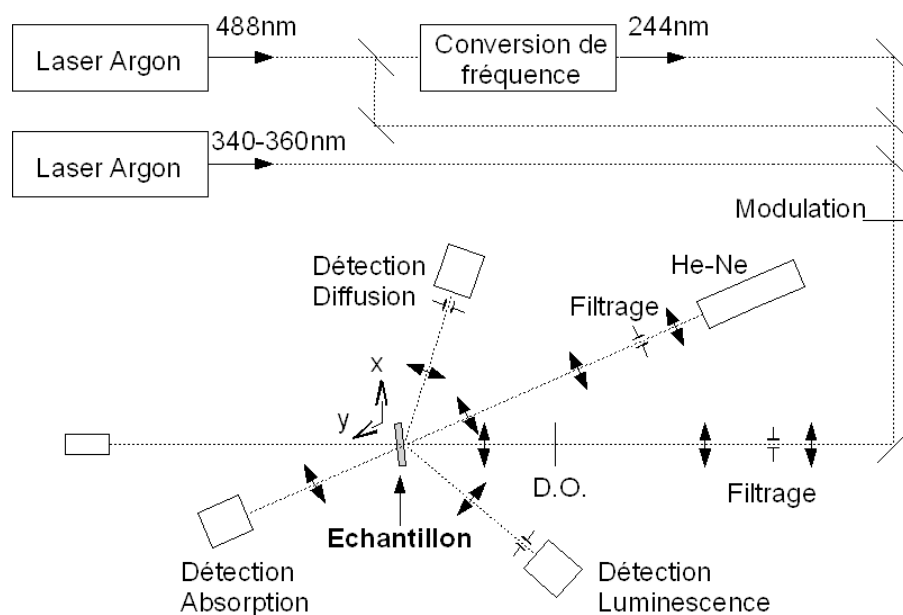


FIG. 1.7 –

La méthode de déflexion photothermique utilisée permet de mesurer indirectement la valeur locale de l'absorption. Un étalonnage est alors nécessaire pour obtenir des valeurs quantitatives de l'absorption. Cet étalonnage peut s'avérer très délicat dans le cas de couches minces optiques du fait de la complexité de la structure (effets interférentiels, méconnaissance des paramètres thermiques, difficulté de séparer l'absorption d'interface et de volume,...). Pour

s'affranchir de ces problèmes j'ai été amené à développer une méthode de calibration applicable aux composants multicouches faisant appel à des simulations du signal photothermique. La déflexion photothermique théorique d'une expérience pompe/sonde dans des multicouches a été calculée en utilisant des modèles thermiques et électromagnétiques dans des multicouches. Ce modèle que nous avons détaillé dans la référence [36] nous permet de trouver des conditions opératoires permettant de minimiser les erreurs de calibration et de relier l'absorption au signal mesuré par le biais d'échantillons étalons.

Cet outil a été appliqué à l'étude des phénomènes d'initiation et de croissance de l'endommagement dans les couches minces en analysant localement les modifications du matériau après irradiation [37]. Il a également été utilisé dans le cadre d'études sur l'influence des procédés de dépôt sur la tenue au flux laser lors des thèses de J. Capoulade [12] et d'A. Ciapponi [20]. L'effet de contaminants organiques sur la résistance au flux laser a également été étudié sur ce banc lors d'une collaboration avec le CEA CESTA au cours de la thèse de K. Bien-Aimé [38].

Nous avons également mené des travaux pour analyser localement les modifications structurelles se produisant dans le matériau à des énergies très proches du seuil d'endommagement. Nous avons alors pu mettre en évidence lors de ces études une étape, que nous avons qualifiée de 'pré-endommagement', où le matériau présentait des modifications à l'échelle de quelques microns (création de centres absorbants et luminescents) sans qu'aucun dommage apparent en microscopie classique ne soit observable. L'analyse par spectroscopie de luminescence des zones modifiées nous a permis de révéler et de résoudre spatialement des défauts générés par l'irradiation laser et de les relier aux forts échauffements et contraintes induites [37]. L'observation de la génération de ces défauts absorbants sous le seuil d'endommagement est un point important pour la compréhension des mécanismes. En effet les études théoriques et expérimentales menées sur les nanoabsorbants artificiels, particulièrement celles de Papernov [39, 40, 41] depuis 2002 ont montré que le processus d'endommagement sur des défauts absorbants impliquait plusieurs étapes : absorption de l'énergie par un défaut nanométrique et échauffement, transfert de l'énergie à la matrice environnante (par rayonnement, conduction), augmentation de l'absorption de la matrice durant l'impulsion par la création de

défauts, génération d'un plasma absorbant, ceci conduisant irrémédiablement à un endommagement macroscopique si suffisamment d'énergie est fournie. Nos études sur les toutes premières étapes de l'endommagement mettent en évidence cette modification du matériau environnant le défaut initiateur.

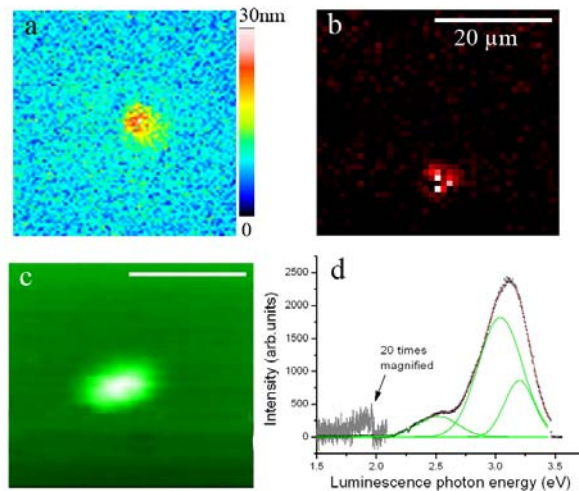


FIG. 1.8 – Observation à l'aide de différents moyens de mesure d'une zone irradiée à  $12 \text{ J/cm}^2$ ,  $6 \text{ ns}$ ,  $1064 \text{ nm}$  sur une couche mince de silice déposée par évaporation par canon à électron. a-La profilométrie optique révèle une légère déformation de la surface; b- La microscopie d'absorption par photothermie permet de mettre en évidence de l'absorption à  $1064 \text{ nm}$ ; c - La cartographie de luminescence excitée à  $244 \text{ nm}$  révèle également une modification des propriétés du matériau; d - Une analyse spectrale du signal de luminescence permet de caractériser les défauts générés [37].

Un des problèmes majeurs cependant est qu'étant donné la taille et la faible densité de ces défauts initiateurs, il est à ce jour impossible de les détecter avec des techniques non-destructives avant irradiation laser. En effet, comme nous l'avons dit plus haut, ces défauts initient un mécanisme d'endommagement en servant de germe à effet de boule thermique. Des défauts de quelques nanomètres peuvent donc être envisagés, ce qui avait été montré expérimentalement lors d'études réalisées en collaboration avec le CEA sur des défauts artificiels (billes d'or) [42, 43]. Pour obtenir des informations sur ces défauts nous avons donc consacré une grande partie de nos travaux à l'analyse des courbes de probabilité d'endommagement, ce que nous développons dans les paragraphes suivants.

### 1.3 Approche statistique du phénomène d'initiation

La caractéristique essentielle de l'endommagement laser initié par des défauts est que les effets observés présentent un caractère statistique : l'endommagement a lieu si un défaut est présent sous le spot laser, et s'il est irradié avec une énergie suffisante pour enclencher un mécanisme d'endommagement. Une méthode intéressante pour obtenir des informations sur ces défauts (nature, taille, densité,...) est d'étudier les probabilités ou densités de dommages en fonction des paramètres d'irradiation.

Des premiers modèles simples ont été développés dès les années 70 pour relier les caractéristiques des défauts (densité par exemple) aux paramètres expérimentaux [44, 45, 46]. L'hypothèse de base de ces travaux, consacrés aux surfaces, était de considérer que l'endommagement était causé par des défauts initiateurs identiques distribués de façon homogène (figure 1.9).

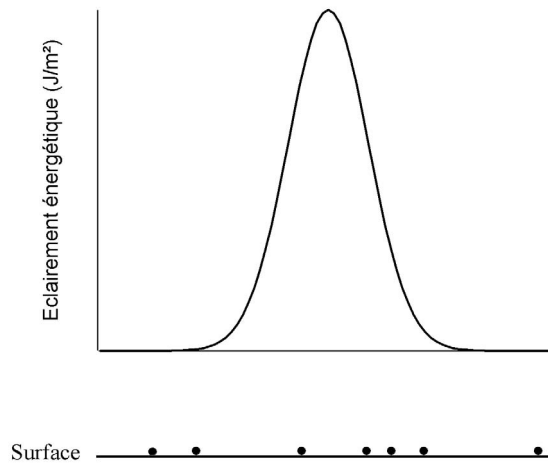


FIG. 1.9 – Représentation schématique du cas de défauts initiateurs surfaciques irradiés par un faisceau de distribution d'intensité Gaussienne

La probabilité d'endommagement est alors liée au nombre de défauts moyens dans la zone irradiée. Dans ces premiers modèles il était considéré que les défauts étant tous identiques, leur seuil de claquage l'était également. La fonction de répartition des seuils de claquage est alors une distribution de Dirac (figure 1.10).

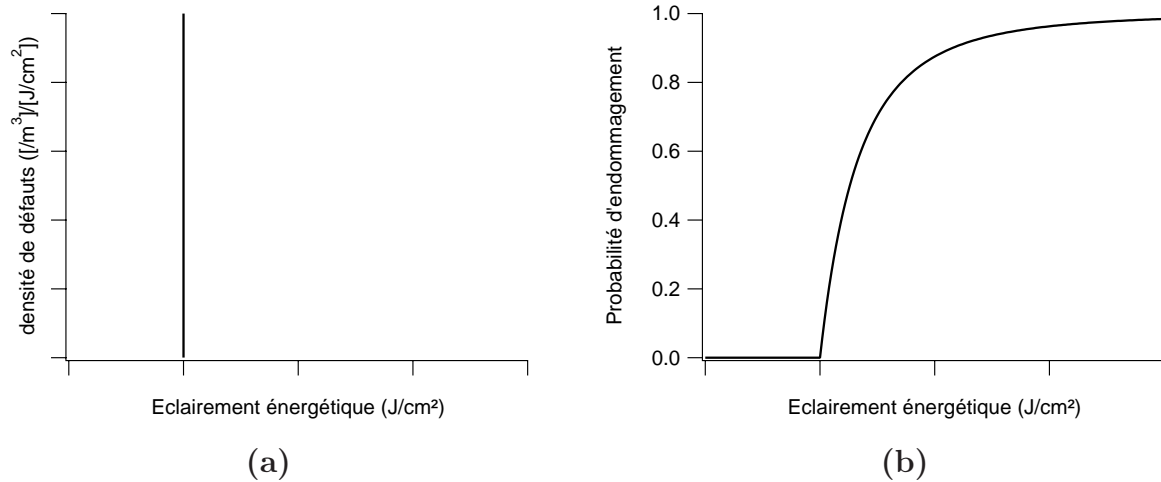


FIG. 1.10 – (a) Représentation de la distribution de défauts : densité de défauts initiateurs par unité de volume et d'exposition énergétique (b) Courbe de probabilité d'endommagement surfacique obtenue dans le cas d'un faisceau d'irradiation de profil spatial Gaussien.

Porteus et Seitel [46] se sont intéressés au début des années 80 à la prise en compte de lois de distribution des seuils de claquage des défauts dans les modèles décrivant les probabilités d'endommagement (figure 1.11). Cette approche plus réaliste du point de vue physique leur a permis d'introduire une troisième variable, en complément du seuil de claquage et de la densité dans les modèles précédents (utilisation d'une loi de puissance). Ces travaux ont permis d'améliorer sensiblement les ajustements des données expérimentales, prouvant l'intérêt de cette approche.

Au début des années 1990, ces modèles statistiques qui n'avaient été développés que pour traiter le cas des surfaces, ont été étendus au cas du volume par O'Connell pour s'adapter au cas de matériaux polymères s'endommagant dans le volume [47] (figures 1.12 et 1.13)).

Cependant, si les différents travaux que nous avons cités ont permis de progresser dans la modélisation statistique des effets d'endommagement laser, des progrès étaient nécessaires du point de vue de la métrologie pour aller plus loin dans ce type d'approche : dans ces différents travaux la précision des courbes de probabilité d'endommagement permettait difficilement de conclure sur la validité des hypothèses. Soulignons de plus que peu d'études ont ensuite

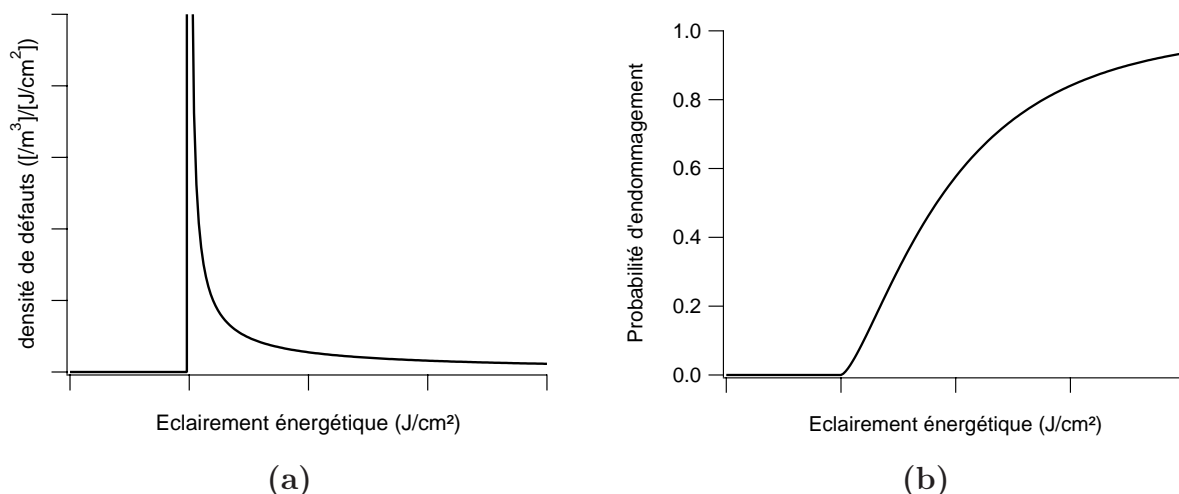


FIG. 1.11 – (a) Représentation de la distribution de défauts dans le cas d'une distribution en loi de puissance (b) Courbe de probabilité d'endommagement surfacique correspondante dans le cas d'un faisceau d'irradiation Gaussien.

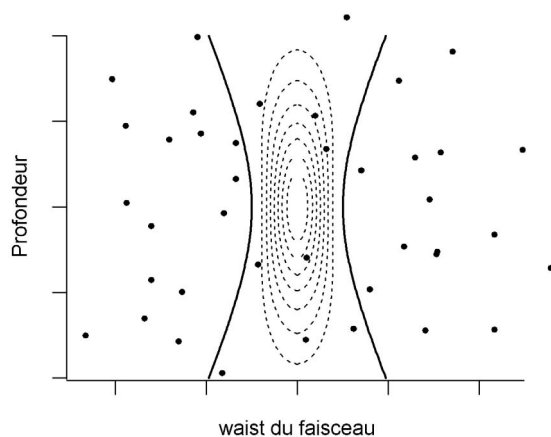


FIG. 1.12 – Représentation schématique du cas de défauts initiateurs volumiques irradiés par un faisceau de distribution d'intensité Gaussienne.

utilisé ces modèles car les équipes de recherche travaillant sur ces thématiques se sont principalement intéressées aux seuils d'endommagement et peu aux distributions de probabilité.

Ces approches ont été relancées au début des années 2000 à l'Institut Fresnel [48] : la mise en place de systèmes de mesures automatisés, de contrôles rigoureux des paramètres de test, associée à de nouveaux outils de diagnostic

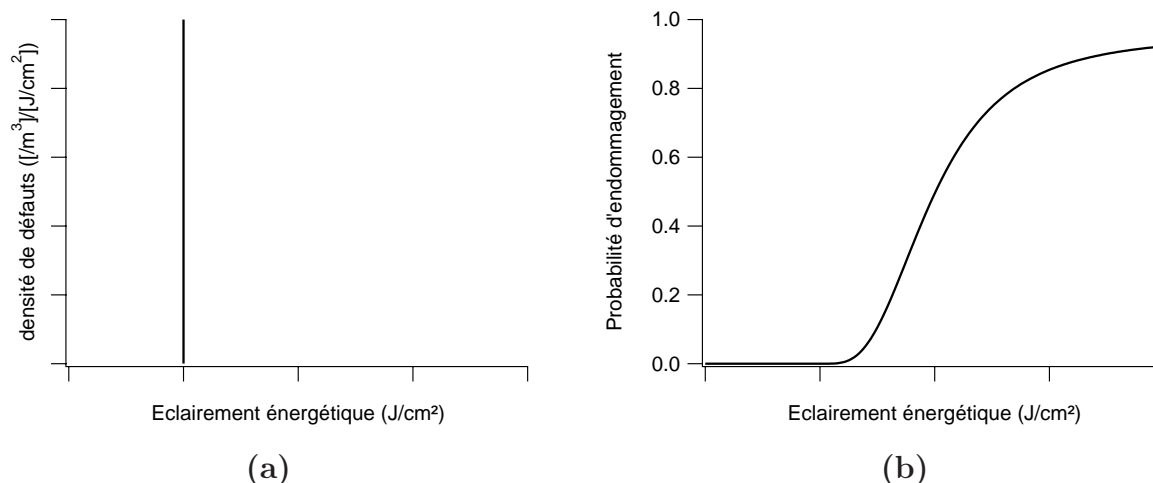


FIG. 1.13 – (a) Représentation de la distribution de défauts (le cas de défauts identiques et de distribués en seuil de claquage par des lois de puissance ont été traités par O'Connell). (b) Courbe de probabilité d'endommagement volumique correspondante.

permettent alors d'obtenir des courbes de probabilités d'endommagement très précises. Les modèles simples de distribution de défauts identiques ont alors été exploités pour interpréter les résultats obtenus. Cependant si cette approche a prouvé son utilité, elle s'est avérée assez rapidement limitée lorsque les progrès effectués sur la métrologie ont permis de mettre en évidence des situations difficilement appréhendables par cette analyse. En effet pour ajuster les courbes expérimentales, il était presque systématiquement nécessaire de faire intervenir plusieurs sortes de défauts ayant des seuils de claquage différents (figure 1.14).

Lors de la thèse d'Hélène Krol, nous avons donc cherché à étendre ce modèle simple, basé sur l'hypothèse de défauts identiques, en considérant une situation plus générale de défauts présentant des distributions de claquage. Sans connaissance a priori sur la nature et les propriétés des défauts, les répartitions de seuil que nous avons dans un premier temps choisi d'utiliser ont été des distributions Gaussiennes. Les lois de puissance utilisées précédemment dans les travaux de Porteus et Seitel n'avaient pas de justification sur le plan physique et elles avaient été introduites pour des raisons de flexibilité des ajustements. Une loi de distribution Gaussienne nous est apparue à l'époque plus facile à interpréter si l'on considère que l'endommagement est lié à des

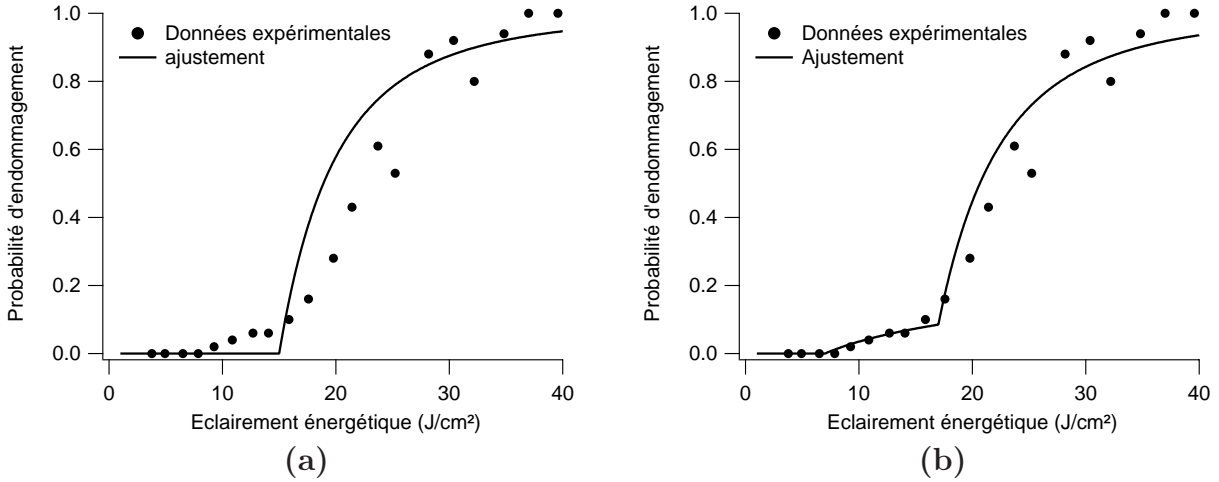


FIG. 1.14 – Courbe de probabilité d'endommagement mesurée sur une couche mince de silice à  $1064nm / 6ns$ . (a) Ajustement effectué en considérant des défauts identiques de seuil de claquage  $15J/cm^2$  (b) Ajustement effectué en considérant 2 sortes de défauts de seuil de claquage  $7$  et  $15J/cm^2$ .

défauts initiateurs : l'écart type de la Gaussienne peut alors être représentatif de variations de taille ou de propriétés physiques des défauts.

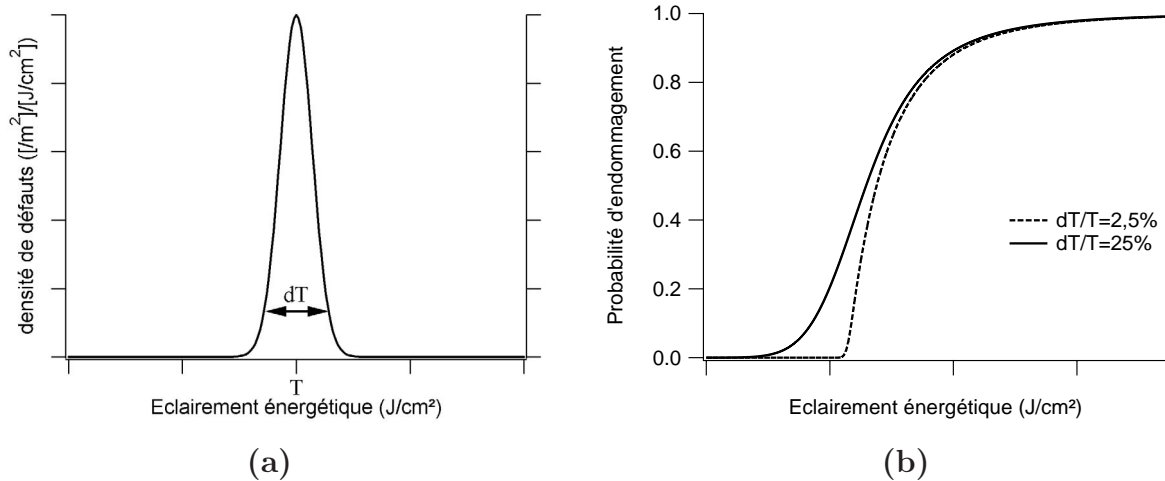


FIG. 1.15 – (a) Représentation de la distribution de défauts dans le cas d'une distribution de seuil de claquage Gaussienne (b) Courbes de probabilité d'endommagement surfacique correspondantes dans le cas d'un faisceau d'irradiation Gaussien.

Ce modèle a été développé pour traiter le cas des surfaces, des volumes ou



des couches minces optiques. On pourra en trouver le détail dans la référence [23]. Nous l'illustrons par une application sur la figure 1.16.

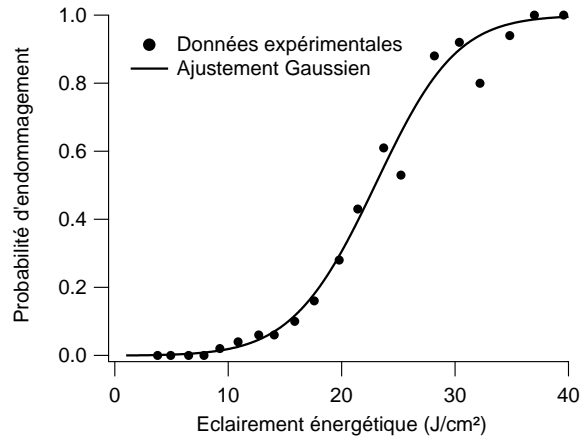


FIG. 1.16 – Courbe de probabilité d'endommagement de la figure 1.14 ajustée avec le modèle de distribution de seuil Gaussienne.

L'utilisation de cet outil permet d'identifier des classes de défauts dans les matériaux, auxquelles il est possible d'attribuer des caractéristiques (densité, écart type de seuil par exemple).

Nous l'avons appliqué au cours des thèses de H. Krol et J. Capoulade pour analyser les résultats obtenus sur différentes surfaces et différents matériaux. Le cas de surfaces présentant différentes finitions (usinage, polissage, nettoyage) est traité par exemple dans la référence [25]. Ces travaux ont permis de mettre en évidence des liens entre procédé de surfacage et tenue au flux laser des couches minces optiques. Ces dernières ont été particulièrement étudiées dans le cadre d'une collaboration entre l'équipe MAP2 et l'équipe RCMO de l'Institut Fresnel. Les résultats sont présentés dans les références [11] et [12]. Des monocouches de  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  (figure 1.17), deux matériaux couramment utilisés pour les applications de puissance, ont été déposés dans des conditions parfaitement contrôlées en utilisant différentes technologies de fabrication et paramètres de dépôt (Electron Beam Deposition, Ion Assisted Deposition, Low Voltage Reactive Ion Plating and Dual Ion Beam Sputtering). Nous avons également montré dans la référence [28] comment l'utilisation du modèle précédemment décrit combiné à une étude paramétrique permettait de discriminer différentes populations de défauts dans ce matériau et suivre leur

comportement lors d'irradiations répétées.

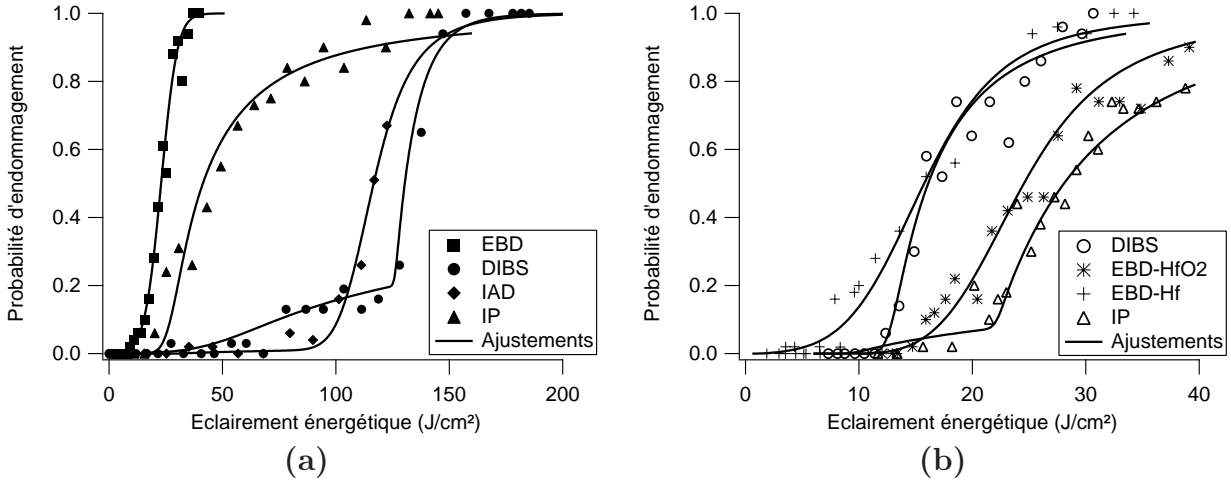


FIG. 1.17 – Courbes de probabilité d'endommagement mesurées à  $1064\text{nm}$  sur des monocouches de  $\text{SiO}_2$  (a) et  $\text{HfO}_2$  ( $1064\text{nm}/11\text{ns}$ ) (b) déposées avec différents procédés [11, 12].

Ces études ont été une avancée pour l'équipe dans l'interprétation des statistiques d'endommagement. Cependant, des paramètres essentiels tels que la taille, leur permittivité, n'étaient toujours pas accessibles. Par la suite, nous avons donc cherché à coupler cette approche phénoménologique à des modèles électromagnétiques et thermiques, dans l'objectif d'accéder aux paramètres physiques des défauts initiateurs de l'endommagement laser.

## 1.4 Couplage de l'approche statistique à des modèles physiques

Au cours de ma thèse, nous avons montré qu'il était possible d'estimer les valeurs d'indice complexe et de taille des centres précurseurs en combinant des modèles d'endommagement de type thermique aux modèles statistiques précédemment décrits [49]. L'idée de ces travaux était de se baser sur les seuils, densités et absorptions mesurées pour estimer de façon théorique les propriétés des défauts impliqués. Ces méthodes que nous avons qualifiées 'd'inverses' ont constitué le premier pas dans notre démarche de recherche d'une méthode d'identification des défauts. Ces dernières années, outre nos travaux, plusieurs équipes ont travaillé sur le couplage de modèles statistiques d'endommagement

à des modèles thermiques et électromagnétiques d'initiation, dans l'objectif d'identifier des défauts potentiels et d'interpréter qualitativement les données expérimentales. Feit et Rubenchik [50] ont en 2004 étudié l'implication de l'initiation de l'endommagement par des nano-absorbeurs distribués en taille sur les probabilités d'endommagement. Ils ont montré que dans le cas du KDP, cette hypothèse était en accord avec les résultats expérimentaux et permettait d'interpréter les lois d'échelle temporelles et les effets de conditionnement des cristaux. Ces travaux ont été ensuite étendus pour traiter le cas de défauts non sphériques (typiques des cristaux) [51]. Duchateau et Dyan [52, 53, 54] se sont également intéressés au couplage de l'initiation de l'endommagement par des nano-absorbeurs aux probabilités d'endommagement. Ils ont notamment étudié l'hypothèse de l'agrégation de défauts nanométriques et montré que l'existence d'effets collectifs était en accord avec les résultats expérimentaux dans le cas du KDP, ce qui a permis d'identifier des candidats potentiels.

Dans ce contexte notre travail a consisté à prendre en compte les paramètres physiques des défauts initiateurs pour les injecter dans nos modèles statistiques, et être capable d'interpréter nos données expérimentales en termes de nature et de taille de défauts, et non plus en termes de distributions virtuelles. Etant donné que nous nous intéressons à des défauts de dimension sub-longueur d'onde, un des principaux problèmes dans ce type d'approche est d'évaluer les propriétés des défauts, qui peuvent différer fortement des propriétés du matériau massif. Pour cela nous avons utilisé des modèles issus de la littérature, notamment décrits dans les travaux de revue de Kreibig et Volmer [55]. Des calculs électromagnétiques sont de plus nécessaires pour calculer la puissance absorbée par un défaut. Les défauts que nous considérons dans nos études étant supposés sphériques en première approche nous avons utilisé la théorie de Mie. Des codes de calcul ont été développés dans l'équipe par P. Voarino au cours de sa thèse pour des applications à la diffusion lumineuse [56] et ont ensuite été appliqués aux problématiques de l'endommagement laser [49].

Ces codes de calcul nous permettent d'accéder à l'absorption du défaut en fonction de sa permittivité et de celle du milieu hôte, de sa taille, de la longueur d'onde et de la polarisation du laser (figure 1.18). La pertinence de ces calculs a pu être vérifiée expérimentalement grâce à des études sur des défauts modèles tels que ceux décrits dans les références [42, 43, 57, 58](nano-

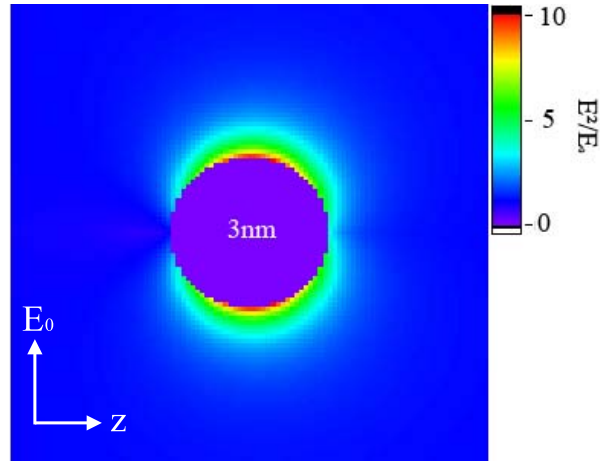


FIG. 1.18 – Cartographie du module du champ électrique autour d'une bille d'or dans le plan de polarisation. La propagation du faisceau se fait vers les  $z$  positifs.

inclusions d'or). En utilisant les outils de microscopie photothermique à haute résolution développés lors des thèses de A. During [59] et B. Bertussi [60] des défauts nanométriques de quelques dizaines de nanomètres ont pu être isolés. Des procédures de calibration appropriées ont alors permis d'obtenir des valeurs quantitatives de l'absorption en fonction de la taille des défauts [34]. Ces données ont ensuite pu être comparées aux simulations, comme cela est présenté sur la figure 1.19.

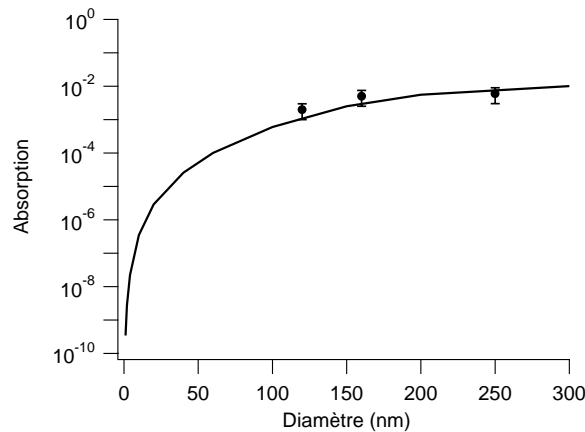


FIG. 1.19 – Absorption théorique et expérimentale d'une bille d'or en fonction de sa taille pour la longueur d'onde 1064 nm.

Pour aborder le problème de l'apparition d'un endommagement nous avons été amené à émettre des hypothèses simplificatrices en considérant que l'endommagement était lié uniquement à l'atteinte d'une température critique par le défaut. Ce critère est arbitraire, mais il est basé sur l'existence d'un processus d'emballement thermique au dessus d'une certaine température, conduisant à la formation d'un plasma et à un endommagement mécanique du matériau [61, 62]. Dans nos études nous avons considéré comme température critique la température de fusion du défaut : en effet les travaux que nous avons mené sur des défauts artificiels ont montré la validité de ce critère dans le cas de défauts métalliques, jusqu'à quelques dizaines de nanomètres [58].

Connaissant le terme source, des calculs de thermique effectués en symétrie sphérique nous permettent d'évaluer la montée en température d'un défaut et de la matrice environnante. Il est ainsi possible de calculer la densité d'énergie nécessaire pour atteindre le critère de dommage en fonction des paramètres du défaut, de la matrice, et des conditions d'irradiation (figure 1.20).

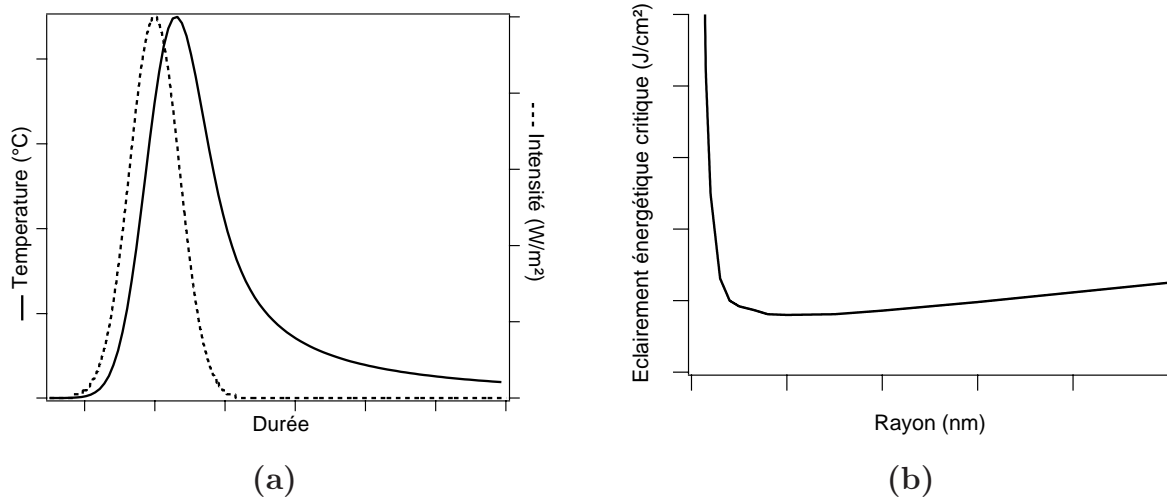


FIG. 1.20 – (a) *Elévation de température d'un défaut absorbant inclus dans une matrice homogène dans le cas d'une impulsion de 20 nanosecondes.* (b) *Eclairement énergétique nécessaire à l'atteinte du critère de dommage (valeur critique) en fonction de la taille du défaut.*

Ainsi cette approche nous permet d'affecter un seuil de dommage à un type de défaut particulier. Pour relier ceci aux statistiques d'endommagement

il est nécessaire de connaître la nature et la répartition des défauts (densité de défauts en fonction de leur taille). Il est alors possible pour un éclairement énergétique donné de calculer la densité de défauts pouvant initier un endommagement, pour finalement aboutir à la distribution des défauts en fonction de leur seuil de claquage et ainsi obtenir la probabilité d'endommagement en fonction des paramètres d'irradiation de façon similaire à celle que nous avons décrite dans la partie 1.3.

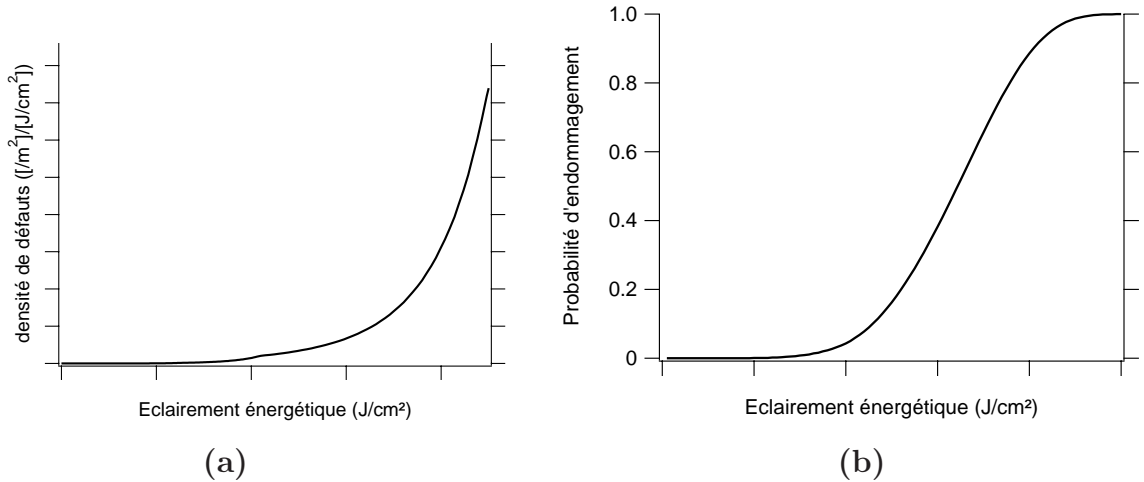


FIG. 1.21 – (a) Représentation d'une distribution de défauts calculée. (b) Courbe de probabilité d'endommagement correspondante.

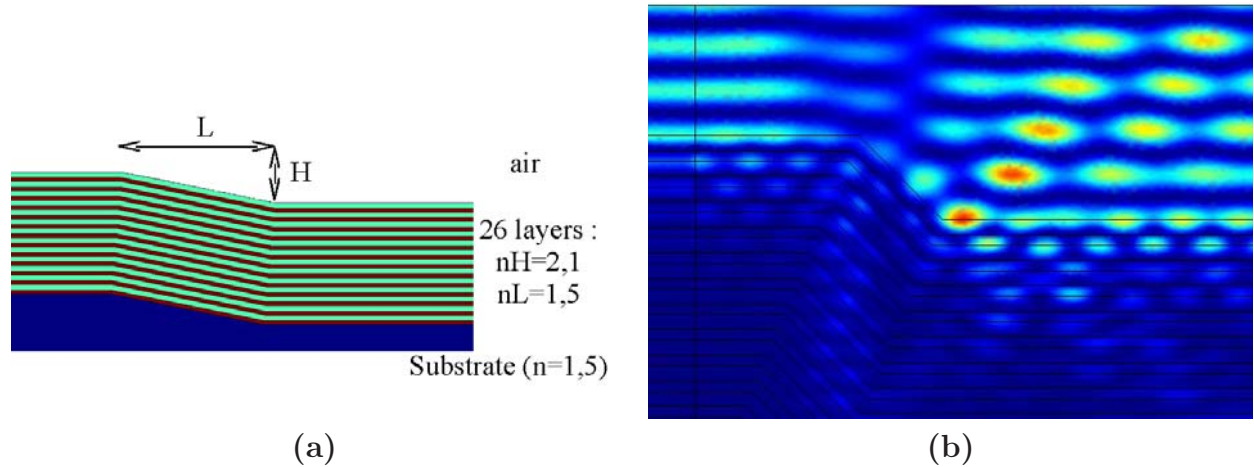
Dans les cas réels que nous étudions, les défauts ne sont bien entendu pas connus, ou alors très imparfaitement. La démarche utilisée est donc inverse : nous partons des résultats expérimentaux, et en ajustant les courbes expérimentales avec notre modèle nous essayons d'obtenir des informations sur la nature des défauts. Ces méthodes ne permettent pas bien sûr d'identifier avec certitude les défauts mis en jeu, mais elle permet de mettre en évidence certains candidats potentiels ou en éliminer d'autres. Ce type de modèle a été appliqué à l'étude de différents échantillons, tels ceux de couches minces de  $\text{HfO}_2$ , comme nous le présentons dans le papier [63]. Dans ce cas précis des agrégats de Hf métal avaient été indentifiés comme candidats potentiels.

## 1.5 Modélisation multiphysique pour l'étude de défauts et de structures complexes

Le modèle décrit précédemment est intéressant pour l'analyse des phénomènes d'endommagement car les outils de simulation sont relativement simples. Cependant travailler avec des défauts sphériques, dans des matériaux infinis, homogènes et dont les propriétés sont inchangées au cours de l'irradiation est évidemment très limité. En effet ce cas est peu représentatif d'un système complexe tel qu'un empilement multicouche. Ainsi, pour aller plus loin nous avons cherché à perfectionner nos outils théoriques.

Dans la littérature, nous pouvons trouver différentes approches pour traiter le phénomène de l'initiation de l'endommagement laser en régime nanoseconde. Les premiers développés par Hopper et Uhlman [64] ont permis de traiter le cas d'inclusions métalliques dans des verres et d'étudier l'effet des propriétés de ces défauts sur la montée en température. Avec les moyens de calcul disponibles à l'heure actuelle des modèles beaucoup plus poussés ont été développés, permettant d'évaluer par exemple les conséquences de surintensifications du champ électromagnétique par des fractures [65], des structures diffractives [66], des nodules dans les empilements multicouches [67, 68], de calculer les élévations de température liés à des défauts absorbants dans la silice [43] ou le KDP [52]. L'originalité de notre approche a consisté à développer un modèle polyvalent, permettant de traiter le cas de défauts isolés ou multiples, ayant des propriétés et morphologies arbitraires, dans des structures elles aussi arbitraires. Pour cela, nous nous appuyons sur une modélisation électromagnétique rigoureuse couplée à un modèle thermique prenant en compte la distribution des sources de chaleur dans le matériau et la dépendance des paramètres à la température. Cet outil a été mis en place dans le cadre du post-doctorat de Guillaume Demesy en s'appuyant sur son travail de thèse sur la modélisation tri-dimensionnelle de réseaux complexes dans les capteurs CMOS [69]. Les premières études réalisées dans le cadre de ce travail l'ont été sur des structures diffractives, pour lesquelles des codes 2D ont été utilisés (figure 1.22). Nous avons pu mettre en évidence l'implication de surintensifications dans l'apparition des dommages sur ce type de structures [14], de plus en plus rencontrées dans le domaine des lasers de puissance. Un modèle

abouti couplant électromagnétisme et thermique et permettant de traiter des cas tri-dimensionnels est maintenant disponible (figure 1.23). Une description complète peut être trouvée dans la référence [70].



## 1.6 Conclusion & perspectives

En conclusion de ce chapitre, nous pouvons indiquer que le travail de modélisation est poursuivi par X. Fu dans le cadre de sa thèse ayant débuté en septembre 2009. L'objectif principal est de valider expérimentalement, améliorer ces travaux théoriques à l'aide de l'étude de défauts modèles, puis grâce à des méthodes inverses, utiliser ces développements théoriques sur des systèmes réels. Un autre centre d'intérêt des études actuelles est la tenue au flux en régime nanoseconde des mixtures d'oxydes, matériaux ayant des propriétés particulièrement intéressantes pour les multicouches destinées aux lasers de puissance mais dont les propriétés et le comportement sous irradiation sont encore très mal connus. Nous reparlerons de ces matériaux au chapitre suivant.



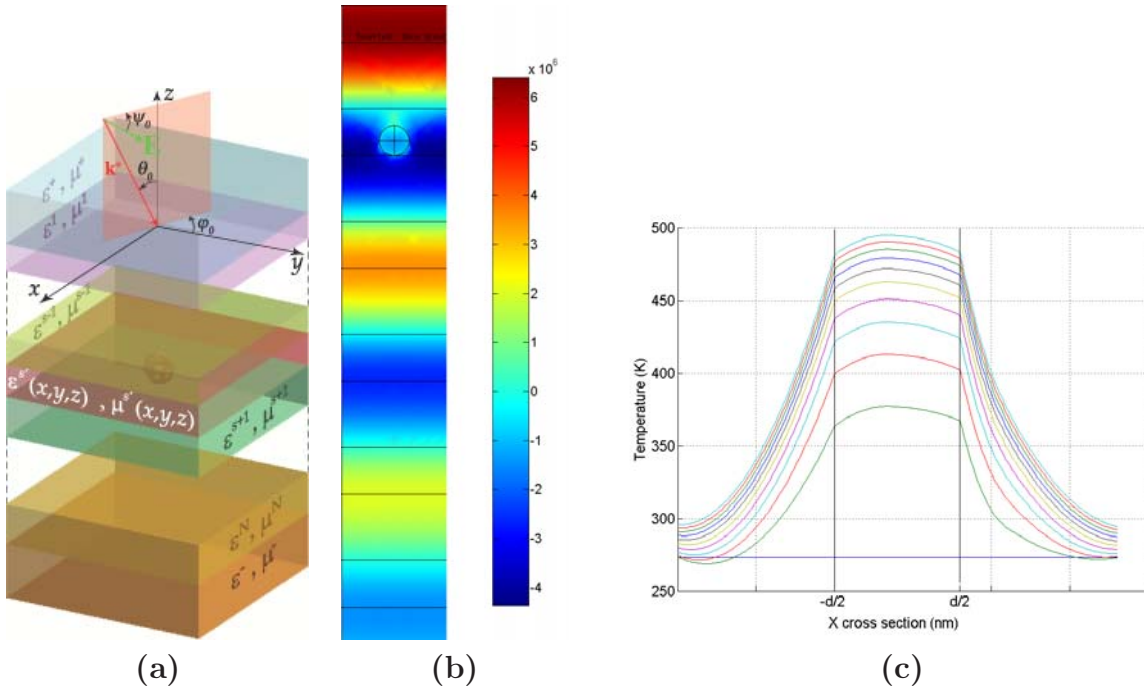


FIG. 1.23 – (a) Représentation schématique de la géométrie et des notations utilisées pour l'étude d'un problème multiphysique particulier (b) répartition d'intensité dans un système multicouche (miroir) incluant un défaut sphérique (c) répartition de température dans le défaut à différents instants de l'irradiation [70]

# Chapitre 2

## L'endommagement laser des couches minces optiques en régime sub-picoseconde

### Sommaire

---

3.1	Introduction, contexte des travaux . . . . .	63
3.2	Analyse des modifications du matériau liées à l'endommagement laser sur la silice . . . . .	65
3.3	Etude thermomécanique de l'interaction laser CO <sub>2</sub> /silice . . . . .	67
3.4	Mise au point d'une méthode de stabilisation d'optiques endommagées par laser . . . . .	72
3.5	Conclusion & perspectives . . . . .	75

---



## 2.1 Introduction

Les lasers à courtes durées d'impulsion ont connu une croissance rapide tant en puissance qu'en terme d'applications depuis l'avènement des systèmes CPA (Chirped Pulse Amplification). Initialement motivé par la recherche fondamentale, le développement des lasers femtoseconde est aujourd'hui relié à de nombreuses applications métrologiques, industrielles et médicales. En permettant d'agir de manière contrôlée sur la matière à l'échelle sub-micrométrique et en ouvrant la possibilité d'étudier temporellement des processus brefs avec une résolution femtoseconde, les lasers ultra courts ont fourni à la physique, à la chimie et à la biologie des outils de recherche avec des potentialités inattendues. Du fait de la courte durée des impulsions, des puissances extrêmes peuvent être atteintes, même à des énergies modérées : par exemple à 10fs une impulsion de 10mJ a une puissance crête de l'ordre du TeraWatt. Cette puissance pouvant être focalisée sur quelques microns. Ces sources sont aujourd'hui utilisées dans de nombreux domaines tels que la médecine, l'usinage de haute précision, l'étude de phénomènes ultrarapides et la microscopie non linéaire par exemple. Le domaine des sources lasers femtosecondes connaît ainsi un développement technologique très rapide : des sources de plus en plus compactes et simples d'utilisation sont mises sur le marché, et sur le plan de la recherche les frontières en terme de puissance crête, d'énergie ou de durées d'impulsion sont également toujours repoussées [71, 72, 73]. La génération et la manipulation de ces impulsions femtosecondes requiert des composants optiques spécifiques pour compenser la dispersion, compresser/étirer temporellement, gérer la large bande spectrale mise en jeu à chaque réflexion ou passage dans un composant. L'évolution rapide de la technologie laser femtoseconde pose d'énormes défis technologiques sur les composants couches minces. La capacité de résistance au flux de ces composants face à des puissances crêtes de plus en plus élevées constitue un verrou technologique pour l'obtention de systèmes laser à haute puissance. Par conséquent l'étude de l'endommagement laser constitue un véritable enjeu dans ce domaine. Cette thématique fait ainsi l'objet de plus en plus d'attention dans la communauté scientifique. Le cas des couches minces optiques a cependant été peu étudié, en comparaison de ce qui a été fait dans le régime nanoseconde. Les couches minces optiques sont pourtant au coeur de ces systèmes et outre les composants classiques,

elles trouvent de nouvelles fonctions par exemple dans les systèmes de compression et le contrôle de la dispersion [74, 75, 76, 77, 78]. Dans ce contexte il nous est apparu naturel d’orienter nos recherches sur cette thématique. Nos études sur ce sujet ont ainsi commencé en 2008 avec le démarrage de la thèse de B. Mangote et dans le cadre du projet ANR FESTIC (FE<sub>m</sub>toSecond laser Trimming of Interference Coatings). Ce projet, financé par l’ANR, la Région PACA et le CG13, a regroupé différents partenaires universitaires et industriels : Laboratoire d’Optique Appliquée, Laboratoire Plasmas et Procédés Photoniques, équipes RCMO et MAP2 de l’Institut fresnel, CILAS, Amplitude. L’objectif consistait à mettre en oeuvre les propriétés particulières de l’interaction laser/matière en régime femtoseconde, pour modifier, avec une résolution spatiale inférieure à la centaine de nanomètres, l’indice de réfraction et/ou les caractéristiques géométriques d’une ou de plusieurs des couches minces constitutives d’un filtre optique interférentiel déposé à la surface d’un substrat. Ce mécanisme de retouche locale a pour objet d’être mis à profit pour optimiser les performances de filtres à bande très étroite, pour réaliser de nouveaux composants adaptés à la mise en forme de faisceau laser, pour créer des filtres inverses par gravure de structures périodiques 2D dans des empilements de couches minces ou pour structurer la face supérieure d’un substrat massif en vue de modifier ses propriétés de réflexion ou de déphasage. Afin de réaliser ces modifications d’indice optique et d’effectuer des gravures dans un empilement de couches minces il est nécessaire d’étudier et de comprendre les mécanismes d’interaction laser/matériau couches minces dans le but d’identifier les différents paramètres clés pour l’obtention d’un résultat optimal. C’est sur ce point que nous nous sommes impliqués dans ce projet. Les travaux que nous avons réalisés dans ce cadre ont consisté à : mettre en oeuvre une métrologie robuste permettant de réaliser des mesures de l’énergie déposée sur l’échantillon avec une grande précision, et étudier l’importance des conditions de préparation des couches (épaisseurs, techniques et paramètres de dépôt) sur les morphologies et seuils obtenus.

Il s’agissait alors d’un sujet tout à fait nouveau dans l’équipe puisque comme nous allons le voir les mécanismes mis en jeu sont radicalement différents du régime nanoseconde qui a été l’objet de nos investigations pendant de nombreuses années. La première partie du travail a consisté à développer un

banc de mesure de tenue au flux en régime sub-picoseconde, que nous allons décrire dans la première partie. Une des originalités du banc est l'utilisation d'un laser Ytterbium pompé par diode permettant de délivrer des impulsions à 1030nm. Le laser titane-saphir TiSa, avec sa longueur d'onde centrale près de 800nm, étant la source laser femtoseconde la plus populaire, les quelques études portant sur les couches minces optiques ont été réalisées à 800nm. Cependant une nouvelle génération de lasers femtoseconde se développe depuis plusieurs années : basés sur un milieu à gain dopé Ytterbium, ces nouveaux lasers peuvent être pompés par diodes et constituent une solution compacte et faible coût, capable de générer des énergies de sortie supérieures à celles obtenues avec des lasers conventionnels TiSa. En outre, plusieurs lasers à haute puissance en cours de développement (PETAL [71], première étape dans le projet HiPER [72] par exemple) fonctionneront à 1053nm. Il nous est donc apparu intéressant de s'orienter vers ces longueurs d'ondes où quasiment aucune donnée n'est disponible dans la littérature. L'autre originalité du banc réside dans la métrologie qui a été développée et qui permet d'atteindre des précisions extrêmes en matière de détermination du seuil d'endommagement. Le deuxième volet a porté sur la modélisation du processus d'initiation d'endommagement dans les couches minces optiques. L'endommagement de matériaux diélectriques est le résultat de processus complexes impliquant l'absorption linéaire et non linéaire ainsi que des effets thermiques et mécaniques [79, 80]. A l'échelle sub-picoseconde, seuls les processus électroniques sont sollicités par le champ électrique et contribuent à l'absorption de l'énergie provenant de l'impulsion laser. De plus l'absorption a lieu à une échelle de temps très courte comparée au temps de transfert de la chaleur. Il est alors possible de découpler et de traiter séparément les mécanismes d'absorption, de transfert de l'énergie à la structure et la dégradation physique du composant. En se basant sur les modèles développés dans le cas des matériaux diélectriques massifs, nous avons mis en place un modèle spécifique aux couches minces optiques, capable de prendre en compte les effets interférentiels dans ce type de systèmes. Les outils théoriques et expérimentaux que nous avons développés ont ensuite été mis en oeuvre pour analyser les processus d'endommagement dans les couches minces optiques. Nous détaillerons dans les parties 3 et 4, les études que nous avons menées, en particulier une étude exhaustive de mixtures d'oxydes, maté-

riaux particulièrement intéressants pour les applications lasers puisque le gap et l'indice peuvent être ajustés à volonté, mais dont la tenue au flux n'avait pas été étudiée.

## 2.2 Banc d'interaction laser sub-picoseconde / couches minces optiques

### 2.2.1 Configuration expérimentale et spécificités du système développé

La source laser utilisée est de type Ytterbium pompé par diode permettant de délivrer environ 1mJ à 1030nm. La durée d'impulsion est accordable dans la gamme 450fs-3ps avec la possibilité de compresser ensuite l'impulsion pour atteindre la centaine de fs. La fréquence de répétition est également ajustable du monocoup à 100kHz. L'intérêt de ce banc réside dans la possibilité de faire varier de façon contrôlée l'ensemble des paramètres (taille de faisceau, durée d'impulsion, fréquence) et de détecter de façon très fine les modifications créées sur l'échantillon grâce à un microscope Nomarski monté en ligne. Un schéma de la configuration expérimentale peut être trouvé en figure 2.1.

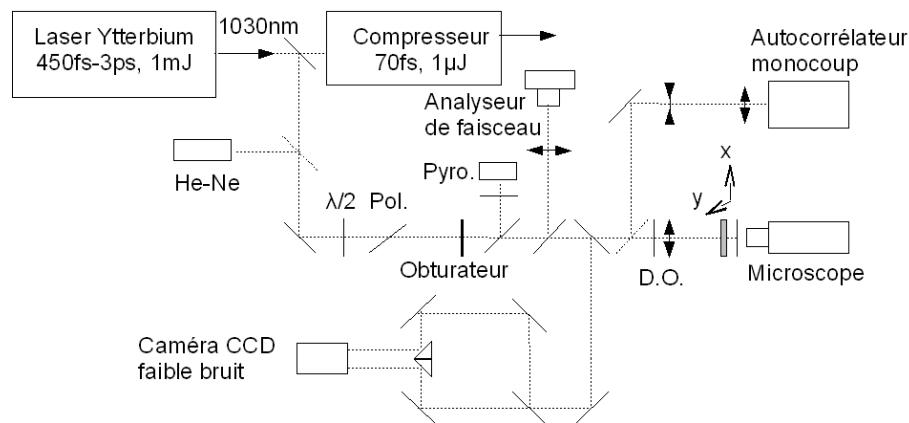


FIG. 2.1 – Banc de tenue au flux laser en régime femtoseconde.

L'ensemble du système est entièrement automatisé, sur le même principe que les bancs nanoseconde précédents. Un soin tout particulier a été porté sur la maîtrise des paramètres de tir et la reproductibilité des mesures (aucune

déviations des valeurs de seuil trouvées sur des échantillons similaires sur 2 ans d'activité de l'expérience). Une présentation détaillée pourra en être trouvée dans le manuscrit de thèse de B. Mangote. Précisons que ce dispositif et les méthodes associées que nous présentons plus bas ont fait l'objet de plusieurs communications et d'un article commun avec l'équipe RCMO (soumis à Review of Scientific Instruments).

### 2.2.2 Mesure de seuil de dommage à très haute précision et étude du déterminisme

Dans le régime sub-picoseconde les processus d'endommagement pour les diélectriques sont considérés comme déterministes [8, 81, 82] : il existe une valeur seuil intrinsèque au matériau à partir de laquelle le matériau s'endommage et en dessous de laquelle il reste intègre. Il s'agit donc d'un comportement totalement différent du cas des impulsions nanosecondes. L'endommagement par des courtes durées d'impulsion est en effet le résultat de processus purement électroniques : des électrons libres sont générés dans le matériau par des processus d'absorption non-linéaires jusqu'à une densité critique à partir de laquelle se produit une dégradation irréversible du matériau. Nous reviendrons plus longuement sur ce point dans la partie suivante, mais nous retiendrons que l'irradiation laser génère des défauts électroniques (par photo-ionisation) et que par conséquent le processus est peu sensible aux défauts initiaux nano/micrométriques. Plusieurs études ont été conduites sur cet aspect déterministe de l'endommagement en régime sub-picoseconde, dans les matériaux diélectriques sous leur forme massive [83, 9, 84] ou couches minces [9, 85], aboutissant à des résultats parfois contradictoires, pouvant être liés au fait que des séries de tirs plutôt que des tirs uniques ont été utilisés, ou de part les barres d'erreurs importantes sur les valeurs mesurées. Les matériaux en couche mince étant loin d'être homogènes et exempts de défauts pouvant entrer en jeu dans les mécanismes de photo-ionisation et d'avalanche, il nous est ainsi apparu important de nous pencher sur le possible déterminisme du mécanisme d'endommagement, particulièrement pour identifier des procédures de test adaptées. Ceci revient à mesurer le plus précisément possible la largeur de la transition de 0 à 1 dans une courbe de probabilité d'endommagement. En collaboration avec l'équipe RCMO nous avons ainsi étudié ce caractère



'déterministe' dans le cas des couches minces optiques.

Sur un bras dédié de l'expérience présentée en figure 1 un système de mesure de fluence à très haute précision a été implémenté. Ce système repose sur l'utilisation d'une caméra CCD refroidie, synchronisée avec le laser afin d'enregistrer le profil spatial de chaque impulsion incidente sur l'échantillon (caméra placée dans un plan équivalent). La dynamique de la caméra, son faible niveau de bruit et son faible temps d'acquisition permettent d'enregistrer de façon très précise l'énergie (intégrale sur la surface d'acquisition) ou la fluence maximale (maximum d'intensité sur la caméra) déposée sur l'échantillon. Après une phase d'étude des différents bruits (reportée en ref [86]) l'erreur relative sur la détermination de la fluence est estimée à  $\pm 0,6\%$ . Ce résultat est intéressant en comparaison d'autres bancs d'endommagement où cette précision est de l'ordre de 5 à 10%, et peut atteindre plusieurs dizaines de % [85, 87, 21, 88, 89, 90, 66, 22, 84]. Des exemples de résultats sont donnés sur la figure 2.2 où un comportement parfaitement déterministe est mis en évidence dans le cas d'une surface de silice superpolie et d'une couche mince de  $\text{HfO}_2$ . Les études menées en collaboration avec le VULRC ont permis également de montrer que ce comportement était conservé jusqu'à des durées de 24ps [17].

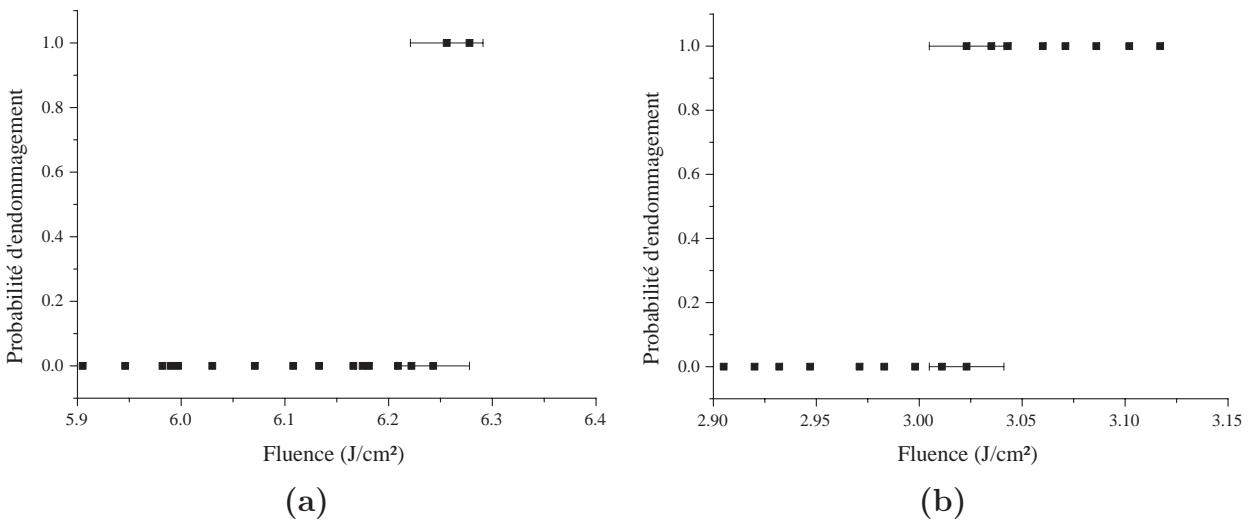


FIG. 2.2 – Probabilités d'endommagement mesurées à 1030nm, 500fs, diamètre de faisceau de 53mm à 1/e pour (a) une surface de silice superpolie, (b) une couche de  $\text{HfO}_2$  déposée par IAD

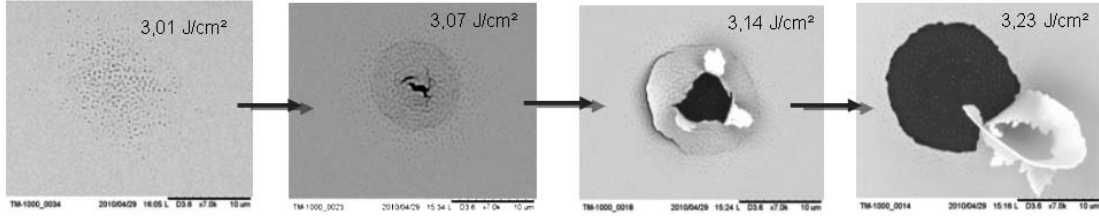


FIG. 2.3 – Images MEB d'une couche d'HfO<sub>2</sub> 2H à 1030nm endommagée à différents niveaux de fluence.

## 2.3 Interaction d'une impulsion laser ultra-courte avec un système multicouche diélectrique

En régime sub-picoseconde l'absorption de l'énergie fournie par l'impulsion laser a lieu à une échelle de temps très courte comparée aux durées de transferts thermiques. Contrairement au régime nanoseconde qui a été traité précédemment il est possible dans ce régime de découpler et de traiter séparément le mécanisme d'absorption, le mécanisme de transfert de l'énergie à la structure, et la dégradation physique et irréversible du matériau [80]. Ceci facilite grandement le traitement du problème. Dans les matériaux diélectriques et transparents aux longueurs d'ondes d'utilisation, ce qui est notre sujet d'intérêt, les mécanismes d'absorption mis en jeu à ces durées d'impulsion sont de nature non-linéaire. On peut en distinguer 2 grandes classes : photo-ionisation et ionisation par impact (voir par exemple les articles de synthèse sur ce sujet [79, 80]). Ces processus vont entraîner la génération d'électrons libres dont la densité va croître durant l'impulsion. Après l'impulsion, l'énergie de ces électrons va être transférée à la structure ce qui peut entraîner une dégradation du matériau par fusion, vaporisation, explosion coulombienne, contraintes thermomécaniques,... Ces processus d'endommagement et d'ablation sont complexes et font l'objet de nombreux travaux à l'heure actuelle dans la communauté. De plus, d'autres phénomènes spécifiques aux fortes intensités mises en jeu viennent complexifier le problème : autofocalisation, automodulation de phase, dispersion de vitesse de groupe,... Pour traiter la problématique de l'endommagement en régime sub-picoseconde nous nous sommes orientés vers l'approche classiquement utilisée dans ce domaine qui consiste à

utiliser une description phénoménologique de la génération d'électrons libres au cours de l'irradiation : la variation au cours du temps de la densité électronique ( $N$ ) est égale à la somme des taux de photoionisation ( $W_{PI}$ ), d'avalanche ( $W_{AI}$ ) et d'un terme de relaxation qui prend en compte la désexcitation des électrons de la bande de conduction vers des niveaux électroniques moins élevés [91].

$$dN/dt = W_{PI} + W_{AI} - W_{relaxation} \quad (2.1)$$

La contribution relative de chacun de ces différents mécanismes dans le cas de diélectriques excités par des impulsions sub-picosecondes fait l'objet de débats dans la littérature, particulièrement sous la centaine de femtosecondes [83, 82, 81, 92, 93]. De plus les paramètres utilisés dans ces modèles ne sont pas parfaitement connus, particulièrement dans le cas de matériaux en couches minces dont les propriétés peuvent être très différentes d'un matériau massif. L'étude de la variation des seuils d'endommagement avec différents paramètres de l'irradiation laser ou du matériau est alors un moyen particulièrement intéressant de quantifier certains de ces paramètres. Sur cet aspect, les influences relatives sur le seuil d'endommagement des couches minces optiques de la longueur d'onde, de la durée d'irradiation ou de la largeur de bande interdite ont été étudiés dans différents travaux [85, 90, 94] et il a été démontré la pertinence de l'utilisation de ce type d'approche pour décrire le phénomène d'endommagement.

La contribution de nos travaux dans ce domaine a été de prendre en compte les phénomènes transitoires interférentiels survenant dans les matériaux diélectriques multicouches soumis à des champs électriques intenses [16]. La particularité des couches minces optiques est en effet la présence d'effets interférentiels générant une distribution de champ électrique dans la structure qu'il est nécessaire de prendre en compte pour l'interprétation de phénomènes d'endommagement laser [85]. Lors d'irradiations sub-picosecondes les densités électroniques générées à des niveaux de puissance proches du seuil d'endommagement sont telles ( $10^{21}$ - $10^{22}$   $\text{cm}^{-3}$ ) [9] que la fonction diélectrique, ou l'indice complexe du matériau irradié vont être fortement modifiés [95, 96, 97, 98]. Les conséquences de modifications d'indice des matériaux au cours de l'impulsion sont des variations de la répartition du champ électrique dans la structure :

dans les zones où l'intensité est la plus forte la réponse optique du matériau, initialement due aux électrons liés, va graduellement acquérir le caractère d'un métal, où la réponse est due aux électrons libres. Cet effet est fortement non-linéaire et est particulièrement important à prendre en compte dans les couches minces optiques puisque la répartition d'intensité peut être totalement changée par cet effet. Des expériences de type pompe/sonde résolues en temps ont permis de mettre en évidence de tels effets dans les matériaux optiques [95, 96] et notamment dans les couches minces [99, 100], ce qui souligne l'importance de la prise en compte de cet effet. Dans nos travaux nous avons utilisé un modèle de Drude pour décrire la dépendance de la fonction diélectrique avec la densité électronique. Grâce à un maillage 1D d'un empilement multicouche, et une approche numérique, il est alors possible de résoudre les équations différentielles couplées décrivant les variations de densité électronique dans la structure. Le taux de photo-ionisation est décrit par la théorie de Keldysh [101] et le taux d'avalanche en calculant le taux de chauffage des électrons dans la bande de conduction par un modèle de Drude. Cette approche permet de calculer l'évolution de la répartition du champ et la réponse temporelle d'un système multicouche quelconque soumis à une impulsion de profil temporel, incidence et polarisation arbitraire. A titre d'illustration nous représentons sur la figure 2.4 la réponse d'un empilement de type anti-reflet à 1053nm, constitué de 3 couches de SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub>.

L'approche qui a été développée présente quelques limitations. Du point de vue physique elle est assez simpliste et nous travaillons actuellement sur l'approche de Rethfeld [103] qui permet de mieux décrire l'évolution de l'énergie des électrons dans la bande de conduction. Du point de vue applicatif la largeur spectrale de l'impulsion n'est pas prise en compte actuellement, ce qui peut être un point délicat pour traiter le cas de certains systèmes multicouches dont la réponse est fortement dépendante de la longueur d'onde [76]. Une autre limitation concerne les très courtes durées d'impulsion : le traitement adopté considère des ondes stationnaires, la durée de l'impulsion doit ainsi être grande par rapport à la durée de traversée du milieu (quelques dizaines de femtosecondes). Certaines approches plus complexes que le traitement matriciel pour calculer la réponse du système multicouche sont cependant envisageables pour traiter ce problème [104].

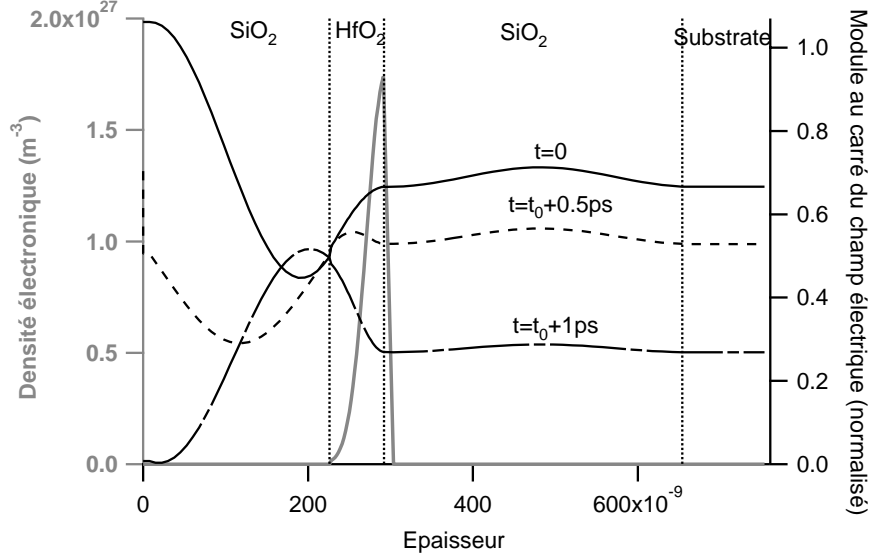


FIG. 2.4 – Distribution de champ électrique et densité électronique maximale dans un anti-reflet soumis à une impulsion de  $2 \text{ J/cm}^2$ ,  $1 \text{ ps}$ ,  $1053 \text{ nm}$ . La structure de l'empilement est Verre/ $2L0.5H1.25L$ /Air). L'impulsion a un profil temporel gaussien, est centrée à  $t=0,5 \text{ ps}$ , et a une durée à mi-hauteur de  $1 \text{ ps}$ . Le champ électrique (axe de droite) est calculé à  $t=0$ ,  $0.5$  et  $1 \text{ ps}$ . La densité électronique maximale atteinte (axe de gauche) est calculée dans l'épaisseur de la structure. Cette structure est normalement optimisée pour réduire la valeur du champ à l'interface  $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$  [102], ce qui a un fort intérêt pour des applications à haute tenue au flux en régime nanoseconde : le maximum d'intensité a lieu dans  $\text{SiO}_2$ , matériau le plus résistant. En régime femtoseconde par contre nos calculs montrent qu'un maximum de champ transitoire est atteint dans  $\text{HfO}_2$ , où l'endommagement apparaît (densité critique de  $2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ).

## 2.4 Etude des oxydes simples

Les oxydes sont une classe importante de matériaux pour les couches minces optiques. D'autres classes existent également pour diverses applications. On peut citer les fluorures ( $\text{CaF}_2$ ,  $\text{AlF}_3$ ,  $\text{MgF}_2$ ,  $\text{YF}_3$ ,...), sulfures ( $\text{ZnS}$ ,  $\text{CdS}$ ), séléniures ( $\text{ZnSe}$ ) et tellénures ( $\text{CdTe}$ ,  $\text{PbTe}$ ). Cependant, dans le domaine visible ou proche infrarouge, où opèrent la majorité des lasers subpicoseconde de puissance, ce sont principalement les oxydes qui sont utilisés. Ces matériaux possèdent de nombreux avantages. Ils permettent la formation de films denses, résistant à l'abrasion et présentant une très faible absorption résiduelle. Ces matériaux s'avèrent également chimiquement stables tout en étant peu sen-

sibles à l'environnement. En outre ceux-ci permettent d'accéder à une grande variété d'indices de réfraction. Différentes techniques de dépôt peuvent être envisagées pour réaliser ces couches, pouvant conduire à des propriétés très différentes (indice de réfraction, coefficient d'extinction, largeur de bande interdite, rugosité, cristallinité, seuil d'endommagement) [105,106,107,108,109]. Parmi les oxydes couramment employés citons  $\text{SiO}_2$  et son indice de réfraction d'environ 1,45 à  $1\mu\text{m}$ ,  $\text{TiO}_2$  ( $\approx 2,25$ ),  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  ( $\approx 2,2$ ),  $\text{HfO}_2$  ( $\approx 2,2$ ),  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $\approx 1,6$ ),  $\text{ZrO}_2$  ( $\approx 2,2$ ),  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  ( $\approx 2,3$ ),  $\text{Y}_2\text{O}_3$  ( $\approx 1,9$ ). La tenue au flux de ce type de matériau a été particulièrement étudiée en régime nanoseconde, notamment au cours de nos propres travaux. Dans le domaine subpicoseconde et femtoseconde ces matériaux ont fait l'objet de peu d'études, comme nous l'avons développé précédemment. Il y a un pourtant grand intérêt à comprendre l'influence des paramètres de dépôt, des propriétés des couches, des conditions environnementales...sur les mécanismes de l'endommagement et le seuil de tenue au flux laser. Nous nous sommes ainsi intéressés dans ces premiers travaux dans l'équipe à des échantillons composés d'une seule couche, de matériaux 'classiques'. Notre démarche a consisté à analyser une grande diversité d'échantillons ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{HfO}_2$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), grace notamment à plusieurs collaborations : équipe RCMO de l'Institut Fresnel, la société CILAS, le Laser Research Center et le Physics Institute (Vilnius, Lituanie), et le Laser Zentrum Hannover (Allemagne). Il a ainsi été possible de réunir une large gamme de matériaux, déposés suivant différentes techniques, différentes épaisseurs... en bénéficiant d'installations de pointe.

### 2.4.1 Influence de l'épaisseur

Comme nous l'avons exposé ci-dessus, nos travaux ont principalement concerné des monocouches fabriquées spécifiquement pour nos études. Parmi les différentes propriétés de ces couches, l'épaisseur déposée a été une des premières propriétés dont nous avons testé l'influence sur la tenue au flux laser. Dans notre démarche l'objectif était notamment de savoir à quel point les résultats obtenus sur des échantillons d'épaisseurs différentes étaient comparables. Les études menées en collaboration avec l'équipe RCMO ont permis de mettre en évidence que tant sur le plan des caractéristiques tels que l'indice et la largeur de bande interdite que sur le plan des seuils d'endommagement les résultats

pouvaient être parfaitement comparés. La prise en compte de la valeur du champ dans la couche permet de recalibrer parfaitement les résultats des tests de tenue au flux en utilisant la notion de 'seuil interne', c'est à dire la valeur du seuil pondérée du rapport des modules au carré des champs dans la couche et incident (figure 2.5).

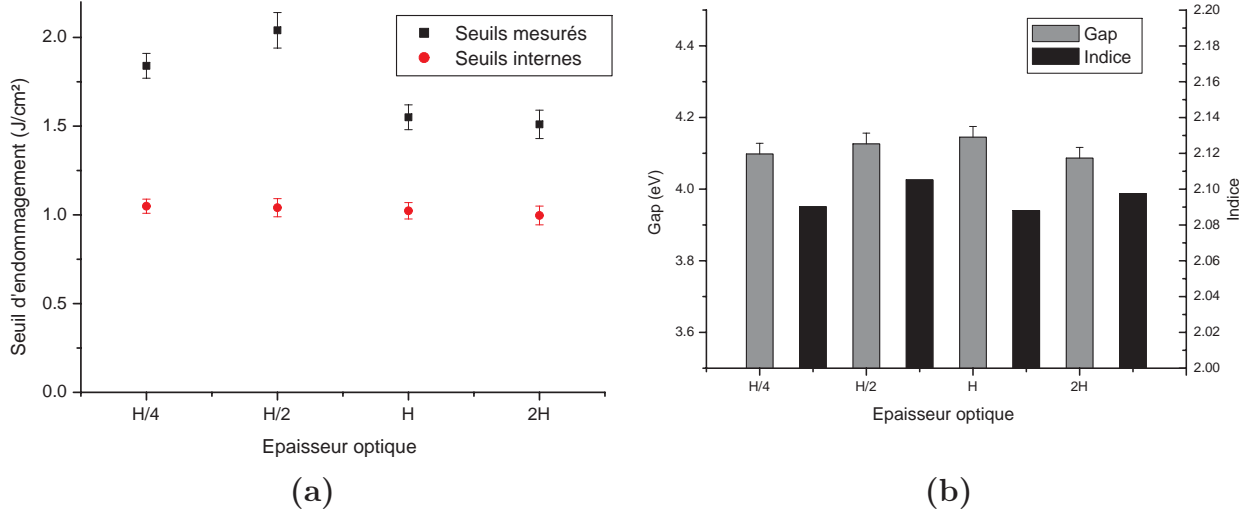


FIG. 2.5 – (a) Seuils d'endommagement sur des couches de Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> de différentes épaisseurs mesurés à 500fs, 1030nm, en mode 1on1. Les valeurs reportées sont les seuils mesurés directement et les seuils 'interne', c'est à dire prenant en compte la répartition du champ électrique. (b) Indices de réfraction et valeurs de bande interdite dérivés de mesures de spectrophotométrie par le modèle de tauc-Lorentz [110].

Dans la suite de ce document, c'est donc le seuil interne qui sera donné par défaut sauf mention contraire, puisque c'est le critère de comparaison pertinent des monocouches étudiées.

## 2.4.2 Influence de la largeur de bande interdite du matériau

En régime sub-picoseconde ce sont les propriétés électroniques des matériaux qui sont déterminantes dans le processus d'endommagement laser, particulièrement la structure de bande. La largeur de bande interdite est théoriquement directement liée au seuil d'endommagement. Dans le cas des couches minces d'oxyde, une dépendance linéaire du seuil avec la largeur de bande interdite a été démontrée [90]. C'est donc un paramètre déterminant pour l'interprétation des résultats. La mesure de cette largeur de bande interdite peut

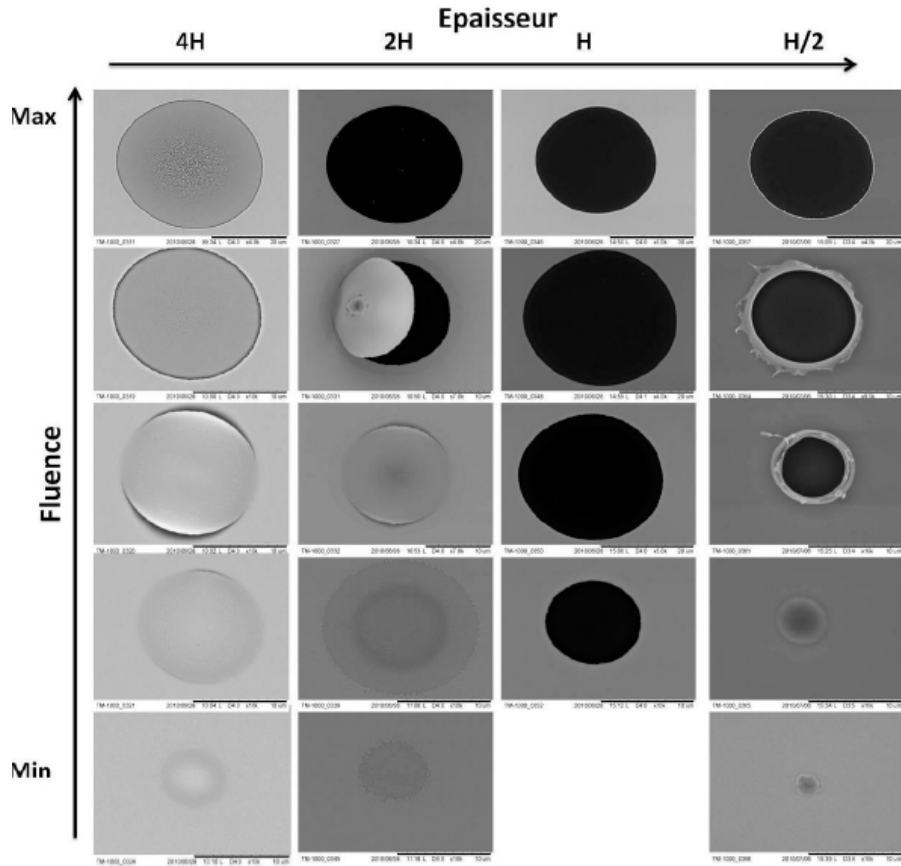


FIG. 2.6 – Images MEB de sites endommagés (10n1) sur des couches de  $Ta_2O_5$  en fonction de l'épaisseur pour des fluences laser croissantes. Chaque image correspond à une fluence spécifique.

s'avérer cependant délicate, puisque le cas des couches minces optiques est très différent des cristaux idéaux. Elle peut être affectée par différents types de niveaux électroniques liés à des imperfections du matériau, résultant du procédé de fabrication voire créés lors de l'interaction du laser avec le matériau. De plus les propriétés des couches diffèrent fortement de celles des matériaux massifs, et dépendent de la technique et des paramètres utilisés pour le dépôt. Pour la détermination des valeurs de bande interdite nous avons travaillé avec l'équipe RCMO qui dispose d'outils de caractérisation spectrophotométriques (spectromètre UV/Visible/infrarouge) et de modèles adaptés à la détermination des valeurs de gap. Ces outils se sont avérés plus efficaces et précis que les méthodes semi-empiriques que nous avons aussi testées, et dont l'étude



comparative est décrite dans la thèse de B. Mangote et la référence [86]. On pourra trouver la description du modèle de Tauc-Lorentz que nous avons particulièrement utilisé dans la référence [110].

Disposant ainsi d'outils puissants pour la mesure précise des seuils d'endommagement, la détermination des gap, la fabrication de couches dans des conditions parfaitement contrôlées, tous les éléments étaient réunis pour étudier l'évolution du seuil d'endommagement avec le gap. Nous reportons par exemple dans la figure 2.7 les différents seuils et gaps ayant pu être mesurés lors de nos études.

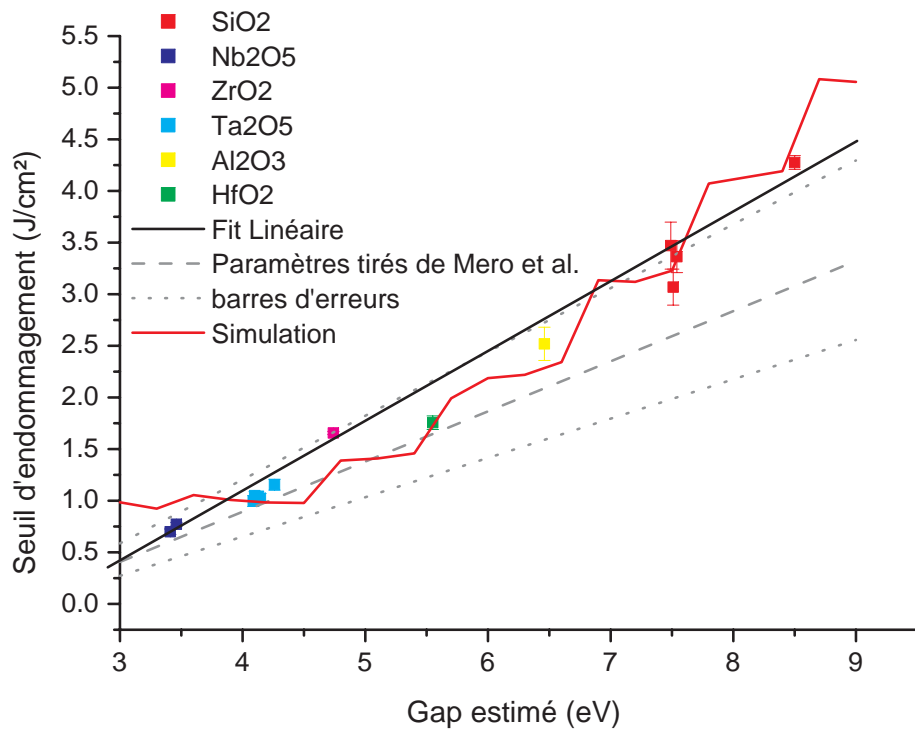


FIG. 2.7 – Seuils d'endommagement de couches d'oxyde mesurés à 1030nm, 500fs, en impulsions uniques, en fonction du gap estimé par ajustement des données spectrophotométrique avec le modèle de Tauc-Lorentz [110]. Un ajustement linéaire de ces données est également représenté, de même que des données issues de la littérature (800nm) avec leur barre d'erreur. Le résultat des simulations que nous avons menées est également donné.

Nos études ont mis en évidence une dépendance du seuil approximativement linéaire avec le gap, comme cela avait été observé à 800nm par Mero et al. [90]. Par comparaison avec cette précédente référence nos travaux ont per-

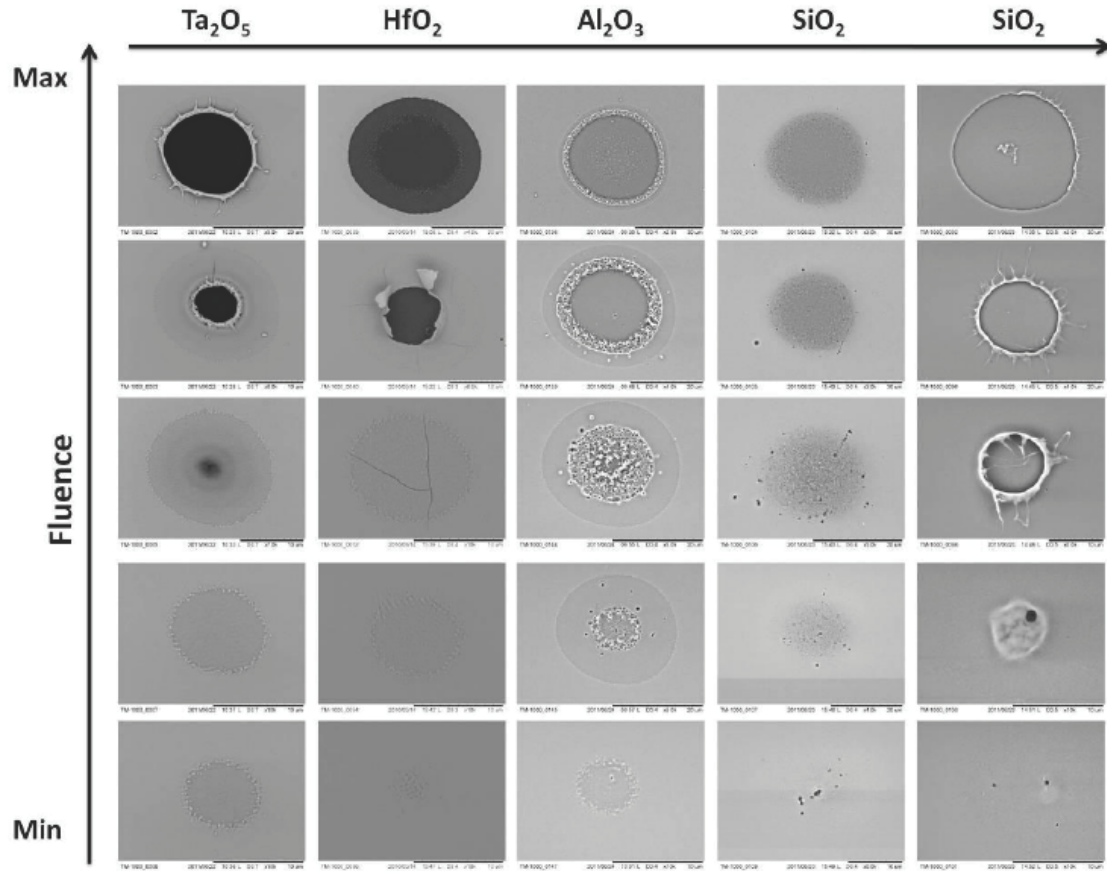


FIG. 2.8 – Images MEB de dommages obtenus sur les monocouches d'épaisseur 2H produites par Ion Beam Sputtering.

mis de montrer que des matériaux à faible gap ( $ZrO_2$ ,  $NbO_5$ ) et des couches déposées par différentes techniques se comportaient de façon similaire à ce qui avait déjà été relevé. Nos travaux ont permis de reporter les premières valeurs à 1030nm, et d'interpréter de façon satisfaisante ces résultats à l'aide du modèle simple précédemment décrit (voir figure 2.7). Ces résultats ont été soumis à publication à l'heure où nous écrivons ces lignes.

### 2.4.3 Influence de la durée de l'impulsion

L'objectif du modèle que nous avons décrit précédemment était de disposer d'un outil de simulation à la fois simple, permettant d'interpréter les résultats obtenus, et d'effectuer des projections sur la dépendance de la tenue au flux

de systèmes multicouches avec certains paramètres opérationnels (durée de l'impulsion, type de matériau, structure de l'empilement,...). Au lancement de nos travaux sur cette thématique nous avons donc cherché à pouvoir effectuer des études paramétriques pour tester la validité et l'applicabilité des modèles aux couches minces optiques. Un moyen efficace pour la comparaison des mesures à la théorie, et couramment utilisé dans des études similaires, est de faire varier la durée d'impulsion [111, 83, 82, 81, 112, 113, 90]. Les sources lasers disponibles dans l'équipe ne permettant de couvrir qu'une gamme restreinte de durées d'impulsions (500fs-3ps et la gamme nanoseconde), nous avons choisi de nous rapprocher d'un partenaire disposant de sources complémentaires et dans le même domaine de longueur d'ondes (1030-1064nm). C'est à cette occasion qu'une collaboration a été engagée avec le Laser Research Center de l'Université de Vilnius (Lituanie), laboratoire disposant de lasers femto/picosecondes (de 30 fs à 30ps) et de moyens de caractérisation complémentaires aux nôtres. Des financements de l'EGIDE, de Laserlab-Europe, et de l'ambassade de France ont permis de mettre en place et de maintenir cette collaboration pendant les années 2009 et 2010. Au cours de ce projet 4 personnes de l'équipe ont participé aux expériences au VULRC sur une durée cumulée de 11 semaines. Après un travail important sur la métrologie de l'endommagement qui a été mutuellement bénéfique aux deux équipes et grâce auquel l'intercomparaison des résultats a été possible, une campagne de mesures a été lancée. 5 bancs de mesures ont été mis en jeu et une vingtaine d'échantillons ont été utilisés pour étudier la tenue au flux de couches d'HfO<sub>2</sub> de différentes épaisseurs et technologies de dépôt en fonction de la durée d'impulsion. Le détail de cette campagne de mesure et ses principaux résultats sont présentés dans la référence [17]. Nous avons alors pu mettre en évidence la pertinence du modèle présenté dans la partie précédente pour décrire la dépendance du seuil d'endommagement avec la durée de l'impulsion, dans une gamme allant de quelques dizaines de femtosecondes à quelques picosecondes (figure 2.14).

#### 2.4.4 Influence des paramètres de dépôt

Lors de nos travaux nous avons eu l'occasion d'étudier différents types de matériaux classiquement utilisés dans le domaine : Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, SiO<sub>2</sub>, HfO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>,

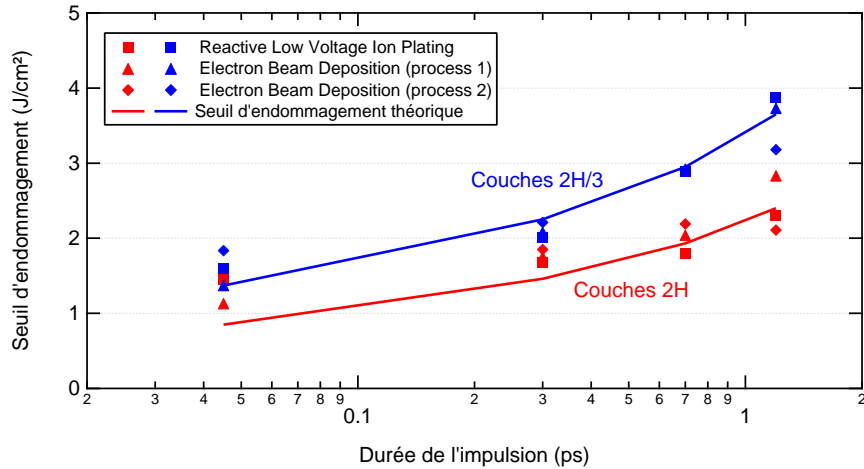


FIG. 2.9 – Comparaison théorie/expérience de seuils d'endommagement en fonction de la durée de l'impulsion, sur des couches d' $\text{HfO}_2$  de différentes épaisseurs. Mesures effectuées à  $1030\text{nm}$  ou  $1064\text{nm}$ , en mode  $1\text{on}1$ .

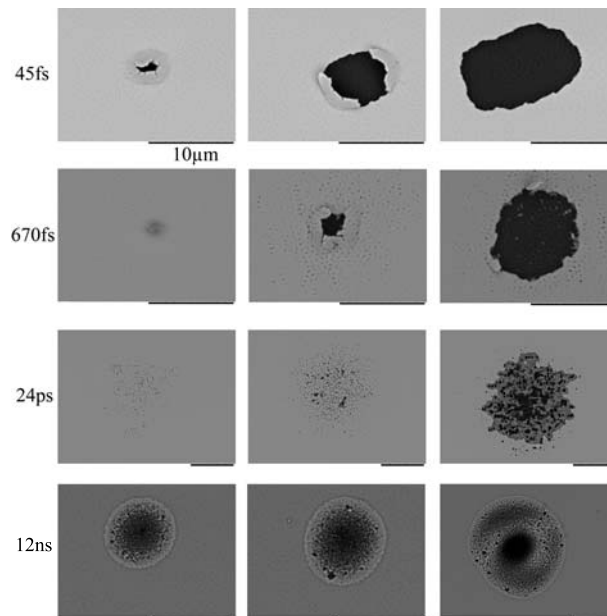


FIG. 2.10 – Observation par microscopie à balayage électronique de dommages laser sur une couche de  $\text{HfO}_2$  irradiée à  $1030$  ou  $1064\text{nm}$  avec différentes durées d'impulsions (tirs uniques). La fluence est croissante de la gauche vers la droite.

$\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{ZrO}_5$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Une attention toute particulière a été notamment portée à  $\text{HfO}_2$  [17]. Ce matériau est en effet un des plus intéressants pour les applications à haute tenue au flux dans le régime nanoseconde, de l'UV à l'IR [114, 115, 108, 116, 117, 118]. De part sa largeur de bande interdite élevée comparée à d'autres matériaux haut indice c'est également un matériau de choix pour les applications femtoseconde [90, 119]. En régime nanoseconde si l'endommagement est très lié aux conditions de dépôt et aux défauts comme cela a été discuté au chapitre précédent, en régime femtoseconde l'endommagement est de nature intrinsèque au matériau comme cela a été décrit plus haut. Les propriétés du matériau étant dépendantes des paramètres de dépôt (largeur de bande interdite, niveaux électroniques dans la bande interdite, stoechiométrie, cristallinité,...) il nous a semblé intéressant d'étudier comment variait la tenue au flux du matériau dans le cas de différents procédés de dépôt et comment évoluait ce comportement avec la durée de l'impulsion : passage du comportement intrinsèque (courtes impulsions) au comportement lié aux défauts (longues impulsions). Ceci a été effectué dans le cadre de notre collaboration avec l'Université de Vilnius [17]. Si les valeurs de seuil se sont avérées très proches, indiquant que le mécanisme d'initiation est principalement lié à la structure de bande du matériau, les morphologies d'endommagement ont révélé des différences marquées. Ceci peut être attribué aux propriétés mécaniques (adhérence, densité, contraintes par exemple) et thermiques (conductivité, température de fusion et d'évaporation) qui peuvent s'avérer très différentes du matériau massif dans les couches minces. Nous avons également pu montrer au cours de ces travaux qu'il n'existait pas de corrélation entre la tenue au flux en régime femto et nanoseconde (sauf à considérer le cas d'une couche de très mauvaise qualité, c'est à dire absorbante) : une couche ayant de mauvaises performances dans le régime nanoseconde peut être très résistante dans le régime femtoseconde. Nous avons pu également mettre en évidence une transition entre les régimes courts et longs situées dans le domaine des dizaines de picosecondes (figure 2.11).

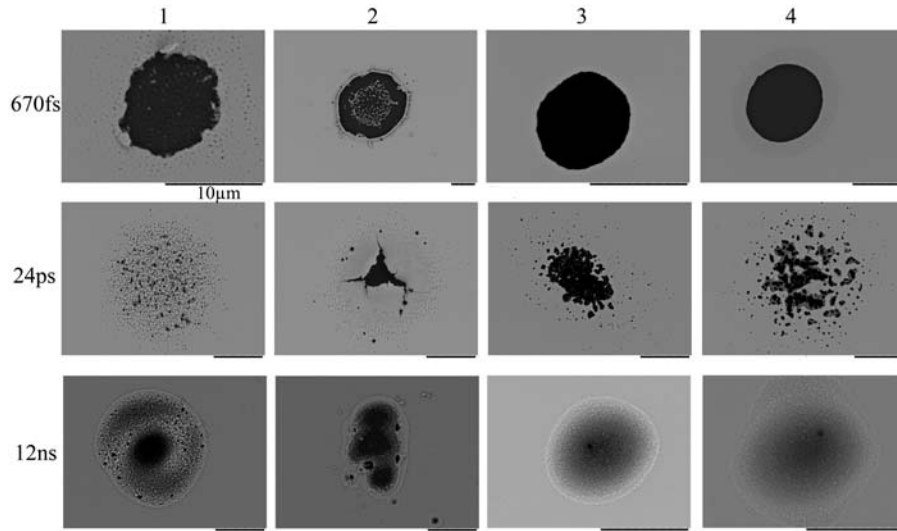


FIG. 2.11 – Observation par microscopie électronique à balayage de dommages laser sur des couches de  $\text{HfO}_2$  déposées dans différentes conditions (voir [17]) et irradiées à 1030 ou 1064nm avec différentes durées d'impulsions (tirs uniques).

## 2.5 Etude des mixtures d'oxydes

Les matériaux couches minces de type "mixtures" sont des mélanges de plusieurs matériaux co-déposés simultanément. La possibilité de mélanger des matériaux est intéressante puisqu'elle permet théoriquement d'ajuster à volonté l'indice de réfraction de la mixture dans la gamme comprise entre les indices des matériaux originaux. Ceci ouvre de nombreuses perspectives dans la conception des systèmes multicouches avec également la réalisation de structures à gradient d'indice plutôt qu'à saut d'indice. Des technologies de dépôt à haute énergie (par pulvérisation) sont maintenant disponibles pour réaliser de tels matériaux et permettent le dépôt de mixtures à faibles pertes, faibles contraintes et haute tenue au flux [120, 121, 122, 123, 124]. Les propriétés de ces matériaux sont cependant peu connues, et nous avons engagé des collaborations avec nos partenaires Litvaniens (VULRC et Physics Institute) et Allemands (LZH) sur différents composés :  $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ ,  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ . Nous avons consacré une part de nos activités de recherche à l'analyse de ces matériaux : indices de réfraction et coefficients d'extinction,

mesures de bandes interdites, mesures de rugosité, propriétés structurales, mesures de diffusion et tenue au flux en régime femtoseconde (description en référence [18]). Les résultats de tenue au flux en fonction de la largeur de bande interdite font apparaître une nette différence entre les mixtures et les matériaux "purs" : les lois d'échelle de seuil d'endommagement en fonction de la largeur de bande interdite mises en évidence dans les oxydes, ne permettent pas de décrire le comportement des mixtures étudiées (figure 2.12) dans le cas où les gaps entre les composés sont très différents. Le modèle théorique développé précédemment ne permet pas d'expliquer ces résultats en conservant des paramètres indépendants du matériau. Ces premiers résultats indiquent que des investigations plus poussées, notamment de la structure de bande de ces matériaux sont nécessaires pour comprendre et décrire ces phénomènes. C'est ce qui fait l'objet de notre attention en ce moment.

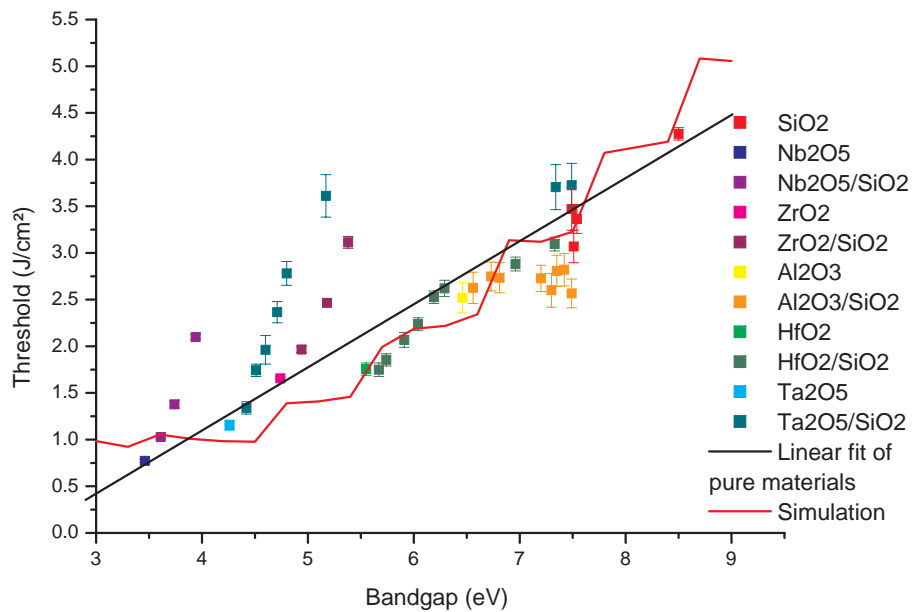


FIG. 2.12 – Comparaison des résultats expérimentaux obtenus sur les mixtures et comparaison au modèle théorique et à l'ajustement linéaire obtenu sur les oxydes 'purs'.

D'autres résultats particulièrement importants du point de vue pratique sur les mixtures ont été obtenus, notamment la variation du seuil d'endommagement avec l'indice de réfraction qui présente un intérêt pour la synthèse

d'empilements multicouches destinés aux applications de haute puissance laser (figure 2.13).

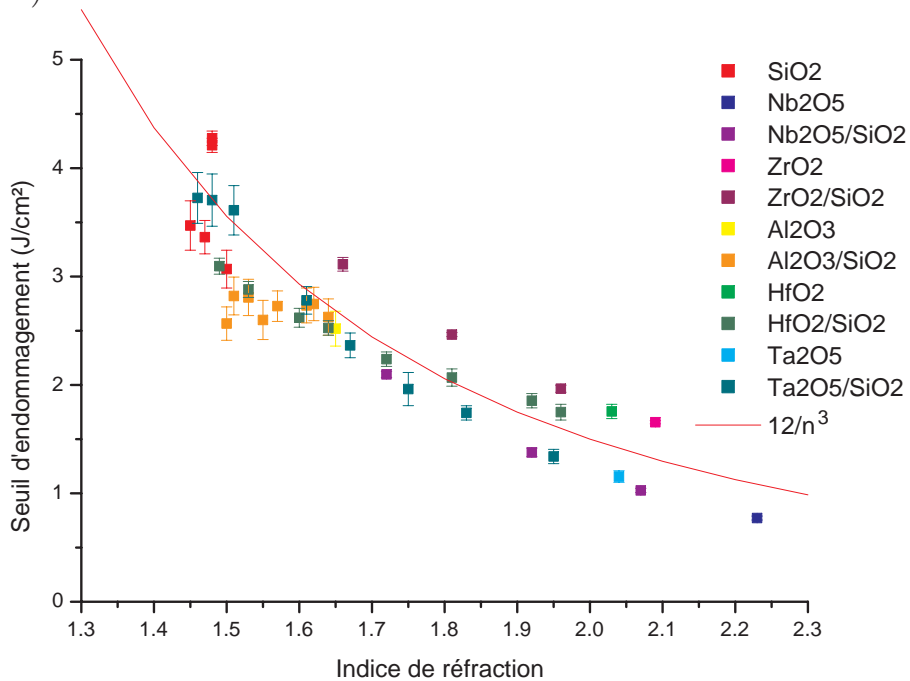


FIG. 2.13 – Seuil d'endommagement en fonction de l'indice de réfraction à 1030nm pour une cinquantaine d'échantillons différents. Une loi empirique dérivant de ces résultats est également reportée.

## 2.6 Conclusions, perspectives

La thématique dont nous avons traité dans ce chapitre était entièrement nouvelle dans l'équipe en 2008 lorsque nous avons commencé à y travailler tant du point de vue expérimental que théorique. Les travaux qui ont été menés suivant la démarche présentée plus haut nous permettent aujourd'hui de nous situer au meilleur plan international sur ce sujet, en témoignent les nombreuses publications et les collaborations fructueuses qui ont pu être initiées au cours de ces quelques années. C'est sans aucun doute un sujet sur lequel nous allons continuer de faire porter nos efforts, puisque suite à ces travaux plusieurs perspectives sont ouvertes comme nous le détaillerons dans notre projet de recherche.



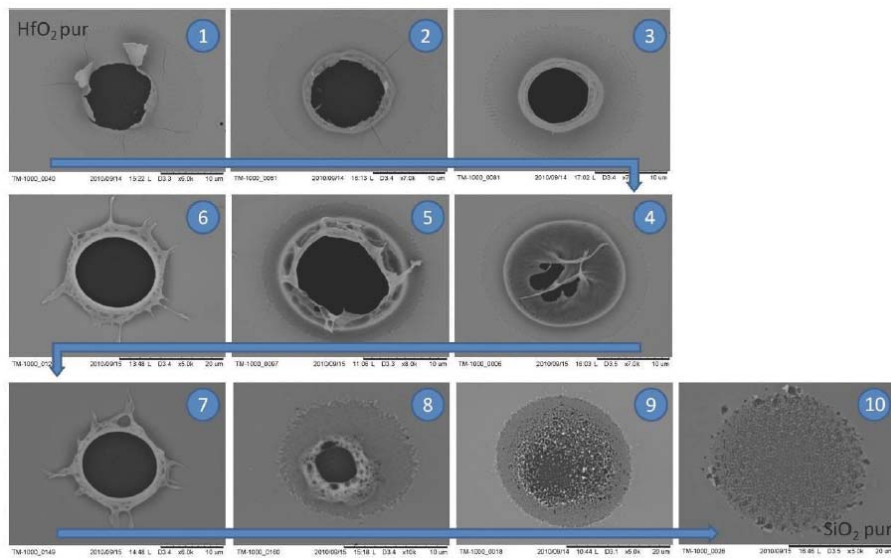


FIG. 2.14 – Images MEB de dommages sur mixtures  $HfO_2/SiO_2$  pour de fortes fluences. La fraction volumique de  $SiO_2$  pur augmentant pour les images de 1 à 10 (1= $HfO_2$  pur et 10= $SiO_2$  pur). On observe une évolution progressive de la morphologie lorsque la fraction volumique de  $SiO_2$  par rapport à  $HfO_2$  augmente.

# Chapitre 3

## Développement de procédés pour l'amélioration de la tenue au flux laser des optiques

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>79</b>
<b>4.2</b>	<b>Endommagement laser des couches minces optiques</b>	<b>79</b>
4.2.1	Régime sub-picoseconde	79
4.2.2	Matériaux pour les couches minces optiques	80
<b>4.3</b>	<b>Composants multicouches pour lasers de puissance</b>	<b>81</b>
<b>4.4</b>	<b>Applications des modifications induites par laser femtoseconde dans les couches minces</b>	<b>81</b>
4.4.1	Structuration des couches minces optiques	81
4.4.2	Projet FLEXMEM	82
<b>4.5</b>	<b>Ouverture vers de nouvelles thématiques</b>	<b>84</b>

---



### 3.1 Introduction, contexte des travaux

La silice fondue possède des propriétés intrinsèques qui en font un matériau privilégié pour la fabrication des composants optiques. Les verriers réussissent à produire de grandes quantités de silice sans aucun défaut dans la matière. Mais l'usinage de ce matériau crée en surface des fractures plus ou moins nombreuses et profondes suivant les techniques de fabrication [125, 126]. Certains de ces défauts peuvent être à l'origine d'initiation d'endommagement sur la surface de la silice [127, 128, 129, 130]. Or de tels défauts, même en très faible densité, peuvent être rédhibitoires pour certaines applications. Le problème majeur lié à l'initiation d'un endommagement sur une optique est celui de sa croissance lors de tirs successifs. En effet une zone endommagée présente de nombreux défauts électroniques, de contamination, morphologiques, [131, 132]... qui vont conduire à une absorption de l'énergie laser et à un agrandissement de la zone endommagée sous tirs successifs [133, 129] rendant rapidement inutilisable le composant. Un seul défaut peut donc être limitant pour certaines applications. L'amélioration des procédés de fabrication ne permet pas toujours d'éliminer complètement ces défauts et il n'existe pas à ce jour de techniques non-destructives permettant de les détecter. C'est pourquoi, dans le cadre du développement d'optiques de grandes dimensions pour les lasers destinés à la fusion, un nouveau sujet d'investigation sur la 'stabilisation de dommages' est apparu. Le principe consiste à effectuer un traitement curatif sur les zones endommagées pour empêcher la croissance lors de tirs ultérieurs. Pour effectuer ce traitement, plusieurs méthodes ont été envisagées au début des années 2000 : traitement chimique (acidage), plasma etching, micro-flamme, usinage local et irradiation laser [134]. Parmi ces méthodes, celle consistant à irradier la silice avec un laser CO<sub>2</sub> pour refondre et évaporer localement le matériau est apparue comme la plus prometteuse par les études exploratoires menées par le LLNL [135] sur ce sujet. Notons que dès la fin des années 70 il avait été envisagé par Temple et al. que des post-traitements par laser CO<sub>2</sub> pouvait conduire à une amélioration de la tenue au flux des verres [136], principalement par refusion des fractures liées au polissage. L'irradiation de verres de silice par laser CO<sub>2</sub> a cependant de nombreux effets négatifs (débris [137, 138, 139], contraintes [140, 141, 142], modification du profil de surface entraînant des modulations du front d'onde [143]) qu'il

est nécessaire de comprendre pour aboutir à un procédé de stabilisation efficace. La figure 3.1 illustre l'effet de ce traitement par laser  $\text{CO}_2$  sur un dommage typique sur la face arrière d'un verre de silice (créé par un laser 355nm/3ns) [144].

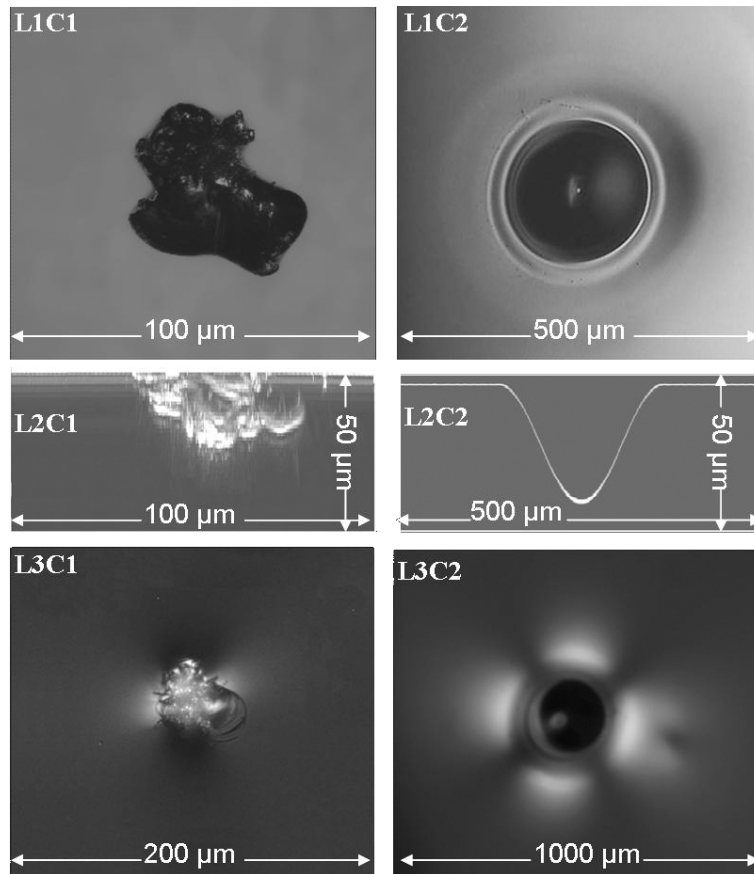


FIG. 3.1 – Observation d'un dommage sur une surface de silice avant (colonne de gauche) et après traitement par laser  $\text{CO}_2$  (colonne de droite). Ligne 1 : observation de dessus par microscopie Nomarski; Ligne 2 : observation sous-surfacique par microscopie confocale; Ligne 3 : observation en transmission entre polariseurs croisés mettant en évidence les zones de contraintes.

Dans ce contexte une collaboration entre l'Institut Fresnel et le CEA/CESTA a été engagée sur cette thématique. En effet la mise au point de ces procédés de stabilisation n'est pas triviale et nécessite des études tant sur le plan expérimental que théorique. Les différentes publications sur ce sujet témoignent de cette activité de recherche : mise au point de modèles prenant en compte les échauffements, contraintes et évaporation de matière générés par l'irradia-

tion CO<sub>2</sub>, confrontation de ces modèles à l'expérience, étude des modifications du matériau induites par le laser CO<sub>2</sub>, mise au point de protocoles de dépôt d'énergie pour améliorer l'efficacité du procédé, développement d'outils de caractérisation non destructifs pour la caractérisation de dommages et des fractures sous-surfaciques, et plus récemment études des effets de modulation du front d'onde induits par les cratères CO<sub>2</sub> [140, 50, 145, 137, 146, 131, 147, 148, 149, 143, 150, 151, 152, 153].

Les activités sur ce sujet ont débuté dans l'équipe en 2005. Durant cette année j'ai été placé en délégation pendant 3 mois au CEA pour effectuer une expertise scientifique au Lawrence Livermore National Laboratory visant à évaluer les potentialités de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de dommages de grandes dimensions. Ce laboratoire, dans le cadre du développement du National Ignition Facility, a été en effet le premier à mettre en place les techniques de stabilisation par laser. Suite à ces études effectuées au LLNL [154], une collaboration scientifique à long terme a suivi avec nos collègues du CEA : contrats de recherche en 2006-2007 [155] 2007-2008 [156], 2008-2009 [157], 2009-2010 [158] et 2010-2011. Dans la suite j'exposerai donc les différentes étapes et résultats de ce volet de mon travail de recherche qui a été mené en étroite collaboration avec le CEA et auquel une post-doctorante dans l'équipe (S. Palmier), et plusieurs stagiaires (V. Brandli, M. Jahjah, G. Mahé) ont également participé.

## 3.2 Analyse des modifications du matériau liées à l'endommagement laser sur la silice

Les processus d'endommagement laser en régime nanoseconde sont associés à de forts échauffements, à la formation de plasma conduisant à la fusion, la vaporisation et à des contraintes aboutissant à la fracturation du matériau. Ces conditions extrêmes vont conduire à des modifications sur le plan macroscopique et microscopique. Ainsi un dommage laser créé par un laser nanoseconde sur une surface de silice se présente sur le plan morphologique sous la forme d'un cratère très rugueux, accompagné de contraintes résiduelles et de fractures se propageant sous la surface (figure 3.3).

Du fait des fortes pressions, irradiations émises par le plasma et les températures subies par le matériau durant la formation du dommage, des dé-

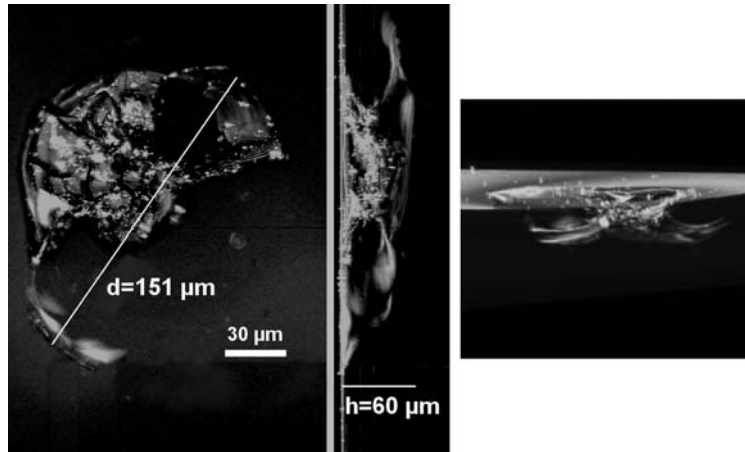


FIG. 3.2 – Observation par microscopie confocale d'un dommage créé par un laser nanoseconde sur la face arrière d'un verre de silice [148].

fauts (rupture de liaisons, déficience en oxygène, oxygène interstitiel, liaisons pendantes) et des densifications sont également constatées [159, 160, 161, 132] grâce à des méthodes d'analyse de type spectroscopie de luminescence, diffusion Raman, et cathodoluminescence. Ces modifications vont engendrer une fragilisation de la zone endommagée vis-à-vis d'irradiations laser ultérieures et entraîner un phénomène de croissance du dommage sous flux laser. La croissance des dommages a fait l'objet de plusieurs études qui ont montré l'implication de l'absorption générée par les défauts présents dans la zone endommagée et les effets de sur-intensification locale du champ engendré par les fractures [133, 162, 130]. Ainsi pour envisager de stabiliser efficacement un dommage laser il est particulièrement important de quantifier et de localiser les modifications qu'a subies le matériau. Dans cette optique nous avons dans un premier temps mené des analyses par des méthodes de spectroscopie de luminescence sur le banc décrit dans la partie 1.2.2. Ces études effectuées en 2006, publiées dans la référence [37] ont permis de mettre en évidence des défauts de type 'ODC' (Oxygen Deficiency Center) et 'NBOHC' (Non Bridging Oxygen Hole Center) dont la présence s'étend loin de la zone endommagée (exemple figure 3.3).

Plus récemment grâce à l'acquisition d'un microscope confocal dans l'équipe nous avons poursuivi ces études sur la luminescence. Les résultats obtenus (voir figure 3.4) ont permis de clairement mettre en évidence un niveau élevé

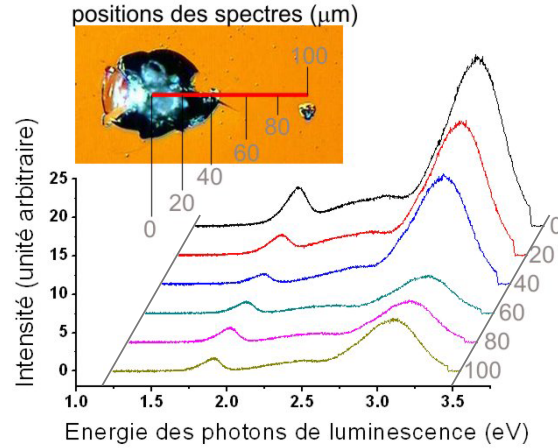


FIG. 3.3 – Spectres de luminescence enregistrés en différentes zones dans et autour d'un dommage laser. Les zones analysées sont identifiées dans l'image de microscopie du dommage. L'analyse des pics d'émission correspondants peut être trouvée dans la référence [37].

de luminescence dans les fractures sous surfaciques qui s'étendent loin de la zone endommagée visible en microscopie classique. Des travaux récents ont montré que les fractures à la surface de la silice créaient des défauts absorbants dans le gap et étaient la source principale des dommages à 355nm en régime nanoseconde [130] suivant une phénoménologie dont on pourra trouver une description complète dans la référence [129].

### 3.3 Etude thermomécanique de l'interaction laser CO<sub>2</sub>/silice

Lors de premières études empiriques sur la stabilisation, il est rapidement apparu que les paramètres d'irradiation (durée d'exposition, puissance, taille du faisceau) étaient très critiques au niveau de la tenue au flux laser. L'apparition de débris ou la création de fortes contraintes peuvent en effet fortement limiter la tenue au flux laser des sites stabilisés. Nous nous sommes alors intéressés dans le cadre de notre travail sur la stabilisation des dommages laser, à la modélisation et à la compréhension de l'interaction laser CO<sub>2</sub>/silice. L'objectif étant de disposer d'outils théoriques permettant de quantifier les gradients de température et de contraintes générés par l'irradiation pour orienter les expériences de stabilisation et comprendre les problèmes de fragilisation



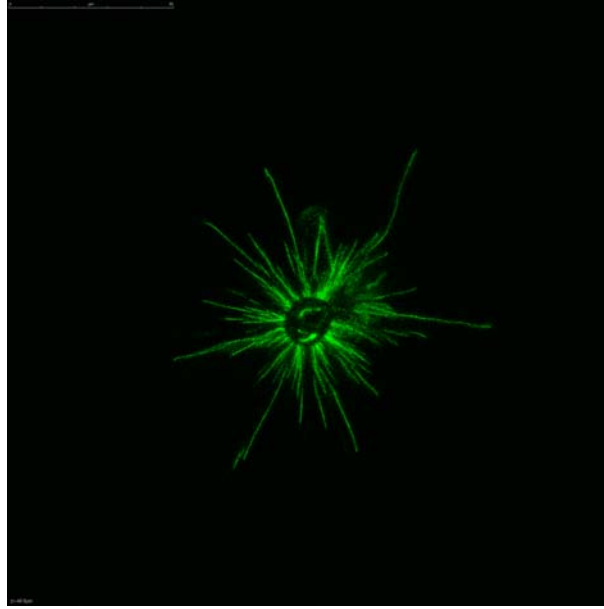


FIG. 3.4 – Observation d'un dommage sur la face arrière d'un verre de silice par microscopie confocale de fluorescence (excitation à 488nm)

du matériau. Les premiers travaux de Feit et al. [140, 141], reposant sur des analyses semi-analytiques ont en effet montré l'intérêt de ce type d'approche. Nous nous sommes basés sur ces travaux pour initier notre étude. L'approche que nous avons ensuite choisie pour traiter ce problème a consisté à utiliser des outils de modélisation multiphysique aux éléments finis (COMSOL). Lors de calculs en régime transitoire, ces outils puissants permettent en effet de prendre en compte l'évolution au cours du temps des propriétés du matériau (absorption, paramètres optiques et thermiques,...) et de coupler thermique et mécanique. Une limitation cependant des modèles utilisés est l'absence de traitement des effets hydrodynamiques.

L'approche que nous avons développée est décrite dans la référence [142], nous la reprenons très brièvement ici. Un faisceau Gaussien irradiant la surface d'un verre de silice de dimensions finies est considéré. Etant donnée la symétrie du problème, une géométrie 2D axi-symétrique est utilisée. La source de chaleur générée est calculée en prenant en compte la puissance incidente, la taille du faisceau, la réflexion de Fresnel à la surface et le coefficient d'absorption de la silice. La dépendance des différents paramètres avec la température est considérée en se basant sur les données des fournisseurs (Heraeus, Corning)

et les travaux de McLachlan et Meyer [163]. La distribution de température est alors calculée en régime transitoire. Un exemple de résultat est donné sur la figure 3.5.

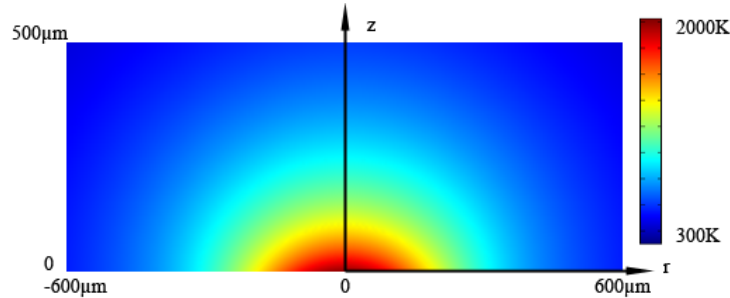


FIG. 3.5 – Distribution de température à la fin d'une irradiation de 250ms d'un verre de silice par un laser CO<sub>2</sub> (10,6μm) de diamètre 460μm à  $1/e^2$

L'irradiation laser entraîne de très forts échauffements pouvant dépasser 2000°C. Après irradiation le matériau se refroidit très rapidement et sa viscosité augmente alors fortement [164]. Les contraintes générées par l'expansion thermique ne pouvant pas se relâcher vont être "imprimées" dans le matériau. Ces contraintes peuvent être calculées dans notre modèle à la fin de l'irradiation laser comme nous le présentons dans la figure 3.6 pour un cas particulier.

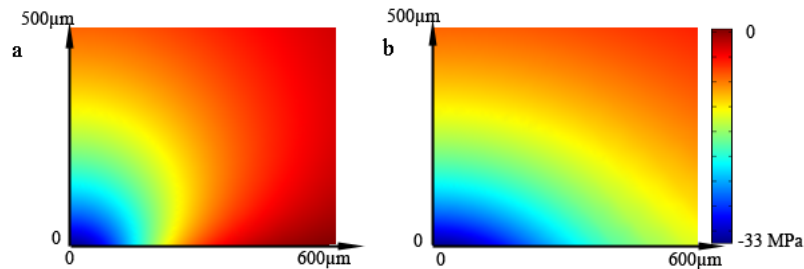


FIG. 3.6 – Contraintes radiales (a) et tangentielles (b) calculées dans le cas correspondant à la figure précédente

Afin de visualiser et de quantifier expérimentalement le niveau de contraintes créées autour des sites stabilisés, des expériences de photo-élasticité ont été conduites. Nous avons ainsi mis au point d'une part un banc permettant de

visualiser les zones de contraintes autour des dommages laser, basé sur le principe de la photoélasticimétrie [165]. Ce banc, schématisé sur la figure 3.7 permet de visualiser les zones de contraintes autour de dommages laser dans des matériaux transparents.

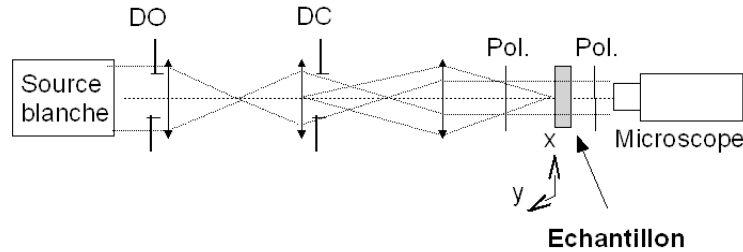


FIG. 3.7 – Dispositif permettant d'imager avec un microscope un échantillon de silice entre polariseurs croisés

D'autre part, pour compléter le précédent système qui permet d'évaluer de façon qualitative la direction, l'extension et le niveau de la zone de contraintes nous avons également travaillé (stage de Master de G. Mahé) sur la mise en place d'un moyen de mesure quantitative et résolue spatialement de la biréfringence. La mesure est effectuée grâce à un compensateur de Soleil-Babinet et une résolution spatiale de l'ordre de  $10\mu\text{m}$  est obtenue en focalisant le faisceau à travers divers objectifs (figure 3.8).

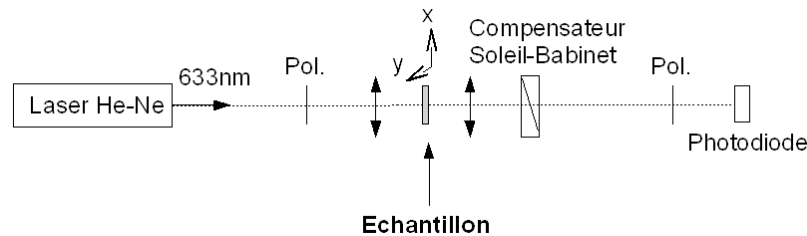


FIG. 3.8 – Dispositif permettant la mesure locale de biréfringence sur un échantillon de silice

Pour comparer le résultat de ces expériences aux simulations nous avons été amenés à calculer la biréfringence induite par les contraintes thermiques en nous basant sur le formalisme décrit par Huard [165]. Il est alors possible de calculer le déphasage induit entre 2 états de polarisation à la traversée de

l'échantillon modélisé.

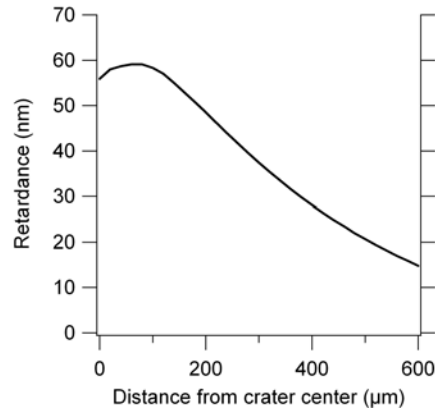


FIG. 3.9 – *Différence de marche entre 2 états de polarisation linéaires à la traversée de l'échantillon correspondant aux calculs présentés précédemment.*

La dernière possibilité offerte par notre modèle concerne le calcul du profil de cratère. En prenant en compte l'évolution de la vitesse d'évaporation de la silice avec la température il est possible en chaque point de la surface de calculer la quantité de matière évaporée et de remonter ainsi à un profil de cratère théorique. Le résultat d'un tel calcul, placé en regard d'une mesure, est donné sur la figure 3.10.

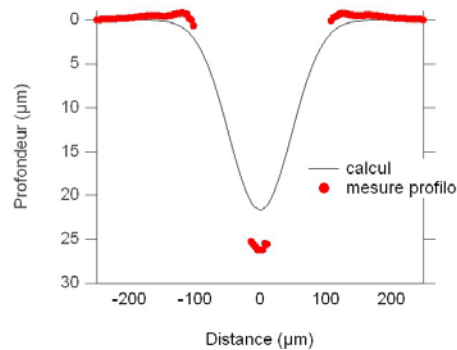


FIG. 3.10 – *Profil de cratère théorique et expérimental dans le cas correspondant aux figures précédentes.*

Ce dernier point est apparu très prometteur au premier abord comme le montre la figure 3.10 cependant il ne s'avère donner des résultats corrects

que pour une plage limitée de durées d'irradiation (autour de la centaine de millisecondes) et ne fonctionne pas pour des durées de l'ordre de la seconde ou de quelques millisecondes. Précisons que les paramètres nécessaires utilisés pour mettre en place ce calcul sont très mal connus, notamment aux températures où la matière est éjectée. Des expériences ont donc été menées pour améliorer cette compréhension et comparer les résultats expérimentaux aux simulations. Des mesures thermographiques spatiales et temporelles in situ ont été réalisées à l'aide d'une caméra infrarouge. Des mesures à haute température (jusqu'à 2500K) ont pu être effectuées avec une résolution de 70 microns par pixel et les zones irradiées ont de plus été caractérisées par profilométrie optique et microscopie. Ces données expérimentales se sont révélées être en très bon accord avec les simulations. Les résultats obtenus ont de plus permis de mettre en évidence les différentes phases d'éjection du matériau débutant à 1800K, bien en dessous du point d'ébullition de la silice. Cette évaporation a pu être décrite avec succès par une approche thermodynamique décrite en référence [166].

### 3.4 Mise au point d'une méthode de stabilisation d'optiques endommagées par laser

Nous avons mis en place au laboratoire en 2006 un banc de stabilisation pour répondre aux besoins liés aux études décrites dans ce chapitre. Ce dispositif représenté sur la figure 3.11 et dont la description détaillée pourra être trouvée dans la référence [138] permet d'aller repérer et localiser des dommages sur une optique, puis d'effectuer un traitement thermique sur ces dommages avec l'aide d'un laser CO<sub>2</sub>.

A l'aide de ce système, l'objectif de nos études a été dans un premier temps de pouvoir enlever de la surface de la silice toute trace des dommages créés par des irradiations laser uniques en régime nanoseconde. Des études statistiques effectuées sur ce type de dommages ont montré que les profondeurs des dommages (extension des fractures sous surfaciques) pouvaient atteindre 50 $\mu$ m [148]. Nous avons donc dans un premier temps mené des études paramétriques pour connaître l'influence des paramètres d'irradiation (durée, taille de faisceau, puissance) sur la morphologie des cratères créés et leur résistance

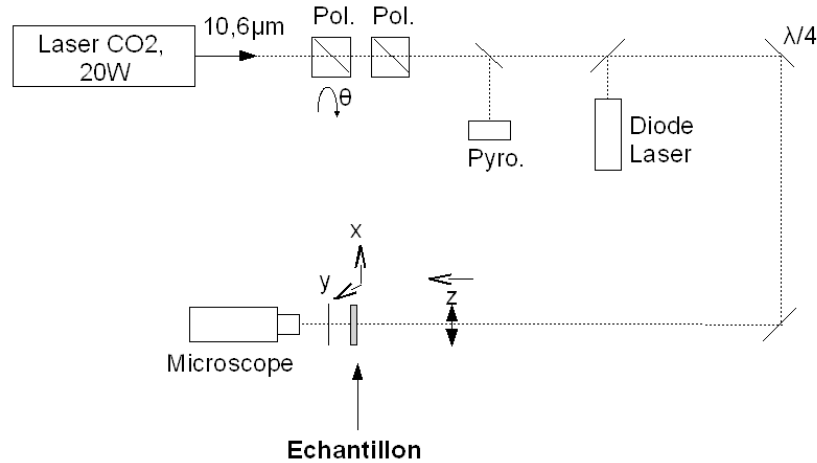


FIG. 3.11 –

au flux laser [138]. Ces premiers travaux ont permis de mettre en évidence rapidement que si toute trace visible (notamment les fractures sous-surfaciques) pouvait être éliminée alors la tenue au flux était limitée intrinséquement par le cratère lui même, indépendamment du dommage initial. Nous avons dans un deuxième temps recentré les études sur des échantillons de silice vierge pour comprendre les limitations, notamment les effets d'initiation observés autour des cratères. En effet si les paramètres sont choisis judicieusement pour éviter la production de débris absorbants (redépôt de  $\text{SiO}_x$ ), alors les cratères irradiés présentent systématiquement un point de faiblesse vis-à-vis de la tenue au flux sur une couronne périphérique (figure 3.12). L'emplacement de ce point de faiblesse dépend fortement des paramètres de création du cratère.

Différents moyens d'investigation ont ensuite été appliqués pour tenter d'identifier l'origine de cette faiblesse : microscopie fond noir pour mettre en évidence les débris, microscopie photothermique pour quantifier et localiser les zones d'absorption et enfin photoélastimétrie pour étudier les contraintes générées dans le matériau. A la suite de ces études nous avons pu mettre en évidence la corrélation entre l'apparition des dommages et la présence de contraintes résiduelles (exemple figure 3.13). Ces contraintes ont pu être localisées et quantifiées grâce aux outils expérimentaux que nous avons présentés plus haut [142].

Les contraintes elles-mêmes ne sont par forcément la cause directe de l'ini-

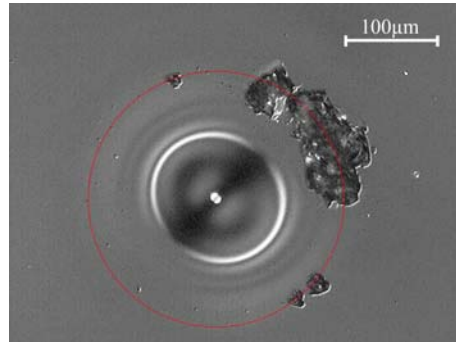


FIG. 3.12 – Observation par microscopie Nomarski d'un site stabilisé après des irradiations par un laser Nd :YAG, 355nm, 2,5ns.

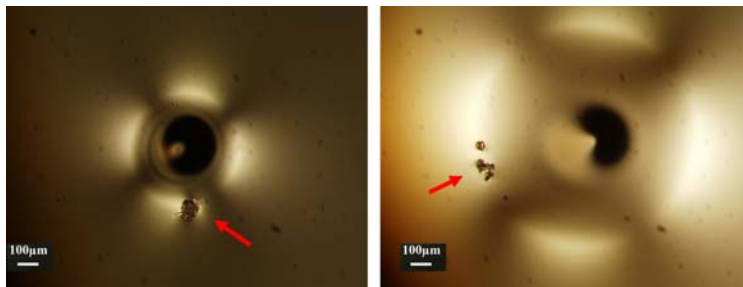


FIG. 3.13 – Observation entre polariseurs croisés de 2 sites stabilisés puis testés en tenue au flux. Les flèches rouges indiquent la présence de dommages dans la zone de biréfringence maximale. Ces 2 sites ont été créés avec des paramètres différents dans le but de changer la localisation des contraintes maximales.

tiation des dommages, mais les fortes contraintes générées dans cette zone peuvent être par exemple à l'origine de fractures sous-surfaciques qui sont des sites initiateurs privilégiés de l'endommagement laser, et peuvent privilégier l'extension des dommages laser.

Suite à ces résultats nous avons travaillé sur la mise au point de conditions de dépôt d'énergie permettant de maximiser la tenue au flux des sites stabilisés. La méthode que nous avons mise au point est détaillée dans la référence [167]. L'opération consiste à effectuer la stabilisation en 2 étapes :

- une première étape "évaporative" au cours de laquelle une densité de puissance conséquente est déposée sur la surface pour éliminer toute trace du dommage initial. Les températures atteintes dans la zone traitée sont alors supérieures à 2000K.

- une seconde étape "non-évaporative" à densité de puissance réduite et à faisceau d'irradiation étendu permettant de chauffer la zone précédente sans enlèvement de matière. La puissance déposée permet de chauffer la silice à des températures supérieures au point de recuit mais inférieures au point de ramollissement de la silice. Il est alors possible de modifier les contraintes résiduelles. Les forts gradients de contraintes liés au premier chauffage vont être supprimés, et remplacés par des gradients plus faibles liés au deuxième chauffage dit de "recuit" (faisceau plus large et densité surfacique de puissance plus faible). Ce recuit a également pour intérêt d'éliminer les redépôts de matière et de lisser la surface, ce qui est avantageux au niveau de l'impact sur le front d'onde lors de l'utilisation de l'optique.

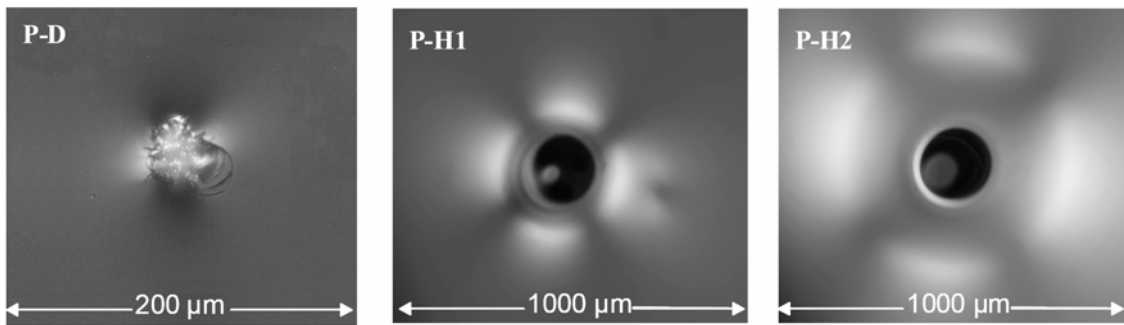


FIG. 3.14 – Observation au polariscope de l'évolution d'un site endommagé après les différentes étapes de stabilisation. (D) : caractérisation d'un dommage typique sur la face arrière d'un verre de silice ; H1 : Transformation de la surface après le premier chauffage "évaporatif" ; H2 : Effet de l'étape de recuit sur le cratère précédent.

Grace à ces travaux il est actuellement possible de stabiliser des dommages sur la surface de la silice d'une profondeur de  $50\mu\text{m}$ , avec une résistance supérieure à  $14\text{ J/cm}^2$  dans les conditions d'opération du LMJ (figure 3.15).

### 3.5 Conclusion & perspectives

Ce travail expérimental et théorique a abouti à la mise au point d'un procédé opérationnel tant du point de vue performances en terme de tenue au flux que de simplicité de mise en oeuvre pour un développement industriel. Ce



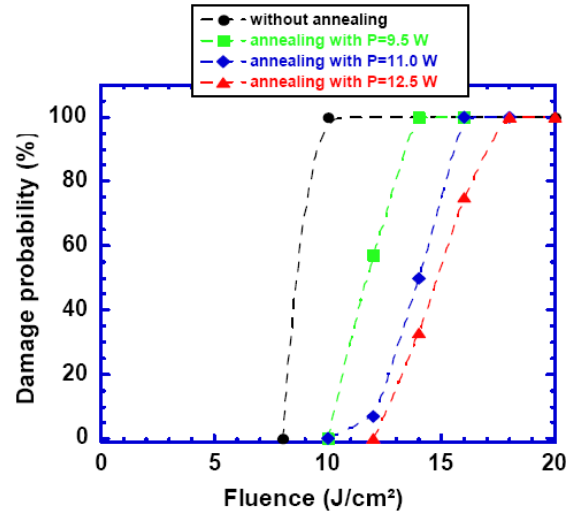


FIG. 3.15 – Probabilité d’endommagement en fonction de la densité d’énergie, à 355nm. Comparaison de l’effet de différentes puissances pour le recuit.

procédé, que nous n’avons pas entièrement détaillé a fait l’objet d’un dépôt de brevet [168] et de nombreuses communications et articles. Ces recherches sont actuellement poursuivies par un travail portant sur l’extension du procédé à la stabilisation de défauts de fabrication (rayures liées au polissage par exemple) par des procédés non évaporatifs. Il s’agit d’une part de comprendre les propriétés de ces défauts (notamment la structure sous-jacente à la surface) et la façon dont elles sont modifiées par le chauffage induit par laser CO<sub>2</sub>. Les travaux théoriques portant sur l’influence des contraintes sur la tenue au flux laser vont être poursuivis, notamment au travers de l’utilisation de codes de calculs du CEA faisant intervenir l’aspect hydrodynamique du phénomène de stabilisation.

Outre l’application particulière des lasers pour la fusion thermonucléaire auquel nous nous sommes intéressés, cette méthode peut également présenter un intérêt et ouvrir de nouvelles perspectives pour d’autres chaînes laser de puissance comportant des optiques de grandes dimensions où des problèmes de croissance de dommage peuvent se poser.

# Chapitre 4

## Projet de recherche



## 4.1 Introduction

Dans cette partie sont exposés les différents axes de recherche que je souhaite développer dans les prochaines années. La direction principale de ce projet est la poursuite de mes activités dans le domaine des couches minces optiques en continuant d'une part les travaux qui ont été initiés et en explorant de nouveaux aspects comme nous allons le décrire. Le projet peut être ainsi structuré en 3 parties principales : une première partie traite des aspects les plus fondamentaux des phénomènes d'endommagement laser, une autre concernant la conception et la réalisation de composants multicouches à haute tenue au flux, et une troisième consistant à utiliser les phénomènes d'interaction laser/matière pour structurer/modifier localement les propriétés des couches. Notons également que les travaux en collaboration avec le CEA sur la stabilisation des dommages lasers vont se poursuivre, notamment sur la réparation des défauts de surfaçage après polissage avant utilisation dans les chaînes de puissance. Ces suites ont déjà été évoquées dans la conclusion du chapitre 3 et ne feront donc pas l'objet de plus de détails dans ce chapitre. Nous verrons de plus dans la dernière partie que dans un esprit à la fois d'ouverture et de curiosité je cherche également à diversifier mes activités de recherche en traitant de nouveaux sujets.

## 4.2 Endommagement laser des couches minces optiques

### 4.2.1 Régime sub-picoseconde

Le domaine des couches minces pour laser femtoseconde de puissance est à l'heure actuelle très dynamique : développement de composants pour les grandes chaînes laser de puissance, réalisation de nouveaux composants multicouches pour la compression/étirement d'impulsion, nouveaux matériaux et structures (mélanges, filtres à gradient d'indice)...Il est ainsi essentiel pour l'équipe de poursuivre les recherches qui ont été engagées sur l'endommagement laser à courte durée d'impulsion. Ce sera une des thématiques majeure dans les prochaines années et une part importante de mon activité de recherche y sera consacrée. Dans ce domaine un point me paraissant essentiel est la caractérisation des matériaux puisque la plupart des paramètres inter-

venant dans les modèles d'endommagement en régime ultracourt sont mal connus dans les couches minces et très différents du matériaux massif (on citera par exemple le gap, la masse effective, les durées de relaxation électronique, les densités électroniques critiques,...). A moyen terme j'envisage donc de monter une expérience pompe/sonde sur le banc d'endommagement femtoseconde pour avoir accès à l'évolution temporelle au cours de l'impulsion des caractéristiques optiques des systèmes multicouches (Réflexion, Transmission, Diffusion, Absorption). L'exploitation des données d'une telle expérience et la comparaison aux résultats de modèles adaptés (tel que celui présenté dans le chapitre 2) lors d'études paramétriques permettra ainsi d'analyser les propriétés des couches minces optiques.

### 4.2.2 Matériaux pour les couches minces optiques

Les propriétés des matériaux de type 'mixtures' sont particulièrement importantes à étudier puisqu'ils l'ont été très peu jusqu'ici et qu'ils sont particulièrement importants pour les applications laser comme nous l'avons vu. Nous souhaitons donc poursuivre et renforcer notre collaboration avec le Laser Zentrum Hannover (un projet d'échange PROCOPE a d'ailleurs été déposé dans l'équipe) sur ce point mais également travailler en étroite collaboration avec l'équipe RCMO dans le cadre de l'Espace Photonique qui sera ouvert à l'Institut Fresnel en 2012 (financement Contrat Plan Etat Région). Des nouveaux bâtis de dépôt (machine de Plasma Assisted Reactive Magnetron Sputtering permettant de déposer des mixtures et machine de dépôt assisté par Gas Cluster Ion Beam), de nettoyage (machine de nettoyage automatisée), de nouveaux moyens de caractérisation (Spectromètres permettant de couvrir de 190nm à 20 microns, profilomètre optique), et le transfert des bâtis et outils de caractérisation existants dans un environnement adapté (salle blanche) devraient en effet permettre de lancer une nouvelle dynamique et renforcer la position du laboratoire dans le domaine des couches minces optiques. Ces moyens associés à ceux dont dispose l'équipe MAP2 pour la mesure et l'analyse des phénomènes d'endommagement permettent d'envisager de nombreuses perspectives dans la réalisation de composants à haute tenue au flux laser.

## 4.3 Composants multicouches pour lasers de puissance

Sur le plan applicatif, une des finalités de nos travaux est d'améliorer la résistance au flux laser des optiques. Le développement de composants est donc envisagé, soit en interne avec l'équipe RCMO ou dans le cadre de partenariats avec des entreprises ou laboratoires fabriquant des systèmes multicouches. Les moyens utilisés pour améliorer la tenue au flux des optiques peuvent être : l'optimisation des procédés de dépôt, les nouveaux matériaux (mélanges par exemple), les structures innovantes (citons sur ce sujet le brevet que nous avons co-déposé en 2010 [169]), en s'appuyant sur les compétences et moyens complémentaires de notre équipe et des partenaires. A très court terme (novembre 2011) un partenariat avec l'entreprise SAGEM va débuter via le démarrage d'une thèse CIFRE (SAGEM / Laboratoire d'Optique Appliquée / Institut Fresnel) dont je suis co-directeur. Il s'agira de réaliser des traitements optiques multicouches pour les chaînes laser de très forte puissance basées sur la technologie Ti-Sa.

## 4.4 Applications des modifications induites par laser femtoseconde dans les couches minces

Dans le cadre de mon activité de recherche, un des axes que je souhaite développer particulièrement est celui des applications des interactions laser/matière en régime femtoseconde dans les couches minces. En effet comme nous l'avons vu les propriétés particulières de cette interaction permettent de modifier, avec une résolution spatiale inférieure à la centaine de nanomètres, l'indice de réfraction et/ou les caractéristiques géométriques de couches déposées à la surface d'un substrat. Ceci ouvre des perspectives intéressantes dans de nombreuses applications, et c'est sur 2 applications particulières que je vais concentrer mes efforts.

### 4.4.1 Structuration des couches minces optiques

Nous avons présenté le projet ANR FESTIC dans le chapitre 2. Son objet était de mettre en place les outils expérimentaux afin de réaliser par laser des

structures périodiques 2D dans des empilements de couches minces, pour réaliser des composants optiques entièrement nouveaux. Dans le cadre de l'ANR des bancs d'interaction et de caractérisation visant à atteindre cet objectif ont été montés et si de premiers résultats ont été obtenus nous sommes encore loin de la réalisation effective de tels composants. Nous souhaitons donc poursuivre le travail qui a été engagé en étroite collaboration avec l'équipe RCMO de l'Institut Fresnel.

#### 4.4.2 **Projet FLEXMEM**

Une caractéristique intéressante de l'interaction laser femtoseconde/couche mince est la capacité de modifier la couche en affectant très peu le substrat. Il peut être notamment possible d'enlever une partie de la couche, comme nous l'avons vu dans le chapitre consacré à ce sujet, en laissant le substrat intact. Cette propriété intéressante peut notamment être utilisée pour ablater des couches de matériaux sur des substrats en polymère, ne résistant pas à des procédés de type thermique. C'est justement sur cet aspect que porte une collaboration que nous avons mis en place en 2010 avec l'IM2NP (Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence). L'objectif du projet vise à développer un procédé technologique nouveau, en s'appuyant sur les compétences transversales issues des deux laboratoires, permettant la réalisation de composants microélectroniques sur support souple en remplacement du silicium utilisé de manière conventionnelle. Plus précisément il s'agit de réaliser une matrice mémoire sur support souple associant non volatilité, faible consommation et grande densité. Ce type de mémoire pourra ainsi être compatible avec les étiquettes RFID flexibles. L'originalité du projet consiste en l'utilisation de procédés laser pour la réalisation de structures d'une résolution spatiale encore non atteinte à ce jour (limitation à quelques dizaines de microns avec les technologies jets d'encre). La mise au point de tels procédés de fabrication, compatibles avec l'électronique imprimée, représente un grand enjeu scientifique et industriel. En effet, même si la fabrication de transistors et de circuits imprimés sur support souple a fait l'objet de nombreuses démonstrations [170, 171], la réalisation d'un plan mémoire réinscriptible reste aujourd'hui un verrou technologique, qui, une fois levé, permettrait une évolution vers des étiquettes RFID « intelligentes ». Afin de résoudre les problèmes

de dimensions critiques non réalisables directement par électronique imprimée l'idée est d'utiliser un faisceau laser femtoseconde permettant de graver des matériaux déposés par jet de matière et permettant de réaliser des structures microniques. La technologie laser possède de plus le double avantage de pouvoir être facilement implémentée dans les chaînes d'impression industrielles et de ne pas nécessiter la fabrication de masques coûteux requis pour la photolithographie. Ces deux avantages en font le candidat idéal pour l'électronique flexible dont le coût de revient doit rester très inférieur à celui des circuits réalisés en silicium. Pour débiter ce projet ambitieux, de premiers essais encourageants ont été réalisés (gravure de couches métalliques sur substrats polymères). Pour aller plus loin nous avons sollicité et obtenu des financements du CNRS (Missions Ressources et Compétences Technologiques) suite à un appel à projet technologiques. Ce financement a permis d'acquérir un système de miroirs galvanométriques pour réaliser des structures 2D qui a été mis en place, interfacé et testé sur le banc sub-picoseconde lors des stages de J. Alanis (dernière année de cycle ingénieur à l'ECM) et J. Gon (licence Genie Electronique et Informatique Industrielle). La faisabilité a été démontrée et nous allons monter des partenariats plus ambitieux entre les deux groupes.

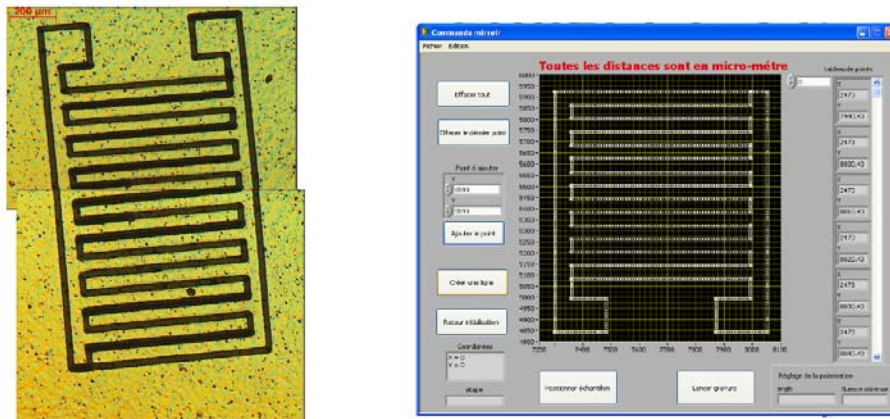


FIG. 4.1 – Exemples de résultats obtenus sur le projet Flexmem. A droite : interface de pilotage du laser et des miroirs galvanométriques développée pour l'étude. A gauche : exemple de structure gravée par laser sur une couche de platine déposée sur un substrat souple en kapton.



## 4.5 Ouverture vers de nouvelles thématiques

En 2008 j'ai commencé à travailler sur un sujet entièrement nouveau pour moi, en lien avec le secteur du nucléaire, dans le cadre d'une collaboration avec le CEA Cadarache. Les premiers contacts sur ce sujet ont eu lieu entre l'Institut Fresnel et le CEA Cadarache à travers un contrat de recherche, le co-encadrement d'un étudiant en Diplôme de Recherche et Technologie (DRT) et plusieurs projets transverses menés dans le cadre de leur formation par des élèves de l'Ecole Centrale Marseille. Les travaux de recherche menés dans ce projet ont pour objectif de contribuer au développement du contrôle non destructif des gainages de combustibles nucléaires afin d'améliorer la compréhension des phénomènes d'Interaction Pastille de Combustible/Gaine, qui sont une problématique de toute première importance pour la conduite et la sécurité des réacteurs nucléaires. Notre participation à ce projet concerne la partie instrumentation optique, et c'est en tant que spécialistes de ce domaine que nous avons été consultés. La méthode que nous cherchons à développer est une technique optique basée sur le principe de l'interférométrie de speckle, qui entre dans les champs de compétences de l'équipe MAP2. Elle doit être mise en place dans un environnement de laboratoire dit de haute activité, c'est-à-dire offrant la possibilité de travailler sur des échantillons hautement radioactifs. L'objectif de ces travaux est d'une part sur le plan technologique d'adapter des outils optiques « classiques » à l'environnement nucléaire, et d'autre part sur le plan scientifique de comprendre et d'améliorer la modélisation des interactions pastille-gaine dans les crayons de combustibles nucléaires. Ce projet réunit deux acteurs régionaux : notre équipe ayant l'expertise dans le domaine de l'optique et le LAMIR (Laboratoire d'Analyse de la Migration des Radio-éléments) du Département d'Etudes des Combustibles du CEA-Cadarache. Compte tenu de la part d'activités et des enjeux du secteur du nucléaire en France il m'est apparu important, notamment en tant qu'enseignant dans une école d'ingénieurs de premier plan, de nouer des relations avec des acteurs de ce secteur. Sur ce plan ce travail a porté ses fruits puisque au total une vingtaine d'élèves ont effectué un projet transverse sur cette thématique, deux élèves ont effectué un stage au LAMIR et des cours sont maintenant dispensés à l'ECM sur ces thématiques.

Les premières études que nous avons conjointement menées en 2008-2009 ont

permis de démontrer la faisabilité de la technique proposée. Ceci est détaillée dans les publications et conférences communes aux deux équipes : (1) A. Vauselle, Y. Pontillon, L. Gallais, 'Development of an optical method to measure deformations of nuclear fuel cladding' Proc. of 46-TH ANNUAL MEETING, 'Hot laboratories and remote handling', September 2009, Czech Republic (**prix de la meilleure présentation**); (2) A. Vauselle, Y. Pontillon, L. Gallais, 'Feasibility Studies of speckle interferometry to measure deformations of nuclear fuel cladding', Nuclear Technology, accepté pour publication.

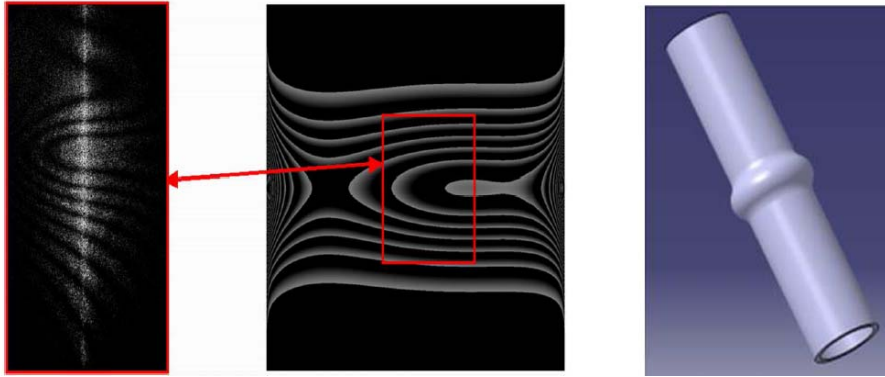


FIG. 4.2 – *Illustration des premiers résultats obtenus sur le projet en collaboration avec le CEA Cararache. A gauche : franges d'interférences de speckle obtenues sur une gaine de combustible présentant une déformation. L'image est le résultat de la soustraction des interférogrammes de Speckle avant et après déformation. Au milieu : simulation des franges sous Matlab. A droite : vue schématique d'une gaine déformée.*

Suite à ces études nous démarrons en 2011 un projet commun financé par la région PACA pour aboutir à un système viable (projet MODEL : Mesure Optique de Déformation En Ligne du gainage de combustibles nucléaires). Un post-doctorant va être recruté dans l'équipe début novembre 2011 pour travailler sur cette thématique.



## Deuxième Partie



## Laurent GALLAIS-DURING

35 ans, Marié, 2 enfants

Français

Tel. prof. : 04 91 28 80 72

Port. : 06 72 86 47 03

email : laurent.gallais@fresnel.fr



## Maître de Conférences Enseignant à l'Ecole Centrale Marseille Chercheur à l'Institut Fresnel

### Activités de recherche

J'effectue ma recherche à l'Institut Fresnel dans l'équipe MAP2 sur la thématique « Endommagement laser des matériaux optiques ». Les travaux que nous menons ont pour objet la compréhension, la modélisation et la mesure des phénomènes de dégradation sous fort flux laser des composants optiques utilisés dans les chaînes laser de puissance.

Je suis bénéficiaire de la PEDR depuis 2007.

### Activités d'enseignement

La majeure partie de mes enseignements est effectuée à l'ECM dans le domaine de l'optique et des lasers sous forme de cours (systèmes optiques, laser, science et technologie de la visualisation, stockage optique,), TD (optique géométrique, interférométrie, diffraction,...), TP (holographie, telecoms optiques, modulateurs, colorimétrie...) et Projets Transverses en collaboration avec des industriels.

J'effectue également des interventions dans le Master *Sciences de la Fusion* (Lasers, diagnostics optiques pour les plasmas), la Licence *MicroElectronique et MicroSystèmes* (écrans plats et visualisation), et dans des formations continues au CNRS (optique pour la biologie, tenue au flux laser des composants optiques) et à l'Université Paul Cézanne (sécurité laser).

### Publications

27 publications dans des Revues Internationales à Comité de Lecture, 2 brevets.

40 communications dans des congrès internationaux.

### Responsabilités collectives

2010-2011 Responsable du Réseau national *Optique et Photonique* de la Mission Ressources et Compétences Technologiques du CNRS ([www.rop.cnrs.fr](http://www.rop.cnrs.fr)).

2007-2009 Membre du Comité de Pilotage *Réseau Optique et Photonique*.

2005-2011 Membre du Comité Hygiène et Sécurité de l'Institut Fresnel (responsable *sécurité laser*).

2007-2008 Membre élu du Conseil Scientifique de l'Ecole Centrale Marseille.

2006-2008 Membre élu de la Commission Pluridisciplinaire de Spécialistes de l'ECM.

## Responsabilités scientifiques

- 2009-2010 Vilnius University Laser Research Center (Lituanie) : Mise en place et responsabilité d'une collaboration sur *l'endommagement laser en régime femtoseconde des couches minces optiques* (financements de l'EGIDE et de Laserlab-Europe).
- 2006-2010 CEA CESTA : Mise en place et responsabilité de 3 contrats de recherche sur la *stabilisation par laser CO2 de dommages laser*. Membre du groupe de travail *RESIST* du CEA sur la tenue au flux laser des optiques du *Laser Mega Joule*.
- 2008-2010 CEA Cadarache : Mise en place et responsabilité d'une collaboration sur la *mesure optique de déformation de gainage de combustible nucléaire* (contrat de recherche, encadrement en co-tutelle d'un étudiant en Diplôme de Recherche et Technologie).
- 2009 State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation (Chine) : Responsable d'une collaboration sur la *tenue au flux laser d'optiques pour les lasers OPO* (encadrement en co-tutelle d'un post-doc financé par le China State Scholarship Fund).
- 2005 Lawrence Livermore National Laboratory (Etats-Unis) : expertise scientifique pour le CEA sur la *stabilisation de dommages laser*, séjour de 3 mois au LLNL (en délégation).
- 2003-2006 CILAS (Compagnie Industrielle des Laser) : responsable de plusieurs contrats d'étude, co-encadrement d'une thèse CIFRE.

## Responsabilités pédagogiques

- Depuis 2010 Responsable des Projets Transverses (Travail en groupes d'élèves sur la 1ère et 2ème année sur des sujets proposés par des industriels. 40 projets/an, 230 élèves)
- Depuis 2007 Membre du comité de pilotage des Relations Internationales de l'ECM, correspondant pour les pays scandinaves et baltes.
- Responsable de plusieurs Unités d'Enseignement : Ingénierie et instrumentation optique (option de 1ère année), Optique et Multimédias (3ème année), Télécommunications Optiques (3ème année), Sources de Puissance - du laser à la HF (Master 2 Fusion).

## Encadrement

- Doctorants Co-encadrement de 3 thèses soutenues et 2 thèses en cours.
- Post-doctorants Co-encadrement de deux post-doctorants
- DRT (bac+6) Co-encadrement d'un étudiant en Diplôme de Recherche et Technologie
- Ingénieur, Master, Licence Encadrement de 10 étudiants au laboratoire depuis 2003.

## Formation initiale

- 1999-2002 Doctorat en Sciences de l'Université d'Aix-Marseille III. Thèse financée par la DGA : *Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo induite des sites initiateurs*.
- 1998-1999 DEA « Optique, Image et Signal » de l'Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille (ENSPM). Mention : Bien.
- 1996-1999 Diplôme d'Ingénieur de l'Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille.
- 1994-1996 Classes préparatoires Math Sup et Math Spé (Lycée B. Pascal, Clermont Ferrand).

## Chapitre 5

# Activités et responsabilités en recherche et formation





## 5.1 Responsabilités scientifiques

Notre travail de recherche porte sur la compréhension des phénomènes d'endommagement laser dans les matériaux optiques. Un des objectifs de nos travaux est de contribuer à améliorer la résistance au flux laser des composants optiques pour le développement des lasers de puissance et de leur applications. Nous sommes ainsi amenés dans le cadre de nos recherches à collaborer naturellement avec des entreprises, laboratoires, grands organismes de recherche qui réalisent des composants optiques ou qui conçoivent des systèmes laser. Nous ne présentons pas les collaborations "internes", principalement avec l'équipe Recherche en Couches Minces Optiques mais il va de soit d'après tout ce que nous avons présenté que c'est la plus importante et que nous allons continuer de travailler en étroite collaboration avec cette équipe dans le futur.

### **Collaboration avec le Laser Research Center (Vilnius University, Lituanie)**

Fin 2008 j'ai mis en place une collaboration avec ce laboratoire Lituanien (équipe *Optics Characterization* du prof. Valdas Sirutkaitis) sur la problématique de l'*endommagement laser en régime femtoseconde*. L'objectif de cette collaboration était de mettre en commun des outils expérimentaux, théoriques et des moyens humains pour traiter d'une problématique commune aux deux laboratoires : *la tenue au flux en régime femtoseconde des couches minces optiques*. L'intérêt de cette collaboration est de pouvoir disposer d'une large gamme de sources lasers femto/picosecondes (de 30 fs à 30ps), de moyens de caractérisation et de fabrication de couches minces optiques complémentaires. Les travaux ont débuté en 2009 grâce à des financements dans le cadre des programmes GILIBERT (ministère des affaires étrangères) et Laserlab-Europe et ont fait partie intégrante de la thèse de B. Mangote. Des financements de l'ambassade de France ont également été obtenus pour l'aide à la mobilité des chercheurs Lituanien. Sur les années 2009-2010, 4 personnes de l'équipe française ont travaillé au VULRC sur une durée cumulée de 11 semaines et 5 personnels Lituanien sont venus à l'Institut Fresnel sur une durée cumulée équivalente. Ces travaux ont abouti à 3 publications dans des Revues Interna-

tionales à Comité de Lecture (une autre est en préparation), 7 présentations dans des congrès internationaux, et une partie des résultats de la thèse de Benoît Mangote qui s'est fortement impliqué dans ces travaux. Cette collaboration fructueuse est actuellement poursuivie.

### **Collaboration avec le Laser Zentrum Hannover (Allemagne)**

Plus récemment (2010) et dans la continuité de la collaboration Lituanienne nous avons commencé à travailler avec le LZH. Les thématiques du groupe "Laser components" de ce laboratoire portent sur des intérêts communs puisqu'elles concernent principalement les couches minces optiques pour lasers de puissance, avec une complémentarité des équipements et compétences. Les études sont actuellement en cours et portent notamment sur des matériaux de type mixtures d'oxydes ( $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ , et  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ ). Les premiers résultats ont été obtenus comme cela a été évoqué et les études se poursuivent.

### **Projet ANR FESTIC**

J'ai participé à un projet de recherche dénommé FESTIC (FEMtoSecond laser Trimming of Interference Coatings), qui est un des volets de la thèse de B. Mangote. Ce projet financé par l'ANR, la Région PACA et le CG13, a regroupé différents partenaires universitaires et industriels : Laboratoire d'Optique Appliquée, Laboratoire Plasmas et Procédés Photoniques, équipes RCMO et MAP2 de l'Institut fresnel, CILAS, Amplitude.

L'objectif consistait à mettre en oeuvre les propriétés particulières de l'interaction laser-matière en régime femtoseconde, pour modifier, avec une résolution spatiale inférieure à la centaine de nanomètres, l'indice de réfraction et/ou les caractéristiques géométriques d'une ou de plusieurs des couches minces constitutives d'un filtre optique interférentiel déposé à la surface d'un substrat. Ce mécanisme de retouche locale doit être mis à profit pour optimiser les performances de filtres à bande très étroite, pour réaliser des composants entièrement nouveaux adaptés à la mise en forme de flux laser, pour créer des filtres inverses par gravure de structures périodiques 2D dans des empilements de couches minces ou pour structurer la face supérieure d'un substrat massif

en vue de modifier ses propriétés de réflexion ou de déphasage.

### **Collaboration avec le CEA CESTA**

Depuis 2005 je suis responsable d'une collaboration scientifique avec le CEA CESTA (dans le cadre du projet Laser Mega-Joule) portant sur la *réparation de dommages lasers sur des optiques de grandes dimensions*. En 2005 j'ai bénéficié d'une délégation pendant 3 mois au CEA pour effectuer une expertise scientifique au Lawrence Livermore National Laboratory visant à évaluer les potentialités des méthodes développées dans le cadre du projet National Ignition Facility. Suite à ces études effectuées au LLNL, une collaboration scientifique à long terme a suivi avec nos collègues du CEA : plusieurs contrats de recherche de 2006 à aujourd'hui pour un budget d'environ 120k€. Une post-doctorante dans l'équipe (Stéphanie Palmier), et plusieurs stagiaires (V. Brandli, M. Jahjah, G. Mahé) ont participé à ces travaux, qui ont donné lieu à plusieurs publications et un brevet.

Dans le cadre de cette collaboration je suis membre d'un groupe de travail au CEA-CESTA portant sur la problématique de l'endommagement laser sur le Laser Mega-Joule.

### **Collaboration avec le CEA Cadarache**

Cette collaboration a été évoquée dans le chapitre consacré à mon projet de recherche. Il s'agit d'un travail portant sur l'instrumentation optique dans le milieu du nucléaire et initié lors de projets d'élèves de l'Ecole Centrale Marseille. Les résultats obtenus ont permis d'engager un contrat de recherche avec Cadarache en 2009 et le co-encadrement d'un étudiant en DRT. Le succès de notre collaboration nous a permis d'obtenir des financements de la région PACA (dans le cadre de l'Appel à Projet Ouvert 2010) et un post-doctorant va être recruté fin 2011 pour travailler sur la thématique. Les financements obtenus pour l'équipe via la région et le CEA s'élèvent à environ 150k€ sur 2 ans.

## **Collaboration avec l'Institut des Matériaux et des Nanosciences de Provence**

Il s'agit ici du projet FLEXMEM dont nous avons parlé au chapitre 2 et qui a pour objet la réalisation de composants électroniques sur support souple. Ce projet a commencé en 2010 et a obtenu des financements du CNRS. Deux stagiaires ont participé aux études. Suite aux résultats prometteurs obtenus, le projet va maintenant entamer une nouvelle phase avec comme perspectives une thèse en commun et une demande à l'ANR.

## **Etude pour le compte de la DGA**

En 2005-2006 j'ai effectué pour le compte de la DGA et dans le cadre d'un contrat passé avec cet organisme une étude bibliographique sur 'Les effets d'endommagement laser dans l'infrarouge et en régime continu' (rapport confidentiel).

## **Collaborations avec des industriels**

Nos activités de recherche sur la tenue au flux des composants optiques et les moyens de métrologie que nous avons développés dans le cadre de la plateforme "photonique de puissance" font que nous sommes un partenaire privilégié des industriels locaux pour évaluer la tenue au flux de leurs composants optiques. J'ai donc été amené à gérer des contrats de prestation de mesure pour des sociétés telles que CILAS et SILIOS.

Outre ces activités j'ai co-encadré une thèse CIFRE en partenariat avec la société CILAS et en 2011 une nouvelle thèse CIFRE va démarrer avec la société SAGEM portant sur le *développement de traitements multidielectriques pour laser de haute puissance femtoseconde*.

## 5.2 Actions de valorisation, de diffusion des activités de recherche et d'expertise

### Réseau Optique Photonique du CNRS

Depuis janvier 2010 je suis le coordinateur du Réseau Optique et Photonique ([www.rop.cnrs.fr](http://www.rop.cnrs.fr)), comptant plus de 360 membres inscrits en 2011. Ce réseau national fait partie de la Mission Ressources et Compétences Technologiques du CNRS, structure interdisciplinaire originale initiant des actions transversales fondées sur les technologies. L'objectif du Réseau Optique et Photonique est de fédérer le plus largement possible les acteurs de la recherche (chercheurs, ingénieurs, techniciens, doctorants) opérant dans les laboratoires du CNRS, des EPST et des Universités. Ses missions sont notamment de :

- Recenser les différents outils, méthodes et savoir-faire
- Sauvegarder ce savoir-faire, transmettre les connaissances et compétences technologiques
- Organiser la communication entre les participants, favoriser les rencontres lors de journées thématiques
- Faciliter les échanges non seulement en matériels mais aussi en compétences techniques entre les différents laboratoires. Favoriser les relations interdisciplinaires avec les autres réseaux thématiques
- Mutualiser les expériences acquises (outils, méthodes, organisations et compétences)
- Concevoir, rédiger et publier des documents technologiques
- Initier et continuer à organiser des écoles, ateliers ou journées thématiques,... sur les techniques, les utilisations, les applications liées aux différents thèmes du réseau.

Compte tenu de l'étendue de ces missions une part conséquente de mon temps est consacrée à la gestion et l'animation de ce réseau (organisation de réunions du comité de pilotage, gestion du budget, direction de la publication du site web, gestion de la liste de diffusion, communications, expertises, lancement de projets, organisation de formations/colloques/journées thématiques, ...)

## Diffusion du sujet de recherche "endommagement laser"

- Rédaction d'un article didactique dans la revue "Techniques de l'Ingénieur" en 2010 (Dossier no R 6738)
- Organisateur d'une formation nationale du CNRS en 2009 d'une durée de quatre jours (10 personnes) sur la 'Tenue au flux laser des composants optiques'. Les lasers de puissance étant rencontrés dans de nombreux champs de recherche, la formation avait pour but d'apporter des réponses aux problèmes d'endommagement laser rencontrés par les personnes concevant des lasers ou des systèmes lasers et aux expérimentateurs utilisant des lasers. ([www.rop.cnrs.fr/formation.htm](http://www.rop.cnrs.fr/formation.htm))

## Organisation de conférences

- Co-organisateur des journées de l'optique du 9 au 11 octobre 2007 à la presqu'île de Giens ([www.rop.cnrs.fr/jnrop\\_2007.htm](http://www.rop.cnrs.fr/jnrop_2007.htm)).
- Co-organisateur de la journée thématique 'Optique pour la Mesure Physique' le 15 avril 2009 à Marseille (<http://www.centrale-marseille.fr/colloques>)
- Membre du comité local d'organisation pour la conférence nationale 'Marseille 2011', regroupement de COLOQ, JNOG, JNCO, Horizons de l'Optique (<http://www.fresnel.fr/Optique-Marseille-2011>).
- Organisateur des Journées de l'Optique 2012, programmées du 15 au 18 octobre 2012 à Cargèse (Corse).

## Reviews

Je participe régulièrement à l'évaluation de papiers soumis à différents journaux à raison d'environ une douzaine par an : Applied Physics Letters, Optics Letters, Optics Express, Applied Optics, Optics Communications, Thin Solid Films, Applied Surface Science, Optics and Laser in Engineering.

## Expertise

- Membre d'un groupe de travail depuis 2007 au CEA CESTA sur la problématique de la tenue au flux laser des optiques du Laser MégaJoule.

- Expertise pour le CNRS des projets technologiques interdisciplinaires (PTI) et actions d'intérêt collectif interdisciplinaires (ACI).
- Expertise pour l'Agence Nationale Recherche et Technologie pour des dossiers de thèse CIFRE.
- Expertises pour l'Institut Carnot STAR.

### 5.2.1 Formations à destination des personnels des laboratoires de recherche

- Organisateur d'une formation nationale du CNRS en 2009 (10 personnes, 4 jours) sur la 'Tenue au flux laser des composants optiques'. ([www.rop.cnrs.fr/formation.htm](http://www.rop.cnrs.fr/formation.htm))
- Organisateur d'une formation nationale du CNRS en 2011 (10 personnes, 3 jours) sur une 'Initiation au logiciel Zemax'. ([www.rop.cnrs.fr/formation.htm](http://www.rop.cnrs.fr/formation.htm))
- Intervenant dans des formations de la MRCT : 'Optique pour la biologie' (réseau Microscopie Photonique, [www.mfm.cnrs.fr/formation.htm](http://www.mfm.cnrs.fr/formation.htm)), 'Endommagement laser des cristaux' (Réseau CMDO+, [www.cmdo.cnrs.fr/](http://www.cmdo.cnrs.fr/))

### Actions auprès du jeune public

- Mise en place et animation d'un stand didactique pour la fête de la science (public : élèves de lycée et collègue) : 'Telecommunications par fibres optiques' (2006).
- Projet sur l'holographie avec des élèves du Lycée Paul Cézanne (Aix-en-Provence) pour les Olympiades de la Physique 2009-2010 (<http://www.odpf.org>). Elèves sélectionnés au niveau régional pour présenter leurs travaux au Palais de la Découverte.
- Réalisation en 2010 d'une expérience de transmission d'un signal audio dans une fibre optique pour l'association "les petits débrouillards" (<http://www.lespetitsdebrouillards.org/>).
- Interventions dans des lycées à l'occasion des 50 ans du laser.
- 2011 : projets d'élèves au Lycée de Pertuis (84) sur la thématique 'Arts et Sciences'.



- Participation aux '*Rencontres Pédagogiques 2011*' dans le cadre du congrès *Optique Marseille 2011*. Présentation d'un poster : '*Transmission d'un signal par voie optique*' (N. Chateur et L. Gallais).

### 5.3 Responsabilités collectives

- Coordinateur depuis 2010 du Réseau Optique et Photonique de la Mission Ressources et Compétences Technologiques du CNRS (<http://www.rop.cnrs.fr>).
- Membre élu de la Commission Pluridisciplinaire de Spécialistes de l'Ecole Centrale Marseille, de 2006 à 2008 (représentant la section 63).
- Membre élu du Conseil Scientifique de l'Ecole Centrale Marseille, de 2007 à 2008.
- Membre du Comité Hygiène et Sécurité de l'Institut Fresnel, depuis 2005. En charge de l'aspect 'sécurité laser du laboratoire' (une vingtaine de lasers de Classe IV). A ce titre tous les ans je co-organise avec le laboratoire PIIM une journée de sensibilisation au risque laser ouverte à tout le personnel de l'Université Paul Cézanne).
- Membre du comité de pilotage du Réseau Optique et Photonique du CNRS depuis 2007 (Mission Ressources et Compétences Technologiques : <http://www.mrct.cnrs.fr>).
- Participation à des comités de sélection pour des postes de MCF à l'Université Paul Cézanne à l'IUT d'Aix-Marseille.
- Représentant de l'ECM pour le recrutement des doctorants chinois (bourses CSC) pour les laboratoires associés à l'Ecole Centrale Marseille (<http://csc-centrale.ec-lyon.fr>).
- Représentant du laboratoire dans le groupe opérationnel 'Matériaux et Procédés' de l'Institut Carnot Science et Technologie pour les Applications de la Recherche (<http://www.institutes-carnot.eu/fr/star>).

## 5.4 Encadrement doctoral et scientifique

### Thèses

A ce jour j'ai co-dirigé 4 thèses. Trois d'entre elles ont été soutenues et une autre est en cours. Une cinquième démarre en novembre 2011.

- Co-direction (50%) avec M. Commandré de la thèse de H. Krol, sous contrat CIFRE avec la société CILAS, portant sur la "Tenue au flux des composants optiques multicouches dans le domaine infrarouge". La thèse a débuté en novembre 2003 et a été soutenue en décembre 2006. A l'issue de ses travaux, H. Krol a été embauché en CDI par la société CILAS.
- Co-direction (30%) avec J.Y. Natoli de la thèse de J. Capoulade (bourse MENRT). Le sujet de thèse était le suivant : "Etude multi-échelle de l'initiation de l'endommagement laser en surface et dans le volume de matériaux optiques". La thèse a débuté en octobre 2004 et a été soutenue en juillet 2008. J. Capoulade est actuellement en post-doctorat à l'European Molecular Biology Laboratory (Heidelberg, Allemagne).
- Co-direction (50%) avec M. Commandré de la thèse de B. Mangote (bourse MENRT). Le sujet de thèse était le suivant : "Endommagement laser des couches minces optiques en régime sub-picoseconde". La thèse a débuté en octobre 2008 et a été soutenue en octobre 2011. B. Mangote est actuellement en post-doctorat au CEA CESTA.
- Co-direction (50%) avec M. Commandré de la thèse de Xinghai Fu (bourse du China Scholarship Council), ayant débutée en octobre 2009.
- Début en 2011 de la thèse CIFRE d'Adrien Hervy avec la société SAGEM et portant sur le sujet : 'Développement de traitements multidiélectriques pour laser de haute puissance femtoseconde'. Co-direction de la thèse avec G. Chériaux du Laboratoire d'Optique Appliquée (Palaiseau).

### Diplôme de Recherche et Technologie

Le DRT est un diplôme national de 3<sup>ème</sup> cycle, de niveau bac+6, qui permet aux étudiants diplômés de parfaire leurs connaissances par une initiation à la recherche et au développement des technologies avancées dans le cadre d'un contrat de travail négocié avec une entreprise industrielle.

J'ai co-dirigé avec Y. Pontillon (Ingénieur-Chercheur au CEA de Cadarache) le DRT d'A. Vauselle, sous contrat avec le CEA, dans le cadre d'une collaboration avec le Laboratoire LAMIR (Direction de l'Energie Nucléaire/Département d'Etudes des Combustibles/Service d'Analyse et de Caractérisation du Comportement du Combustible /Laboratoire d'étude de la Migration des Radioéléments). Le DRT portait sur la "Mesure de déformation de la gaine de combustibles nucléaires par des méthodes optiques". A. Vauselle a débuté son DRT en novembre 2008 et soutenu en novembre 2009. Au cours de ce DRT il a obtenu le prix de la meilleure présentation orale à la conférence internationale *Hotlab 2009* (Prague). Il est actuellement en thèse CIFRE avec la société ST-microelectronique et l'Institut Fresnel sur une autre thématique.

## **Post-doctorat**

En 2009 j'ai encadré Wang Ying. De nationalité chinoise et bénéficiaire d'une bourse du Chinese Scholarship Council elle a travaillé sur la tenue au flux laser dans le domaine moyen infrarouge d'optiques pour laser à Oscillateurs Paramétriques Optiques.

En 2010 j'ai supervisé le travail de G. Demesy en post-doctorat dans l'équipe. Son travail portait sur le développement de codes de calculs aux éléments finis pour les thématiques de l'endommagement laser traitées dans l'équipe.

## **Ingénieurs, Master, Licence, DUT**

- Au cours de mes activités de recherche j'ai encadré les étudiants suivants :
- J. Alanis, Ecole Centrale Marseille - 3ème année (avril-juillet 2011) : 'Réalisation de composants électronique sur supports souples par procédés de gravure laser femtoseconde'
  - J. Gon, Licence Pro-IUT-Marseille (avril-juin 2011) : 'Réalisation du contrôle/commande d'un système de gravure laser'
  - M. Disdero, Ecole Centrale Marseille - 2ème année (juin-juillet 2010) : "Développement d'un système d'ombroscopie pour la mesure 3D de gaines de combustibles nucléaires"
  - S. Alenda, Licence Pro IUT-Marseille (mars-juin 2009) : "Installation et caractérisation d'un mesureur de pertes optiques"

- G. Mahé, Master I-Aix Marseille III (avril-juillet 2008) : "Etude de contraintes par photoélasticimétrie".
- M. Jahjah, Master I-Grenoble (avril-juillet 2007) : "Stabilisation des dommages par laser CO<sub>2</sub>".
- L. Debeire, IUT-Marseille (avril-juin 2007) : "Caractérisation de couches minces optiques par photothermie et microscopie à force atomique".
- V. Brandli, Master I-Grenoble (avril-juillet 2006) : "Etude de verres de silice irradiés localement par laser CO<sub>2</sub>".
- M. Lay, IUT-Marseille (avril-juin 2003) : "Développement d'un banc de caractérisation d'optiques à 244nm pour la photolithographie".
- H. Hinsch, Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille (Novembre 2002-Février 2003), étudiant Erasmus de niveau M1 : "Development of an apparatus for the optical characterization of deep UV materials".
- C. Escolano, IUT-Marseille (avril-juin 2002) : "Etude du claquage diélectrique des couches minces de silice".

## 5.5 Activités d'enseignement

### Ecole Centrale Marseille

Je suis enseignant dans le cursus d'ingénieurs de l'Ecole Centrale Marseille ([www.centrale-marseille.fr](http://www.centrale-marseille.fr)). J'interviens en 1<sup>ère</sup>, 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> années au travers d'enseignements dans le domaine de l'optique. L'Ecole ayant été créée un an après mon recrutement j'ai été amené à créer et mettre en place la majeure partie des cours et TP que j'assure, ce qui m'a demandé un gros investissement. La répartition actuelle de mes enseignements est donnée sur la figure 5.1 pour l'année 2010-2011.

En première année mes enseignements se font principalement sous forme de Travaux Pratiques en Tronc Commun dans le domaine de l'Optique (Holographie et Optique de Fourier). Il s'agit là d'une orientation volontaire de ma part, car comme cela a pu être mis en évidence dans mes activités de recherche j'ai un goût prononcé pour l'instrumentation optique. J'essaie également par ce biais d'intéresser les élèves de l'ECM à cette discipline. C'est dans cet esprit que j'ai lancé en 2009 une option intitulée 'Ingénierie et Instru-

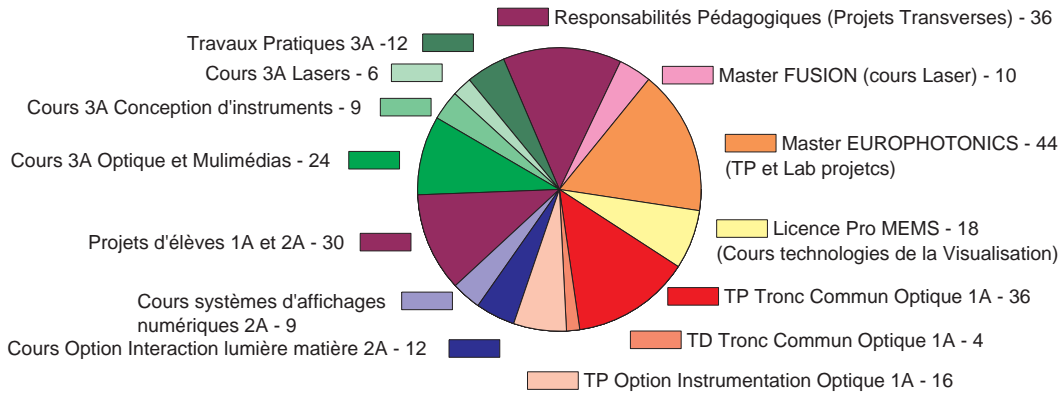


FIG. 5.1 – Répartition de mes services d'enseignement en 2010-2011.

mentation Optique' qui a pour but de faire réaliser aux élèves des expériences en laboratoire sur des applications de l'optique et des lasers, en utilisant du matériel de pointe. Les TP qui ont été mis en place à cet effet mettent en avant l'aspect transverse de la discipline : Interférométrie de Speckle pour la mesure de déformations mécaniques, spectroscopie de plasma induit par laser (LIBS) pour l'identification d'éléments chimiques, microscopies optiques pour la biologie, usinage laser, réalisation d'une cellule solaire photovoltaïque. Devant le succès auprès des élèves de cette option, nous allons proposer en 2011-2012 de nouveaux TP sur d'autres thèmes pour accueillir plus d'élèves. En deuxième année j'interviens dans des cours d'option : interaction lumière/matière (effets physiques et applications) et systèmes d'affichages numériques (introduction au cours plus complet de 3ème année). En troisième année je participe au parcours d'approfondissement optique qui est proposé à nos élèves. Mon domaine principal est 'l'Optique et les Multimédias' qui regroupe les sciences et technologies de la visualisation (perception

visuelle, écrans plats de type LCD, OLED, plasma, e-ink, 3D...colorimétrie et photométrie appliquée aux écrans). Je participe aussi à des cours et TP sur les lasers et la conception d'instruments. Je m'occupe également de cours dans lesquels je n'interviens pas mais qui me permettent de faire venir des intervenants extérieurs à l'école, pour offrir une autre perspective aux élèves : J.C. Antona et S. Bigo d'Alcatel-Lucent (Télécommunications optiques), B. LeGarrec du CEA (production d'énergie par laser) et G. Pauliat de l'Institut d'Optique (Mémoires holographiques).

Outre ces enseignements une part significative de mon activité est consacrée chaque année à l'encadrement d'un ou plusieurs groupes d'élèves dans le cadre des Projets Transverses. Ces projets ont pour objectif de faire travailler un groupe d'élèves (5 à 7) sur un sujet proposé par un industriel ou une entité extérieure à l'école et correspondant à un besoin réel. Il s'agit pour les élèves de mettre en oeuvre leurs connaissances théoriques (dans le domaine scientifique et dans celui de la gestion de projet) pour aboutir à un rendu auprès du 'client' qui peut être : une étude de faisabilité, une maquette, un dimensionnement, un prototype...Ils se déroulent sur environ 120h, en première et deuxième année. Les sujets que j'ai encadrés depuis mon entrée à l'ECM sont par exemple :

- *Pilotage de miroir actifs pour synchrotrons*, société SESO (J.F. Carré), 2005-2006. Le but était de calculer, à partir des mouvements élémentaires observés sur le miroir que l'on calibre, la matrice d'interaction permettant de corriger les défauts de polissage et de donner toute forme voulue par le scientifique.
- *Mise en forme de faisceaux pour système Free Space Optics*, société Shaktiware (F. Chazalet), 2005-2006. L'étude consistait à mettre en forme les faisceaux au moyen d'optiques diffractives, à étudier et réaliser des améliorations pour augmenter les performances du système de télécommunication développé par la société.
- *Système motorisé de projection de ligne laser*, Light Technologies (P. Huguet Chanteaume), 2006-2007. Il s'agissait de définir et réaliser un prototype qui permet de projeter une ligne laser sur le sol, visible en plein jour, et déplaçable grâce à un système motorisé (système destiné à être commercialisé dans le milieu du golf).
- *Développement d'une méthode de mesure optique des déformations su-*

*bies par les matériaux de gainage des céramiques nucléaires lors de transitoires en température*, CEA Cadarache (Y. Pontillon), 2008-2009. Les travaux ont permis d'étudier la faisabilité d'une mesure sans contact des déformations résultant de transitoires thermiques sur des crayons de combustible.

- *Développement d'un système de mesure temps réel des déformations subies par des crayons de combustibles nucléaires lors de conditions accidentelles*, CEA Cadarache (Y. Pontillon), 2010-2011. Suite du projet précédent ayant permis de réaliser une maquette du dispositif à l'ECM.
- *Développement d'un système de mesure temps réel des déformations subies par des crayons de combustibles nucléaires lors de conditions accidentelles 2*, CEA Cadarache (Y. Pontillon), 2011-2012. Suite des 2 projets précédents ayant pour objectif de livrer un système finalisé au 'client'.
- *Expérience analytique simulant le gradient thermique subi par une pastille combustible en transitoire thermique : Faisabilité d'une mesure par thermographie IR*, CEA Cadarache (Y. Pontillon), 2011-2012. Dans le même contexte que les 3 sujets précédents, il s'agit cette fois ci de développer un système permettant la mesure en temps réel et sans contact sur la gaine des crayons de combustible.

Depuis l'année scolaire 2009-2010 j'assume la responsabilité et la coordination de l'ensemble des Projets Transverses à l'ECM. Le travail consiste à démarcher pour recueillir de nouveaux sujets, informer les élèves et les enseignants, gérer la distribution et le choix des sujets, assurer l'interface entre les élèves et l'administration pour les commandes, missions et mises à disposition de matériel et de locaux, évaluer le travail au travers de rapports et de soutenances...Il s'agit d'un travail très prenant et comprenant une grosse charge de travail administratif (une quarantaine de projets en même temps, plus de 200 élèves et une quarantaine d'enseignants participant) mais qui donne beaucoup de satisfaction lorsque les élèves aboutissent à quelque chose d'utile pour le 'client'.

## **Responsabilités pédagogiques au sein de l'ECM**

- Depuis 2010, responsable des Projets Transverses (Travail en groupes d'élèves sur la 1ère et 2ème année sur des sujets proposés par des indus-

- triels. Environ 40 projets/an, 230 élèves, 40 enseignants participants).
- Membre du comité de pilotage des Relations Internationales. En charge des relations avec les pays nordiques (Danemark, Norvège, Suède).
  - Responsable de l'Unité d'Enseignement '*Ingénierie et Instrumentation Optique*', Option de 1<sup>ère</sup> année, 24h. Travaux pratiques en laboratoire de recherche (Institut Fresnel).
  - Responsable de l'Unité d'Enseignement '*Technologies de l'Information et de la Communication*', 3<sup>ème</sup> année, 50h. Télécommunications Optiques (intervenants d'Alcatel-Lucent), Sciences et Technologies de la Visualisation, Mémoires Optiques, Cryptographie Quantique.

## **Master "Sciences de la Fusion"**

Depuis 2007 je participe au Master Sciences de la Fusion ([www.sciences-fusion.fr](http://www.sciences-fusion.fr)) auquel est associée l'Ecole Centrale Marseille. J'interviens en M2 dans la partie "Physique et Technologie de la Fusion" sous forme de cours (6h) et de TP (8h) dans le domaine des lasers et des diagnostics optiques pour les plasmas de fusion. Je suis responsable de l'Unité d'Enseignement "Sources de puissance : du laser à la HF" (36h).

## **Master "Europhotonics"**

Depuis 2010 je suis impliqué dans le Master Erasmus Mundus "Europhotonics" dans lequel j'effectue des TP sur les fondamentaux de l'optique à des élèves internationaux de niveau M1 (32h).

## **Licence professionnelle "MEMS"**

J'interviens en Licence Professionnelle MicroElectronique et MicroSystèmes (MEMS), parcours "Optoélectronique", depuis 2006 (<http://iutmp.u-3mrs.fr/>) : 6h de cours et 9h de TP sur la visualisation et les écrans plats.

## **Formation Continue**

En complément des enseignements décrits précédemment j'assure chaque année quelques heures de formation continue : formation sur la sécurité laser



au personnel de l'Université Paul Cézanne et intervention dans des formations de la MRCT du CNRS, "Optique pour la biologie" et "Endommagement laser des composants optiques".

## 5.6 Publications et production scientifique

### 5.6.1 Articles dans des revues internationales avec comité de lecture

1. Vauselle A., Pontillon Y., Gallais L., '*Feasibility studies of speckle interferometry to measure deformations of nuclear fuel cladding*', accepté pour publication dans **Nuclear technology**.
2. Demésy G., Gallais L., Commandré M., '*Tridimensionnal multi-physics model for the study of photo-induced thermal effects phenomena in arbitrary nanostructures*', **Journal of the European Physical Society - Rapid Publications** 6, 2011.
3. Cormont P., Gallais L., Lamaignère L., Rullier J.L., Combis P., Hebert D., '*Impact of two CO<sub>2</sub> laser heatings for damage repairing on fused silica surface*', **Optics Express** 18, 2010.
4. Melninkaitis A., Tolenis T., Mazule L., Mirauskas J., Sirutkaitis V., Mangote B., Fu X., Zerrad M., Gallais L., Commandré, M., Kicas S., Drazdys R., '*Characterization of zirconia-silica and niobia-silica mixture coatings produced by ion beam sputtering*', **Applied Optics** 50, 2011.
5. Gallais L., Mangote B., Zerrad M., Commandré M., Melninkaitis A., Mirauskas J., Jeskevic M., Sirutkaitis V., '*Laser induced damage of hafnia coatings as a function of pulse duration in the femto to nanosecond range*', **Applied Optics** 50, 2011.
6. Gallais L., Mangote B., Commandré M., Melninkaitis A., Mirauskas J., Jeskevic M., Sirutkaitis V., '*Transient interference implications on the subpicosecond laser damage of multidiellectrics*', **Applied Physics Letters** 97, 2010.
7. Gallais L., Cormont P. Rullier J.L., '*Investigation of stress induced by CO<sub>2</sub> laser processing of fused silica optics for laser damage growth mitigation*', **Optics Express** 17, 2009.

8. Bien-Aimé K., Belin C., Gallais L., Grua P., Fargin E., Néauport J., Tovenca-Pecault I., '*Impact of storage induced outgassing organic contamination on laser induced damage of silica optics at 351 nm*', **Optics Express** 17, 2009.
9. Palmier S., Gallais L., Commandré M., Cormont P., Couchinoux R., Lamaignère L., Rullier J.L., Legros P., '*Optimization of a laser mitigation process in damaged fused silica*', **Applied Surface Science** 255, 2009.
10. Ciapponi A., Wagner F., Palmier S., Natoli J.-Y., Gallais L., '*Study of luminescent defects in hafnia thin films made with different deposition techniques*', **Journal of Luminescence** 129, 2009.
11. Capoulade J., Gallais L., Natoli J.-Y., Commandré M., '*Multiscale analysis of the laser-induced damage threshold in optical coatings*', **Applied Optics** 47, 2008.
12. Gallais L., Capoulade J., Natoli J.-Y., Commandré M., Cathelinaud M., Koc C., Lequime M., '*Laser damage resistance of hafnia thin films deposited by electron beam deposition, reactive low voltage ion plating, and dual ion beam sputtering*', **Applied Optics** 47, 2008.
13. Gallais L., Capoulade J., Natoli J.-Y., Commandré M., '*Investigation of nanodefects properties in optical coatings by coupling measured and simulated laser damage statistics*', **Journal of Applied Physics** 104, 2008.
14. Commandré M., Natoli J.-Y., Gallais L., '*Photothermal microscopy for studying the role of nano-sized absorbing precursors in laser-induced damage of optical materials*', **European Physical Journal Special Topics** 153, 2008.
15. Gallais L., Capoulade J., Wagner F., Natoli J.-Y., Commandré M., '*Analysis of material modifications induced during laser damage in SiO<sub>2</sub> thin films*', **Optics Communications** 272, 2007.
16. Krol H., Gallais L., Commandré M., Grezes-Besset C., Torricini D., Lagier G., '*Influence of polishing and cleaning on the laser-induced damage threshold of substrates and coatings at 1064 nm*', **Optical Engineering** 46, 2007.

17. Gallais L., Krol H., Natoli J.-Y., Commandré M., Cathelinaud M., Rous-  
sel L., Lequime M., Amra C., '*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** 515, 2007.
18. Gallais L., Commandré M., '*Simultaneous absorption, scattering, and lu-  
minescence mappings for the characterization of optical coatings and sur-  
faces*', **Applied Optics** 45, 2006.
19. Gallais L., Commandré M., '*Photothermal deflection in multilayer coa-  
tings : modeling and experiment*', **Applied Optics** 44, 2005.
20. Krol H., Gallais L., Grezes-Besset C., Natoli J.-Y., Commandré M., '*Investigation  
of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing*', **Op-  
tics Communications** 256, 2005.
21. Bonneau F., Combis P., Rullier J.-L., Vierne J., Bertussi B., Comman-  
dré M., Gallais L., Natoli J.-Y., Bertron I., Malaise F., Donohue J.T.,  
'*Numerical simulations for description of UV laser interaction with gold  
nanoparticles embedded in silica*', **Applied Physics B** 78, 2004.
22. Gallais L., Voarino P., Amra C., '*Optical measurement of size and com-  
plex index of laser-damage precursors : the inverse problem*', **Journal  
of the Optical Society of America B** 21, 2004.
23. Gallais L., Natoli J.-Y., '*Optimized metrology for laser-damage measure-  
ment : application to multiparameter study* ', **Applied Optics** 42, 2003.
24. Natoli J.-Y., Gallais L., Bertussi B., During A., Commandré M., Rullier  
J.-L., Bonneau F., Combis P., '*Localized pulsed laser interaction with  
submicronic gold particles embedded in silica : a method for investigating  
laser damage initiation*', **Optics Express** 11, 2003.
25. Bonneau F., Combis P., Rullier J.-L., Vierne J., Pellin M., Savina M.,  
Broyer M., Cottencin E., Tuailon J., Pellarin M., Gallais L., Natoli J.-  
Y., Perra M., Bercegol H., Lamaignère L., Loiseau M., Donohue J.T.,  
'*Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in si-  
lica*', **Applied Physics B** 75, 2002.
26. Gallais L., Natoli J.-Y., Amra C., '*Statistical study of single and multiple  
pulse laser-induced damage in glasses*', **Optics Express** 10, 2002.

27. Natoli J.-Y., Gallais L., Akhouayri H., Amra C., '*Laser-induced damage of materials in bulk, thin-film, and liquid forms*', **Applied Optics** 41, 2002.

### 5.6.2 Articles soumis

1. Mangote B., Gallais L., Commandré M., Mende M., Jensen L., Ehlers H., Ristau D., Melnikaitis A., Sirutkaitis V., Kicas S., Tolenis T., Drazdysc R. '*Sub-picosecond laser damage resistance of oxide and mixture oxide optical coatings*', soumis à **Optics Letters** (octobre 2011).
2. Mangote B., Gallais L., Zerrad M., Lemarchand F., Gao L.H., Commandré M., Lequime M., '*A femto / picosecond laser damage test facility dedicated to the study of optical thin films*', soumis à **Review of Scientific Instruments** (septembre 2011).
3. Robin L., Combis P., Cormont P., Gallais L., Hebert D., Mainfray C., Rullier J.L., '*Infrared thermometry and interferential microscopy for analysis of crater obtained by CO<sub>2</sub> laser at the surface of fused silica*', soumis à **Journal of Applied Physics** (aout 2011).

### 5.6.3 Brevets

1. Cormont P., Gallais L., Rullier J.L., '*Procédé de traitement correctif d'un défaut sur la surface d'un composant optique pour laser de puissance*', brevet n° 09 56443, 2009.
2. Néauport J., Bonod N., Gallais L., Lavastre E., '*Dispositif optique de diffraction en réflexion comportant une couche de mélange diélectrique*', brevet déposé le 23 septembre 2010 (ref. : SP38533).

### 5.6.4 Article dans une revue nationale avec comité de lecture

Gallais L., '*métrie de l'endommagement laser*', **Techniques de l'Ingénieur**, dossier n° R6738, 2010.

### 5.6.5 Communications invitées

1. Gallais L., '*Endommagement des couches minces optiques sous flux laser intense*', **Journée Thématique Couches Minces Optiques**, Palaiseau, 2011.
2. Gallais L., '*Femto to nanosecond laser-induced damage in hafnia coatings*', **Laserlab User meeting**, Pise (Italie), 2011.
3. Séminaires invités au Laser Research Center (Vilnius, Lituanie), Laser Zentrum Hannover (Allemagne), CEA (centre DAM - Ile de France).

### 5.6.6 Communications avec actes dans des conférences internationales

"o" désigne la personne ayant effectué une présentation orale, "p" un poster et "i" indique une conférence invitée.

1. Cormont P.<sup>p</sup>, Robin L., Combis P., Gallais L., Hebert D., Rullier J.L., '*Characterization of CO<sub>2</sub> laser-based damage mitigation of SiO<sub>2</sub> surfaces using infrared thermometry and microscopy*', **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2011.
2. Jupé M.<sup>o</sup>, Mende M., Ristau D., Mangote B., Gallais L., '*Measurement and Calculation of ternary Oxide Mixtures for Ultra Short Pulse Laser Thin Film Optics*', **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2011.
3. Mangote B.<sup>o</sup>, Fu X., Gallais L., Zerrad M., Commandré M., Gao L.H., Lemarchand F., Lequime M., Melninkaitis A., Mirauskas J., Jeskevic M., Sirutkaitis V., Mende M., Jensen L., Ehlers H., Ristau D., '*Study of the laser matter interaction in femtosecond regime. Application to the analysis of the laser damage phenomena in optical thin films*', **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films IV**, 2011.
4. Commandré M., Demésy G., Fu X., Gallais L.<sup>o</sup>, '*Three-dimensional multiphysical model for the study of photo-induced thermal effects in laser damage phenomena*', Proc. SPIE vol. 7842, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2010.

5. Melninkaitis A.<sup>o</sup>, Tolenis T., Mazule L., Mirauskas J., Sirutkaitis V., Mangote B., Fu X., Zerrad M., Gallais L., Commandre M., Kicas S., Drazdys R., '*Complex study of zirconia-silica and niobia-silica composite coatings produced by ion beam sputtering*', Proc. SPIE vol. 7842, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2010.
6. Mangote B., Gallais L.<sup>p</sup>, Melninkaitis A., Mirauskas J., Zerrad M., Jeskevic M., Sirutkaitis V., Commandre M., '*Investigation of laser damage in single layer coatings with pulse durations from 45fs to 24ps*', Proc. SPIE 7842, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2010.
7. Cormont P., Gallais L., Lamaignère L., Donval T., Rullier J.L., '*The effect of CO<sub>2</sub> laser annealing on residual stress and on laser damage resistance for fused silica optics*', Proc. SPIE 7842, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2010.
8. Natoli J.Y.<sup>o</sup>, Wagner F., Ciapponi A., Capoulade J., Gallais L., Commandré M., '*Multiscale analysis : a way to investigate laser damage precursors in materials for high power applications at nanosecond pulse duration*', Proc. SPIE 7842, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2010.
9. Gallais L.<sup>p</sup>, Mangote B., Zerrad M., Commandre M., Melninkaitis A., Mirauskas J., Jeskevic M., Sirutkaitis V., '*Laser Induced Damage of Hafnia Coatings as a Function of Pulse Duration in the Femto to Picosecond Regime*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2010.
10. Mangote B.<sup>p</sup>, Lemarchand F., Zerrad M., Gallais L., Commandre M., Lequime M., '*Femtosecond Laser Processing of Optical Thin Films : Experimental Tools and Results*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2010.
11. Melninkaitis A., Mirauskas J., Jeskevic M., Sirutkaitis V., Mangote B., Fu X., Zerrad M., Gallais L.<sup>p</sup>, Commandre M., Tolenis T., Kicas S., Drazdys R., '*Optical Resistance of Ion Beam Sputtered Zirconia/Silica and Niobia/Silica Mixture Coatings in Femtosecond Regime*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2010.
12. Bien-Aimé K.<sup>p</sup>, Pereira A., Belin C., Gallais L., Grua P., Toven-Pecault

- I., Néauport J., Fargin E, '*Impact of outgassing organic contamination on laser induced damage of optics*', Proc. SPIE Vol. 7504, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2009.
13. Gallais L.<sup>p</sup>, Cormont P., Rullier J.-L, '*Birefringence and residual stress induced by CO<sub>2</sub> laser mitigation of damage growth in fused silica*', Proc. SPIE Vol. 7504, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2009.
  14. Mangote B., Gallais L., Commandre M.<sup>o</sup>, Zerrad M., Natoli J.-Y., Lequime M., '*Subpicosecond pulse laser damage behavior of dielectric thin films prepared by different techniques*', Proc. SPIE Vol. 7504, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2009.
  15. Gallais L.<sup>o</sup>, Capoulade J., Natoli J.Y., Commandré M., '*Theoretical and experimental analysis of the laser irradiation parameters influence on the LIDT of optical coatings*', Proc. SPIE Vol. 7101, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films III**, 2008.
  16. Natoli J.Y.<sup>i</sup>, Wagner F., Ciapponi A., Palmier S., Gallais L., Commandré M., Proc. SPIE Vol. 7101, '*Non-destructive evaluation on optical components for high power density applications*', **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films III**, 2008.
  17. Cormont P.<sup>o</sup>, Palmier S., Bertussi B., Courchinoux R., Gaborit G., Gallais L., Lamaignère L., Legros P., Rullier J.L., Bercegol H., '*Characterizations of UV-laser damage on fused silica surfaces*', **Optical System Design - Optical Fabrication, Testing, and Metrology III**, 2008.
  18. Wagner F.<sup>o</sup>, Hildenbrand A., Gallais L., Akhouayri H., Commandré M., Natoli J.Y., '*Statistical interpretation of S-on-1 data and the damage initiation mechanism*', Proc. SPIE Vol. 7132, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2008.
  19. Gallais L.<sup>p</sup>, Capoulade J., Ciapponi A., Wagner F., Natoli J.-Y., Commandre M., '*Analysis of Material Modifications in Laser-Damaged HfO<sub>2</sub> Thin Films*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2007.
  20. Gallais L.<sup>p</sup>, Capoulade J., Natoli J.-Y., Commandre M., Cathelinaud M., Koc C., Lequime M., '*Laser Damage Resistance of HfO<sub>2</sub> Thin Films Deposited by Electron Beam Deposition, Reactive Low Voltage Ion Plating*

*and Dual Ion Beam Sputtering*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2007.

21. Grèzes-Besset C<sup>p</sup>., Valette N., Krol H., Torricini D., Chazallet F., Poupard J., Gallais L., Natoli J.Y., Commandré M., '*Multi-Wavelength Optical Monitoring for Infrared Complex Functions : Application to Process Improvement*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2007.
22. Gallais L.<sup>o</sup>, Capoulade J., Natoli J.Y., Commandre M., Cathelinaud M., Koc C., Lequime M., '*Laser damage of silica and hafnia thin films made with different deposition technologies*', Proc. SPIE Vol. 6720, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2008.
23. Commandré M.<sup>i</sup>, Natoli J.-Y., Gallais L., Wagner F., Amra C., '*Optical characterization in laser damage studies*', Proc. SPIE Vol. 6403, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2007.
24. Gallais L.<sup>o</sup>, Demesy G., Commandre M., Tisserand S., Gauthier S., Reversat F., Hubert M., '*Laser damage on diffractive optics*', Proc. SPIE Vol. 6403, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2007.
25. Krol H.<sup>o</sup>, Grezes-Besset C., Gallais L., Natoli J.-Y., Commandre M., '*Development of 2- $\mu$ m laser damage test facility*', Proc. SPIE Vol. 6403, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2007.
26. Gallais L.<sup>p</sup>, Capoulade J., Krol H., Wagner F., Natoli J.-Y., Commandre M., '*Luminescence, absorption and morphology studies of laser-damage sites in silica glasses and coatings*', Proc. SPIE Vol. 5991, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2006.
27. Krol H.<sup>p</sup>, Gallais L., Natoli J.-Y., Commandre M., Grezes-Besset C., '*Study of laser-induced damage at 2 microns on coated and uncoated ZnSe substrates*', Proc. SPIE Vol. 5991, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2006.
28. Krol H.<sup>o</sup>, Gallais L., Commandré M., Grèzes-Besset C., Torricini D., Lagier G., '*LIDT improvement of multilayer coatings by accurate analysis of fabrication steps*', Proc. SPIE vol. 5963, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films II**, 2005.



29. Gallais L., Krol H., Capoulade J., Cathelinaud M., Roussel L., Albrand G., Natoli J.-Y., Commandre M.<sup>o</sup>, Lequime M., Amra C., '*Comparative study of IR and UV laser damage resistance of silica thin films deposited by Electron Beam deposition, Ion Plating, Ion Assisted Deposition and Dual Ion Beam Sputtering*', Proc. SPIE vol. 5963, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films II**, 2005.
30. Krol H.<sup>p</sup>, Gallais L., Bertussi B., Natoli J.-Y., Grezes-Besset C., Commandre M., Amra C., Proc. SPIE Vol. 5647, '*Threshold distribution determination of laser-induced damage precursors in optical coatings and substrate*', **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2005.
31. Bertussi B.<sup>p</sup>, Natoli J.-Y., During A., Commandre M., Gallais L., Rullier J.-L., Bercegol H., Bouchut P., '*Correlation between laser-induced damage and nanosized absorbing defects*', Proc. SPIE Vol. 5250, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films**, 2004.
32. Gallais L.<sup>o</sup>, Voarino P., Natoli J.-Y., Amra C., '*Method for the optical measurement of size and complex index of laser damage precursors in optical components*', Proc. SPIE Vol. 5250, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films**, 2004.
33. Gallais L.<sup>p</sup>, Hinsch H., Lay M.-L., Commandre M., '*Photothermal facility for optical characterization of DUV materials*', Proc. SPIE Vol. 5250, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films**, 2004.
34. Gallais L., Voarino P., Natoli J.-Y., Commandre M., Amra C.<sup>o</sup>, '*Size and complex index of nanocenters : optical measurements*', Proc. SPIE Vol. 5273, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2004.
35. Natoli J.-Y.<sup>p</sup>, Bertussi B., Gallais L., Commandre M., Amra C., '*Multiple-pulse laser irradiation study in silica : comparison between 1064 and 355 nm*', Proc. SPIE Vol. 5250, **Optical System Design - Advances in Optical Thin Films**, 2004.
36. Gallais L.<sup>p</sup>, Commandré M., '*Simultaneous absorption, scattering and fluorescence mappings for defect characterization on UV optical coatings and substrates*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2004.

37. Bercegol H., Bonneau F.<sup>p</sup>, Bouchut P., Combis P., Gallais L., Lamaignère L., Natoli J.-Y., Rullier J.-L., Vierne J., '*Comparison of numerical simulations with experiment on generation of craters in silica by a laser*', Proc. SPIE Vol. 4932, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2003.
38. Bercegol H., Bonneau F.<sup>o</sup>, Combis P., Gallais L., Lamaignère L., Loiseau M., Natoli J.-Y., Pellin M., Perra M., Rullier J.-L., Savina M., '*Using a TOF mass spectrometer for studies of laser interaction with 3-nm diameter gold nanoparticles embedded in silica*', Proc. SPIE Vol. 4932, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2003.
39. Commandré M.<sup>i</sup>, Natoli J.-Y., Amra C., During A., Gallais L., '*Photo-thermal microscopy and laser damage in optical components*', Proc. SPIE Vol. 5188, **Advanced Characterization Techniques for Optics, Semiconductors, and Nanotechnologies**, 2003.
40. Gallais L., Amra C.<sup>p</sup>, Natoli J.-Y., '*Calculated and thermally measured laser damage in metallic thin films as a function of pulse duration*', Proc. SPIE Vol. 4932, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2003.
41. Natoli J.-Y.<sup>o</sup>, Gallais L., Bertussi B., Commandre M., Amra C., '*Toward an absolute measurement of LIDT*', Proc. SPIE Vol. 4932, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2003.
42. Bercegol H., Bonneau F., Bouchut P., Combis P., Donohue J., Gallais L., Lamaignere L.<sup>o</sup>, Le Diraison C., Loiseau M., Natoli J.-Y, Pelle C., Perra M., Rullier J., Vierne J., Ward H., '*Laser ablation of fused silica induced by gold nanoparticles : comparison of simulations and experiments at  $\lambda = 351 \text{ nm}$* ', Proc. SPIE Vol. 4760, **High-Power Laser Ablation IV**, 2002.
43. Natoli J.Y.<sup>o</sup>, Gallais L., Akhouayri H., Amra C., '*Quantitative study of laser damage probabilities in silica and calibrated liquids : comparison with theoretical prediction*', Proc. SPIE Vol. 4347, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2001.
44. Gallais L., Natoli J.Y.<sup>p</sup>, Akhouayri H., Amra C., '*CW and nanosecond laser irradiation on materials : elements of comparison of thermal effects*',

Proc. SPIE Vol. 4347, **Laser-Induced Damage in Optical Materials**, 2001.

45. Natoli J.-Y.<sup>p</sup>, Gallais L., Akhouayri H., Amra C., '*Laser-induced damage of materials in bulk, thin films and liquid forms*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2001.
46. Natoli J.-Y.<sup>p</sup>, Deumie C., Gallais L., Amra C., '*Deflection of angular scattering resulting from laser irradiation*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2001.
47. Gallais L., Akhouayri H., Natoli J.-Y., Amra C.<sup>p</sup>, '*Thermally-induced laser damage in interferential light absorbers*', **Optical Interference Coatings**, OSA Technical Digest Series, 2001.
48. Mahodaux C.<sup>o</sup>, Rigneault H., Gallais L., Gatto A., Moretti P., '*Stress in dielectric thin films : evolution with annealing and ion implantation*', Proc. SPIE Vol. 3738, **Advances in Optical Interference Coatings**, 1999.

### 5.6.7 Communications sans actes dans des conférences internationales

1. Melninkaitis A.<sup>p</sup>, Mirauskas J., Jeskevic M., Sirutkaitis V., Mangote B., Fu X., Zerrad M., Gallais L., Commandre M., Tolenis T., Kicas S., Drazdys R., '*Optical Resistance of Ion Beam Sputtered Zirconia/Silica and Niobia/Silica Mixture Coatings in Femtosecond Regime*', **Science and society in modern Europe**, 2010.
2. Ying W., Gallais L., Yueguang Z., Natoli J.Y.<sup>o</sup>, Commandré M., Xu L., '*Comparative study of laser-induced damage in mid-infrared thin film coatings used for OPO applications*', **Frontiers of Optical Coatings Asia**, 2009.
3. Natoli J.-Y.<sup>o</sup>, Wagner F., Ciapponi A., Gallais L., Commandre M., '*Non destructive and destructive investigations to study laser damage initiation in optical materials*', **Frontiers of Optical Coatings Asia**, 2009.
4. Vauselle A.<sup>o</sup>, Pontillon Y., Gallais L., HotLab 2009 (**Prix de la meilleure présentation**).

5. Ciapponi A., Palmier S., Wagner F., Natoli J.-Y., Gallais L., '*Study of luminescent defects in hafnia thin films made with different deposition techniques*', **15th international conference on luminescence and optical spectroscopy of condensed matter**, 2008.
6. Commandre M.<sup>i</sup>, Natoli J.-Y., Gallais L., '*Photothermal microscopy for studying the role of nano-sized absorbing precursors in laser-induced damage of optical materials*', **14th International Conference on Photoacoustic and Photothermal Phenomena**, 2007.
7. Gallais L.<sup>p</sup>, Demesy G., Commandré M., Tisserand S., '*Laser damage studies of a phase mirror for laser beam shaping*', **European Optical Society Annual Meeting**, 2006.
8. Gallais L.<sup>o</sup>, Natoli J.-Y., '*Optimized metrology for laser damage measurements*', **Conference on Lasers and Electro-Optics**, 2002.
9. Natoli J.-Y.<sup>o</sup>, Gallais L., Amra C., '*Detection of nano-defects in different glasses for bulk and surfaces using laser-damage investigation*', **Glass Odyssey**, 2002.

### 5.6.8 Communications dans des conférences nationales

1. Mangote B.<sup>p</sup>, Gallais L., Zerrad M., Commandre M., Gao L.H., Lemarchand F., Lequime M., '*Etude de l'interaction laser matière en régime femtoseconde - Application à l'analyse des phénomènes d'endommagement laser dans les couches minces optiques*', **Journée Thématique Couches Minces Optiques**, 2011.
2. Fu X.<sup>p</sup>, Mangote B., Zerrad M., Gallais L., Commandre M., Melninkaitis A., Tolenis T., Mazule L., Mirauskas J., Sirutkaitis V., Kicas S., Drazdys R., Mende M., Jensen L., Ehlers H., Ristau D., '*Caractérisation de mixtures préparées par ion-beam sputtering*', **Journée Thématique Couches Minces Optiques**, 2011.
3. Gallais L.<sup>i</sup>, Journée Thématique CMDO+ : Endommagement laser : processus mis en jeu, techniques de caractérisation et modèles, 2010.
4. Gallais L.<sup>p</sup>, Wagner F., Natoli J.-Y., Commandre M., Ciapponi A., Mangote B., Ying W., Demesy G., '*Etude de l'endommagement laser des couches minces optiques*', **Horizons de l'Optique**, 2009.

5. Wagner F.<sup>i</sup>, Gallais L., Hildenbrand A., Natoli J.-Y., Commandré M., '*Endommagement laser de cristaux et couches minces optiques*', **Journées Nationales des Cristaux pour l'Optique**, 2009.
6. Krol H.<sup>p</sup>, Grezes-Besset C., Gallais L., Natoli J.-Y., Commandré M., '*Etude de l'endommagement laser dans les composants optiques pour le domaine infrarouge*', **Journée Thématique Couches Minces Optiques**, 2006.
7. Krol H.<sup>o</sup>, Gallais L., Natoli J.-Y., Commandre M., Grezes-Besset C., '*Etude et caractérisation de l'endommagement laser dans les composants optiques*', **Conférence Mesures Optiques pour l'Industrie**, 2005.
8. Wagner F.<sup>o</sup>, Gallais L., Natoli J.-Y., Commandre M., '*Spectroscopie de luminescence pour l'analyse des verres soumis à des flux lumineux intenses*', **Conférence Mesures Optiques pour l'Industrie**, 2005.
9. Akhouayri H., Fossati C., Natoli J.-Y., Amra C., Commandre M., During A., Gallais L., '*Thermique photo-induite, endommagement laser et optique non-linéaire dans les couches minces optiques*', **Journée Couches Minces Optiques**, 2002.
10. Gallais L.<sup>p</sup>, Natoli J.Y., Perra M., Amra C., '*Etude des nanosites pré-curseurs de l'endommagement laser dans la silice*', **Optix**, 2001.

### 5.6.9 Rapports de contrat de recherche

1. Gallais L., '*Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Période 2008-2009*' et '*Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Période 2009-2010*', 51 et 48 pages, Rapports de contrat entre l'Institut Fresnel et le CEA-CESTA, 2009 et 2010.
2. Palmier S. et Gallais L., '*Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Phase 2*', Rapport de contrat entre l'Institut Fresnel et le CEA-CESTA, ref CEA LMJ-10711-ZWB-2NT-MOS08657A, 2008.
3. Gallais L., '*Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Phase 1*', 51 pages, Rapport de contrat entre l'Institut Fresnel et le CEA-CESTA, ref CEA LMJ-10711-ZWB-2NT-MOS08657A, 2007.

4. Gallais L., '*Rapport technique sur les procédés de stabilisation laser pour dommages de grandes dimensions développés au LLNL*', Rapport de contrat entre l'Institut Fresnel et le CEA-CESTA, 2005.

# Bibliographie

- [1] M. Hercher, “Laser-induced damage in transparent media”, Journal of the Optical Society of America **54** 563 (1964).
- [2] C. Giuliano, “Laser-induced damage to transparent dielectric materials”, Journal of the Optical Society of America **54** 1400 (1964).
- [3] Damage in Laser Glass, ASTM STP 469 (1969), Damage in Laser Materials, NBS SP 341 (1970), NBS SP 356 (1971), Laser-Induced Damage in Optical Materials (1972 - 2008) : NBS SP 372 (1972), NBS SP 387 (1973), NBS SP 414 (1974), NBS SP 435 (1975), NBS SP 462 (1976), NBS SP 509 (1977), NBS SP 541 (1978), Index of Papers 1969 - 1978 (1979), NBS SP 568 (1979), NBS SP 620 (1981), NBS SP 638 (1983), NBS SP 669 (1984), NBS SP 688 (1985), NBS SP 727 (1986), NBS SP 746 (1987), NBS SP 752 (1987), NBS SP 756 (1988), NBS SP 775 (1989), NBS SP 801, ASTM STP 1117, and SPIE Vol. 1438 (1989), ASTM STP 1141, and SPIE Vol. 1441 (1991), SPIE Vol. 1624 (1992), SPIE Vol. 1848 (1993), SPIE Vol. 2114 (1994), 25 Years Index : 1969 - 1993, SPIE Vol. 2162 (1994), SPIE Vol. 2428 (1995), SPIE Vol. 2714 (1995), SPIE Vol. 2966 (1997), SPIE Vol. 3244 (1998), SPIE Vol. 3578 (1999), SPIE Vol. 3902 (2000), SPIE Vol. 4374 (2001), SPIE Vol. 4679 (2002), SPIE Vol. 4932 (2003), SPIE Vol. 5273 (2004), SPIE Vol. 5647 (2005), SPIE Vol. 5991 (2006), SPIE Vol. 6403 (2007), SPIE Vol. 7132 (2008), SPIE Vol. 7504 (2009).
- [4] M. Kozlowski, *Thin films for optical systems* (Marcel Dekker, 2003), chap. Damage-resistant laser coatings.
- [5] C. Stolz and F. Génin, *Optical Interference Coatings* (Springer, 2003), chap. Laser-resistant coatings.

- 
- [6] R. Wood, *Laser damage in optical materials*, 2 edn. (Taylor & Francis, Inc., 2003).
- [7] D. Ristau, M. Jupé, and K. Starke, “Laser Damage Thresholds of Optical Coatings”, *Thin Solid Films* **518** 1607 (2009).
- [8] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squire, and G. Mourou, “Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO<sub>2</sub> with pulse widths from 7ns to 150fs”, *Applied Physics Letters* **64** 3071 (1994).
- [9] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, “Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics”, *Physical Review B* **53** 1749 (1996).
- [10] D. Milam, R. A. Bradbury, and M. Bass, “Laser damage threshold for dielectric coatings as determined by inclusions”, *Applied Physics Letters* **23** 654 (1973).
- [11] L. Gallais, H. Krol, J.-Y. Natoli, M. Commandré, M. Cathelinaud, L. Roussel, M. Lequime, and 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* **515** 3830 (2007).
- [12] L. Gallais, J. Capoulade, J.-Y. Natoli, M. Commandré, M. Cathelinaud, C. Koc, and 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* **47** C107 (2008).
- [13] H. Krol, *Etude de l'endommagement laser dans les composants optiques pour le domaine infrarouge*, Ph.D. thesis, Université Paul Cézanne (2006).
- [14] L. Gallais, G. Demésy, M. Commandré, S. Tisserand, S. Gauthier, F. Reversat, and M. Hubert, “Laser damage on diffractive optics”, in *Proc. SPIE 6403* (2007), p. 640304.
- [15] W. Ying, L. Gallais, Z. Yueguang, J. Natoli, M. Commandré, and L. Xu, “Comparative study of laser induced damage in mid-infrared thin-film coatings used for OPO applications”, in *Frontiers of Optical Coatings* (2009).



- 
- [16] L. Gallais, B. Mangote, M. Commandré, A. Melninkaitis, J. Mirauskas, M. Jeskevic, and V. Sirutkaitis, “Transient interference implications on the subpicosecond laser damage of multielectrics”, *Applied Physics Letters* **97** 051112 (2010).
- [17] L. Gallais, B. Mangote, M. Zerrad, M. Commandré, A. Melninkaitis, J. Mirauskas, M. Jeskevic, and V. Sirutkaitis, “Laser induced damage of hafnia coatings as a function of pulse duration in the femto to nanosecond range”, *Applied Optics* **50** C178 (2011).
- [18] A. Melninkaitis, T. Tolenis, L. Mazule, J. Mirauskas, V. Sirutkaitis, B. Mangote, X. Fu, M. Zerrad, L. Gallais, M. Commandré, S. Kicas, and R. Drazdys, “Characterization of zirconia-silica and niobia-silica mixture coatings produced by ion beam sputtering”, *Applied Optics* **50** C188 (2011).
- [19] A. Hildenbrand, F. R. Wagner, H. Akhouayri, J. Natoli, M. Commandré, H. Theodore, and H. Albrecht, “Laser-induced damage investigation at 1064 nm in KTiOPO<sub>4</sub> crystals and its analogy with RbTiOPO<sub>4</sub>”, *Applied Optics* **48** 4263 (2009).
- [20] A. Ciapponi, F. R. Wagner, S. Palmier, J.-Y. Natoli, and L. Gallais, “Study of luminescent defects in hafnia thin films made with different deposition techniques”, *Journal of Luminescence* **129** 1786 (2009).
- [21] P. DeMange, C. W. Carr, H. B. Radousky, and S. G. Demos, “System for evaluation of laser-induced damage performance of optical materials for large aperture lasers”, *Review of Scientific Instruments* **75** 3298 (2004).
- [22] L. Lameignère, S. Bouillet, R. Courchinoux, T. Donval, M. Josse, J.-C. Poncetta, and H. Bercegol, “An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials”, *Review of Scientific Instruments* **78** 103105 (2007).
- [23] H. Krol, L. Gallais, C. Grèzes-Besset, J.-Y. Natoli, and M. Commandré, “Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing”, *Optics Communications* **256** 184 (2005).
- [24] H. Krol, C. Grèzes-Besset, L. Gallais, J. Natoli, and M. Commandré, “Study of laser-induced damage at 2 microns on coated and uncoated ZnSe substrates”, in *Proc. SPIE 6403* (2007), p. 40316.

- 
- [25] H. Krol, L. Gallais, M. Commandré, C. Grèzes-Besset, D. Torricini, and G. Lagier, “Influence of polishing and cleaning on the laser-induced damage threshold of substrates and coatings at 1064 nm”, *Optical Engineering* **46** 023402 (2007).
- [26] J. Capoulade, *Etude multi-échelle de l’initiation de l’endommagement laser en surface et dans le volume de matériaux optiques.*, Ph.D. thesis, Université Paul Cézanne (2008).
- [27] J. Capoulade, J. Natoli, B. Bertussi, M. Pommies, A. Dyan, D. Damiani, and H. Piombini, “Influence of the laser beam size on laser-induced damage in KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>”, in *Proc. SPIE 6403* (2007), p. R4031.
- [28] J. Capoulade, L. Gallais, J.-Y. Natoli, and M. Commandré, “Multiscale analysis of the laser-induced damage threshold in optical coatings”, *Applied Optics* **47** 5272 (2008).
- [29] A. C. Boccara, D. Fournier, W. Jackson, and N. M. Amer, “Sensitive photothermal deflection technique for measuring absorption in optically thin media”, *Optics Letters* **5** 377 (1980).
- [30] M. Commandré and E. Pelletier, “Measurement of absorption losses in TiO<sub>2</sub> films by a collinear photothermal deflection technique”, *Applied Optics* **29** 4276 (1990).
- [31] M. Commandré and P. Roche, “Characterization of optical coatings by photothermal deflection”, *Applied Optics* **35** 5021 (1996).
- [32] A. During, C. Fossati, and M. Commandré, “Photothermal deflection microscopy for imaging submicronic defects in optical materials”, *Optics Communications* **230** 279 (2004).
- [33] B. Bertussi, J. Natoli, and M. Commandré, “High-resolution photothermal microscope : a sensitive tool for the detection of isolated absorbing defects in optical coatings”, *Applied Optics* **45** 1410 (2006).
- [34] M. Commandré, J.-Y. Natoli, and L. Gallais, “Photothermal microscopy for studying the role of nano-sized absorbing precursors in laser-induced damage of optical materials”, *European Physical Journal* **143** 59 (2008).
- [35] L. Gallais and M. Commandré, “Simultaneous absorption, scattering, and luminescence mappings for the characterization of optical coatings and surfaces”, *Applied Optics* **45** 1416 (2006).

- 
- [36] L. Gallais and M. Commandré, “Photothermal deflection in multilayer coatings : modeling and experiment”, *Applied Optics* **44** 5230 (2005).
- [37] L. Gallais, J. Capoulade, F. Wagner, J. Natoli, and M. Commandré, “Analysis of material modifications induced during laser damage in SiO<sub>2</sub> thin films”, *Optics Communications* **272** 221 (2007).
- [38] K. Bien-Aimé, C. Belin, L. Gallais, P. Grua, E. Fargin, J. Néauport, and I. Tovenca-Pecault, “Impact of storage induced outgassing organic contamination on laser induced damage of silica optics at 351 nm”, *Optics Express* **17** 18703 (2009).
- [39] S. Papernov and 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* **92** 5720 (2002).
- [40] S. Papernov and A. W. Schmid, “Two mechanisms of crater formation in ultraviolet-pulsed-laser irradiated SiO<sub>2</sub> thin films with artificial defects”, *Journal of Applied Physics* **97** 114906 (2005).
- [41] S. Papernov and A. W. Schmid, “Testing asymmetry in plasma-ball growth seeded by a nanoscale absorbing defect embedded in a SiO<sub>2</sub> thin-film matrix subjected to UV pulsed-laser radiation”, *Journal of Applied Physics* **104** 063101 (2008).
- [42] F. Bonneau, P. Combis, J. Rullier, J. Vierne, M. Pellin, M. Savina, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuillon, M. Pellarin, L. Gallais, J.-Y. Natoli, M. Perra, H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, and J. Donohue, “Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica”, *Applied Physics B* **75** 803 (2002).
- [43] F. Bonneau, P. Combis, J. Rullier, J. Vierne, B. Bertussi, M. Commandré, L. Gallais, J.-Y. Natoli, I. Bertron, F. Malaise, and J. Donohue, “Numerical simulations for description of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica”, *Applied Physics B* **78** 447 (2004).
- [44] R. H. Picard, D. Milam, and R. A. Bradbury, “Statistical analysis of defect-caused laser damage in thin films”, *Applied Optics* **16** 1563 (1977).
- [45] S. R. Foltyn, “Spotsize effects in laser damage testing”, *Natl. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.* **669** 368 (1982).

- 
- [46] J. O. Porteus and S. C. Seitel, “Absolute onset of optical surface damage using distributed defect ensembles”, *Applied Optics* **23** 3796 (1984).
- [47] R. M. O’Connell, “Onset threshold analysis of defect-driven surface and bulk laser damage”, *Applied Optics* **31** 4143 (1992).
- [48] J.-Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra, “Laser-induced damage of materials in bulk, thin-film, and liquid forms”, *Applied Optics* **41** 3156 (2002).
- [49] L. Gallais, P. Voarino, and C. Amra, “Optical measurement of size and complex index of laser-damage precursors : the inverse problem”, *Journal of the Optical Society of America B* **21** 1073 (2004).
- [50] M. D. Feit and A. M. Rubenchik, “Implications of nanoabsorber initiators for damage probability curves, pulselength scaling and laser conditioning”, in *Proc. SPIE 5273* (2004), p. 74.
- [51] J. Trenholme, M. Feit, and A. Rubenchik, “Size-selection initiation model extended to include shape and random factors”, in *Proc. SPIE 5991* (2006), p. 59910X.
- [52] G. Duchateau and A. Dyan, “Coupling statistics and heat transfer to study laser-induced crystal damage by nanosecond pulses”, *Optics Express* **15** 4557 (2007).
- [53] A. Dyan, F. Enguehard, S. Lallich, H. Piombini, and G. Duchateau, “Scaling laws in laser-induced potassium dihydrogen phosphate crystal damage by nanosecond pulses at 3w”, *Journal of the Optical Society of America B* **25** 1087 (2008).
- [54] G. Duchateau, “Simple models for laser-induced damage and conditioning of potassium dihydrogen phosphate crystals by nanosecond pulses”, *Optics Express* **17** 10434 (2009).
- [55] U. Kreibig and M. Vollmer, *Optical properties of metal clusters* (Springer, 2005).
- [56] P. Voarino, *Lumière diffuse et microsphères multicouches : calculs et réalisations*, Ph.D. thesis, Université Aix-Marseille III (2005).
- [57] F. Bonneau, P. Combis, J.-L. Rullier, A. During, M. Commandré, J.-Y. Natoli, M. Pellin, M. Savina, E. Cottancin, and M. Pellarin, “Observation by photothermal microscopy of increased silica absorption in laser

- damage induced by gold nanoparticles”, Applied Physics Letters **83** 3855 (2003).
- [58] J.-Y. Natoli, L. Gallais, B. Bertussi, A. During, M. Commandré, J.-L. Rullier, F. Bonneau, and P. Combis, “Localized pulsed laser interaction with submicronic gold particles embedded in silica : a method for investigating laser damage initiation”, Optics Express **11** 824 (2003).
- [59] A. During, *Microscopie photothermique et endommagement laser*, Ph.D. thesis, Université Aix-Marseille III (2002).
- [60] B. Bertussi, *Etude des mécanismes initiateurs de l’endommagement laser dans les composants optiques : vers une amélioration de la tenue au flux*, Ph.D. thesis, Université Aix-Marseille III (2005).
- [61] M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, and I. L. Pokotilo, “Thermal explosion of absorbing inclusions as the mechanism of laser damage to insulator surfaces”, Soviet Journal of Quantum Electronics **20** 456 (1990).
- [62] P. Grua, J. P. Morreeuw, , H. Bercegol, G. Jonusauskas, and F. Vallée, “Electron kinetics and emission for metal nanoparticles exposed to intense laser pulses”, Physical Review B **68** 035424 (2003).
- [63] L. Gallais, J. Capoulade, J.-Y. Natoli, and M. Commandré, “Investigation of nanodefects properties in optical coatings by coupling measured and simulated laser damage statistics”, Journal of Applied Physics **104** 053120 (2008).
- [64] R. W. Hopper and D. P. Uhlmann, “Mechanism of inclusion damage in laser glass”, Journal of Applied Physics **41** 4023 (1970).
- [65] F. Y. Génin, A. Salleo, T. V. Pistor, and L. L. Chase, “Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces”, Journal of the Optical Society of America A **18** 2607 (2001).
- [66] J. Néauport, E. Lavastre, G. Razé, G. Dupuy, N. Bonod, M. Balas, J. de Villele, S. Flamand, S. Kaladgew, and F. Desserouer, “Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings”, Optics Express **15** 12508 (2007).
- [67] C. Stolz, S. Hafeman, and T. Pistor, “Light intensification modeling of coating inclusions irradiated at 351 and 1053 nm”, Applied Optics **47** C162 (2008).

- 
- [68] Y. Wang, Y. Zhang, X. Liu, W. Chen, and P. Gu, “Gaussian profile laser intensification by nodular defects in mid-infrared high reflectance coatings”, *Optics Communications* **278** 317 (2007).
- [69] G. Demésy, *Modélisation électromagnétique tri-dimensionnelle de réseaux complexes. Application au filtrage spectral dans les imageurs CMOS*, Ph.D. thesis, Université Aix-Marseille III (2009).
- [70] G. Demésy, L. Gallais, and M. Commandré, “Tridimensionnal multi-physics model for the study of photo-induced thermal effects phenomena in arbitrary structures”, *Journal of the European Physical Society - Rapid Publications* **6** (2011).
- [71] N. Blanchot, G. Behar, T. Berthier, E. Bignon, F. Boubault, C. Chappuis, H. Coic, C. Damiens-Dupont, J. Ebrardt, Y. Gautheron, P. Gilbert, O. Hartmann, E. Hugonnot, F. Laborde, D. Lebeaux, J. Luce, S. Montant, S. Noailles, J. Neauport, D. Raffestin, B. Remy, A. Roques, F. Sautarel, M. Sautet, C. Sauteret, and C. Rouyer, “Overview of PETAL, the multi-Petawatt project on the LIL facility”, *Plasma Physics and Controlled Fusion* **50** 124045 (2008).
- [72] E. Gerstner, “Extreme Light”, *Nature* **446** 16 (2007).
- [73] M. Dunne, “A high-power laser fusion facility for Europe”, *Nature Physics* **2** 2 (2006).
- [74] R. Szipocs, K. Ferencz, C. Spielmann, and F. Krausz, “Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers”, *Optics Letters* **19** 201 (1994).
- [75] M. D. Perry, R. D. Boyd, J. A. Britten, D. Decker, B. W. Shore, C. Shannon, and E. Shults, “High-efficiency multilayer dielectric diffraction gratings”, *Optics Letters* **20** 940 (1995).
- [76] V. Pervak, C. Teisset, A. Sugita, S. Naumov, F. Krausz, and A. Apolonski, “High-dispersive mirrors for femtosecond lasers”, *Optics Express* **16** 10220 (2008).
- [77] P. Dombi, P. Racz, M. Lenner, V. Pervak, and F. Krausz, “Dispersion management in femtosecond laser oscillators with highly dispersive mirrors”, *Optics Express* **17** 20598 (2009).

- 
- [78] S. Palmier, J. Neauport, N. Baclet, E. Lavastre, and G. Dupuy, “High reflection mirrors for pulse compression gratings”, *Optics Express* **17** 20430 (2009).
- [79] C. B. Schaffer, A. Brodeur, and E. Mazur, “Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses”, *Measurement Science and Technology* **12** 1784 (2001).
- [80] B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, and S. A. D. Von Der Linde, “Timescales in the response of materials to femtosecond laser excitation”, *Applied Physics A* **79** 767 (2004).
- [81] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, “Optical ablation by high-power short-pulse lasers”, *Journal of the Optical Society of America B* **13** 459 (1996).
- [82] W. Kautek, J. Kruger, M. Lenzner, S. Sartania, C. Spielmann, and F. Krausz, “Laser ablation of dielectrics with pulse durations between 20 fs and 3 ps”, *Applied Physics Letters* **69** 3146 (1994).
- [83] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou, “Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO<sub>2</sub> with pulse widths from 7 ns to 150 fs”, *Applied Physics Letters* **64** 3071 (1994).
- [84] N. Sanner, O. Uteza, B. Chimier, M. Sentis, P. Lassonde, F. Legare, and J. Kieffer, “Toward determinism in surface damaging of dielectrics using few-cycle laser pulses”, *Applied Physics Letters* **96** 071111 (2010).
- [85] J. Jasapara, A. V. V. Nampoothiri, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke, “Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films”, *Physical Review B* **63** 045117 (2001).
- [86] B. Mangote, L. Gallais, M. Zerrad, F. Lemarchand, L. H. Gao, M. Commandré, and M. Lequime, “A femto / picosecond laser damage test facility dedicated to the study of optical thin films”, *Soumis à Review of Scientific Instruments* (2011).
- [87] L. Gallais and J. Natoli, “Optimized metrology for laser damage measurements”, *Applied Optics* **42** 960 (2003).
- [88] I. Jovanovic, C. Brown, B. Wattellier, N. Nielsen, W. Molander, B. Stuart, D. Pennington, and C. P. J. Barty, “Precision short-pulse

- damage test station utilizing optical parametric chirped-pulse amplification”, *Review of Scientific Instruments* **75** 5193 (2004).
- [89] F. R. Wagner, A. Hildenbrand, J. Natoli, M. Commandré, H. Theodore, and H. Albrecht, “Laser damage resistance of RbTiOPO<sub>4</sub> : evidence of polarization dependent anisotropy”, *Optics Express* **48** 13849 (2007).
- [90] M. Mero, J. Liu, , W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke, “Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films”, *Physical Review B* **71** 115109 (2005).
- [91] N. Bloembergen, “Laser-induced electric breakdown in solids”, *Quantum Electronics* **10** 375 (1974).
- [92] T. Apostolova and Y. Hahn, “Modeling of laser-induced breakdown in dielectrics with subpicosecond pulses”, *Journal of Applied Physics* **88** 1024 (2000).
- [93] F. Quéré, S. Guizard, and P. Martin, “Time-resolved study of laser-induced breakdown in dielectrics”, *Europhysics Letters* **56** 138 (2001).
- [94] M. Jupé, L. Jensen, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, and D. Ristau, “Calculations and experimental demonstration of multi-photon absorption governing fs laser-induced damage in titania”, *Optics Express* **17** 12269 (2009).
- [95] G. Petite, P. Daguzan, S. Guizard, and P. Martin, “Conduction electrons in wide-bandgap oxides : a subpicosecond time-resolved optical study”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **107** 97 (1996).
- [96] F. Quéré, S. Guizard, P. Martin, G. Petite, O. Gobert, P. Meynadier, and M. Perdrix, “Ultrafast carrier dynamics in laser-excited materials : subpicosecond optical studies”, *Applied Physics B* **68** 459 (1999).
- [97] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, P. Martin, P. Audebert, J. Gauthier, J.-P. Geindre, and T. Wittman, “Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses”, *Physical Review E* **69** 026402 (2004).
- [98] T. Balciunas, A. Melninkaitis, G. Tamosauskas, and V. Sirutkaitis, “Time-resolved off-axis digital holography for characterization of ultrafast phenomena in water”, *Optics Letters* **33** 58 (2008).



- 
- [99] M. Mero, A. Sabbah, J. Zeller, and W. Rudolph, “Femtosecond dynamics of dielectric films in the pre-ablation regime”, *Applied Physics A* **81** 317 (2005).
- [100] T. Jia, H. Sun, X. Li, D. Feng, C. Li, S. Xu, R. Li, Z. Xu, and H. Kuroda, “The ultrafast excitation processes in femtosecond laser-induced damage in dielectric omnidirectional reflectors”, *Journal of Applied Physics* **100** 023103 (2006).
- [101] L. Keldysh, “Ionization in field of a strong electromagnetic wave”, *Soviet Physics JEPT* **20** 1307 (1965).
- [102] D. Zhang, Y. Huang, Z. Ni, S. Zhuang, J. Shao, and Z. Fan, “Preparation of high laser induced damage threshold antireflection film using interrupted ion assisted deposition”, *Optics Express* **15** 10753 (2007).
- [103] B. Rethfeld, “Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics”, *Physical Review B* **73** 035101 (2006).
- [104] J. Jasapara, M. Mero, and R. W., “Retrieval of the dielectric function of thin films from femtosecond pump-probe experiments”, *Applied Physics Letters* **80** 2367 (2002).
- [105] D. Milam, W. H. Lowdermilk, F. Rainer, J. E. Swain, C. K. Carniglia, and T. T. Hart, “Influence of deposition parameters on laser-damage threshold of silica-tantala AR coatings”, *Applied Optics* **21** 3689 (1982).
- [106] E. Hacker, H. Lauth, J. Meyer, P. Weissbrodt, R. Wolf, G. Zscherpe, and H. Heyer, “Structural influences on the laser damage resistance of optical oxide coatings for use at 1064 nm”, *Thin Solid Films* **192** 27 (1990).
- [107] M. D. G. M. C. F. M. R. P. L. P. M. Alvisi, G. D. Nunzio and L. Vasanelli, “Deposition of SiO<sub>2</sub> Films with High Laser Damage Thresholds by Ion-Assisted Electron-Beam Evaporation”, *Applied Optics* **38** 1237 (1999).
- [108] M. Alvisi, M. D. Giulio, S. Marrone, M. Perrone, M. Protopapa, A. Valentini, and L. Vasanelli, “HfO<sub>2</sub> films with high laser damage threshold”, *Thin Solid Films* **358** 250 (2000).
- [109] R. Thielsch, A. Gatto, J. Heber, and N. Kaiser, “A comparative study of the UV optical and structural properties of SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, and HfO<sub>2</sub>

- single layers deposited by reactive evaporation, ion-assisted deposition and plasma ion-assisted deposition”, *Thin Solid Films* **410** 86 (2002).
- [110] L. Gao, F. Lemarchand, and M. Lequime, “Comparison of different dispersion models for single layer optical thin film index determination”, *Thin Solid Films à paraître* (2011).
- [111] E. W. V. Stryland, M. J. Soileau, A. L. Smirl, and W. E. William, “Pulse width and focal volume dependence of laser-induced breakdown”, *Phys. Rev. B* **23** 2144 (1981).
- [112] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz, “Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics”, *Physical Review Letters* **18** 4076 (1999).
- [113] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou, “Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration”, *Physical Review Letters* **19** 3883 (1999).
- [114] R. Chow, S. Falabella, G. E. Loomis, F. Rainer, C. J. Stolz, and M. Kozlowski, “Reactive evaporation of low defect density hafnia”, *Applied Optics* **32** 5567 (1993).
- [115] P. André, L. Poupinet, and G. Ravel, “Evaporation and ion assisted deposition of HfO<sub>2</sub> coatings : some key points for high power applications”, *Journal of Vacuum Science and Technology* **18** 2372 (2000).
- [116] D. Zhang, S. Fan, Y. Zhao, W. Gao, J. Shao, R. Fan, Y. Wang, and Z. Fan, “High laser-induced damage threshold HfO<sub>2</sub> films prepared by ion-assisted electron beam evaporation”, *Applied Surface Science* **243** 232 (2005).
- [117] C. J. Stolz, M. D. Thomas, and A. J. Griffin, “BDS thin film damage competition”, in *Proc. SPIE 7132* (2009), p. 71320C.
- [118] J. B. Oliver, S. Papernov, A. W. Schmid, and J. C. Lambropoulos, “Optimization of laser-damage resistance of evaporated hafnia films at 351 nm”, in *Proc. SPIE 7132* (2009), p. 71320J.
- [119] C. J. Stolz, D. Ristau, M. Turowski, and H. Blaschke, “Thin Film Femtosecond Laser Damage Competition”, in *Proc. SPIE 7504* (2009), p. 75040S.

- 
- [120] B. J. Pond, J. I. DeBar, C. K. Carniglia, and T. Raj, “Stress reduction in ion beam sputtered mixed oxide films”, *Applied Optics* **28** 2800 (1989).
- [121] V. Janicki, D. Gabler, S. Wilbrandt, R. Leitel, O. Stenzel, N. Kaiser, M. Lappschies, B. Gortz, D. Ristau, C. Rickers, and M. Vergohl, “Deposition and spectral performance of an inhomogeneous broadband wide-angular antireflective coating”, *Applied Optics* **45** 7851 (2006).
- [122] C.-C. Lee, C.-J. Tang, and J.-Y. Wu, “Rugate filter made with composite thin films by ion-beam sputtering”, *Applied Optics* **45** 1333 (2006).
- [123] M. Jupe, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, and D. Ristau, “Applications of mixture oxide materials for fs optics”, in *Optical Interference Coatings* (2007).
- [124] D. Nguyen, L. A. Emmert, I. V. Cravetchi, M. Mero, W. Rudolph, M. Jupe, M. Lappschies, K. Starke, and D. Ristau, “ $\text{Ti}_x\text{Si}_{1-x}\text{O}_2$  optical coatings with tunable index and their response to intense subpicosecond laser pulse irradiation”, *Applied Physics Letters* **93** 261903 (2008).
- [125] J. Lambropoulos, T. Fang, P. Funkenbusch, S. Jacobs, M. Cumbo, and D. Golini, “Surface microroughness of optical glasses under deterministic microgrinding”, *Applied Optics* **35** 4438 (1996).
- [126] J. Néauport, P. Cormont, P. Legros, C. Ambard, and J. Destribats, “Imaging subsurface damage of grinded fused silica optics by confocal fluorescence microscopy”, *Optics Express* **17** 3543 (2009).
- [127] T. Kamimura, S. Akamatsu, M. Yamamoto, I. Yamato, H. Shiba, S. Motokoshi, T. Sakamoto, T. Jitsuno, T. Okamoto, and K. Yoshida, “Enhancement of surface-damage resistance by removing a subsurface damage in fused silica”, in *Proc. SPIE 5273* (2004).
- [128] J. Neauport, L. Lamaignere, H. Bercegol, F. Pilon, and J. Birolleau, “Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm”, *Optics Express* **13** 1063 (2005).
- [129] H. Bercegol, “Endommagement laser nanoseconde en surface de la silice vitreuse”, *Habilitation à Diriger des Recherches* (2009).
- [130] P. E. Miller, J. D. Bude, T. I. Suratwala, N. Shen, T. A. Laurence, W. A. Steele, J. Menapace, M. D. Feit, and L. L. Wong, “Fracture-induced

- subbandgap absorption as a precursor to optical damage on fused silica surfaces”, *Optics Letters* **35** 2702 (2011).
- [131] S. Demos, M. Staggs, K. Minoshima, and J. Fujimoto, “Characterization of laser induced damage sites in optical components”, *Optics Express* **10** 1444 (2002).
- [132] A. Salleo, S. T. Taylor, M. C. Martin, W. R. Panero, R. Jeanloz, T. Sands, and F. Y. Génin, “Laser-driven formation of a high-pressure phase in amorphous silica”, *Nature Materials* **2** 796 (2003).
- [133] S. G. Demos, M. Staggs, and M. R. Kozlowski, “Investigation of processes leading to damage growth in optical materials for large-aperture lasers”, *Applied Optics* **41** 3629 (2002).
- [134] L. W. Hrubesh, M. A. Norton, W. A. Molander, E. E. Donohue, S. M. Maricle, B. M. Penetrante, R. M. Brusasco, W. Grundler, J. A. Butler, J. W. Carr, R. M. Hill, L. J. Summers, M. D. Feit, A. Rubenchik, M. H. Key, P. J. Wegner, A. K. Burnham, L. A. Hackel, and M. R. Kozlowski, “Methods for mitigation growth of laser-initiated surface damage on fused silica optics at 351 nm”, in *Proc. SPIE 4679* (2002), p. 23.
- [135] R. M. Brusasco, B. M. Penetrante, J. A. Butler, and L. W. Hrubesh, “Localized CO<sub>2</sub> laser treatment for mitigation of 351 nm damage growth on fused silica”, in *Proc. SPIE 4679* (2002), p. 40.
- [136] P. Temple, W. Lowdermilk, and D. Milam, “Mechanisms of CO<sub>2</sub> laser mitigation of laser damage growth in fused silica”, *Applied Optics* **21** 3249 (1982).
- [137] I. L. Bass, G. M. Guss, and R. P. Hackel, “Mitigation of Laser Damage Growth in Fused Silica with a Galvanometer Scanned CO<sub>2</sub> Laser”, in *Proc. SPIE 5991* (2005), p. 59910C.
- [138] S. Palmier, L. Gallais, M. Commandré, P. Cormont, R. Couchinoux, L. Lamaignère, J. Rullier, and P. Legros, “Optimization of a laser mitigation process in damaged fused silica”, *Applied Surface Science* **255** 5532 (2008).
- [139] T. Laurence, J. Bude, N. Shen, T. Feldman, P. Miller, W. Steele, and T. Suratwala, “Metallic-like photoluminescence and absorption in fused silica surface flaws”, *Applied Physics Letters* **94** 151114 (2009).

- 
- [140] M. Feit and A. Rubenchik, “Mechanisms of CO<sub>2</sub> laser mitigation of laser damage growth in fused silica”, in *Proc. SPIE 4932* (2003), p. 91.
- [141] M. Feit, A. Rubenchik, C. Boley, and M. Rotter, “Development of a process model for CO<sub>2</sub> laser mitigation of damage growth in fused silica”, in *Proc. SPIE 5273* (2004), p. 145.
- [142] L. Gallais, P. Cormont, and J.-L. Rullier, “Investigation of stress induced by CO<sub>2</sub> laser processing of fused silica optics for laser damage growth mitigation”, *Optics Express* **17** 24488 (2009).
- [143] M. Matthews, I. Bass, G. Guss, C. Widmayer, and F. Ravizza, “Downstream intensification effects associated with CO<sub>2</sub> laser mitigation of fused silica”, in *Proc. SPIE 6720* (2008), p. A7200.
- [144] M. A. Norton, J. J. Adams, C. W. Carr, E. E. Donohue, M. D. Feit, R. P. Hackel, W. G. Hollingsworth, J. A. Jarboe, M. J. Matthews, A. M. Rubenchik, and M. L. Spaeth.
- [145] E. Mendez, K. Nowak, H. Baker, F. Villareal, and D. Hall, “Localized CO<sub>2</sub> laser damage repair of fused silica optics”, *Applied Optics* **45** 5358 (2006).
- [146] A. During, P. Bouchut, J. Coutar, C. Leymarie, and H. Bercegol, “Mitigation of laser damage on fused silica surfaces with a variable profile CO<sub>2</sub> laser beam”, in *Proc. SPIE 6403* (2005), p. 40423.
- [147] G. Guss, I. Bass, R. Hackel, C. Mailhiot, and S. Demos, “In situ monitoring of surface post processing in large-aperture fused silica optics with optical coherent tomography”, *Applied Optics* **49** 4569 (2008).
- [148] B. Bertussi, P. Cormont, S. Palmier, P. Legros, and J.-L. Rullier, “Initiation of laser-induced damage sites in fused silica optical components”, *Optics Express* **17** 11469 (2009).
- [149] M. A. Stevens-Kalceff and J. Wong, “Distribution of defects induced in fused silica by ultraviolet laser pulses before and after treatment with a CO<sub>2</sub> laser”, *Journal of Applied Physics* **97** 113519 (2005).
- [150] W. Dai, X. Xiang, Y. Jiang, H. Wang, X. Li, X. Yuan, W. Zheng, H. Lu, and X. Zu, “Surface evolution and laser damage resistance of CO<sub>2</sub> laser irradiated area of fused silica”, *Applied Surface Science* **49** 273 (2010).

- 
- [151] S. Yang, M. Matthews, S. Elhadj, D. Cooke, G. Guss, V. Draggoo, and P. Wegner, “Comparing the use of mid-infrared versus far-infrared lasers for mitigating damage growth on fused silica”, *Applied Optics* **49** 2906 (2010).
- [152] N. Shen, M. Matthews, J. Fair, J. Britten, H. Nguyen, d. S. E. D. Cooke a, and S. Yang, “Laser smoothing of sub-micron grooves in hydroxyl-rich fused silica”, *Applied Surface Science* **256** 4031 (2010).
- [153] M. Matthews, R. Vignes, D. Cooke, S. Yang, and J. S. Stolken, “Analysis of microstructural relaxation phenomena in laser-modified fused silica using confocal Raman microscopy”, *Optics Letters* **39** 1311 (2010).
- [154] L. Gallais, “Rapport technique sur les procédés de stabilisation laser pour dommages de grandes dimensions développés au LLNL”, *Rapport de contrat* (2005).
- [155] L. Gallais, “Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Phase 1”, *Rapport de contrat* (2007).
- [156] S. Palmier and L. Gallais, “Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Phase 2”, *Rapport de contrat* (2008).
- [157] L. Gallais, “Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice - Période 2008-2009”, *Rapport de contrat* (2009).
- [158] L. Gallais, “Etude de la stabilisation par laser CO<sub>2</sub> de pièces en silice période 2009-2010”, *Rapport de contrat* (2010).
- [159] F. Dahmani, J. C. Lambropoulos, A. W. Schmid, S. Papernov, and S. J. Burns, “Crack arrest and stress dependence of laser-induced surface damage in fused-silica and borosilicate glass”, *Applied Optics* **38** 6892 (1999).
- [160] M. A. Stevens-Kalceff, A. Stesmans, and J. Wong, “Defects induced in fused silica by high fluence ultraviolet laser pulses at 355 nm”, *Applied Physics Letters* **80** 758 (2002).
- [161] S. O. Kucheyev and S. G. Demos, “Optical defects produced in fused silica during laser-induced breakdown”, *Applied Physics Letters* **49** 3230 (2003).

- 
- [162] R. A. Negres, M. W. Burke, S. B. Sutton, P. DeMange, M. D. Feit, and S. G. Demos, "Evaluation of UV absorption coefficient in laser-modified fused silica", *Applied Physics Letters* **90** 061115 (2007).
- [163] A. McLachlan and F. Meyer, "Temperature dependence of the extinction coefficient of fused silica for CO<sub>2</sub> laser wavelengths", *Applied Optics* **26** 1728 (1987).
- [164] J. Zarzyski, *Les verres et l'état vitreux* (Masson, 1982).
- [165] S. Huard, *Polarisation de la lumière* (Masson, 1997).
- [166] L. Robin, P. Combis, P. Cormont, L. Gallais, D. Hebert, C. Mainfray, and J.-L. Rullier, "Infrared thermometry and interferential microscopy for analysis of crater obtained by CO<sub>2</sub> laser at the surface of fused silica", *Soumis à Journal of Applied Physics* (2011).
- [167] P. Cormont, L. Gallais, L. Lamaignère, J. Rullier, P. Combis, and D. Hebert, "Impact of two CO<sub>2</sub> laser heatings for damage repairing on fused silica surface", *Optics Express* **18** 26068 (2010).
- [168] P. Cormont, L. Gallais, and J. Rullier, "Procédé de traitement correctif d'un défaut sur la surface d'un composant optique pour laser de puissance", brevet n° 09 56443 (2009).
- [169] J. Néauport, N. Bonod, L. Gallais, and E. Lavastre, "Dispositif optique de diffraction en réflexion comportant une couche de mélange diélectrique", brevet déposé le 23 septembre 2010 (2010).
- [170] H. Klauk, M. Halik, U. Zschieschang, F. Eder, D. Rohde, G. Schmid, and C. Dehm, "Flexible Organic Complementary Circuits", *IEEE Transactions on Electronics Devices* **52** (2005).
- [171] S. Gowrisanker, M. Quevedo-Lopez, H. Alshareef, B. Gnade, S. Venugopal, R. Krishna, K. Kaftanoglu, and D. Allee, "A novel low temperature integration of hybrid CMOS devices on flexible substrates", *Organic Electronics* **52** 1217 (2009).

# Sélection de quelques publications





# Tridimensional multiphysics model for the study of photo-induced thermal effects in arbitrary nano-structures

**Guillaume Demésy**

[gdemesy@physics.utoronto.ca](mailto:gdemesy@physics.utoronto.ca)

**Laurent Gallais**

**Mireille Commandré**

Department of Physics, University of Toronto, Toronto, Ontario M5S 1A7, Canada

Institut Fresnel, Ecole Centrale Marseille, CNRS, Université Aix-Marseille, Campus de St Jérôme, 13013 Marseille, France

Institut Fresnel, Ecole Centrale Marseille, CNRS, Université Aix-Marseille, Campus de St Jérôme, 13013 Marseille, France

In the present paper, we detail the implementation of a numerical scheme based on the Finite Element Method (FEM) dedicated to a tri-dimensional investigation of photo-induced thermal effects in arbitrary nano-structures. The distribution of Joule losses resulting from the scattering of an incident wave by an arbitrary object embedded in a multilayered media is used as source of a conductive thermal transient problem. It is shown that an appropriate and rigorous formulation of the FEM consists in reducing the electromagnetic scattering problem to a radiative one whose sources are localized inside the scatterer. This approach makes the calculation very tractable. Its advantage compared to other existing methods lies in its complete independence towards the geometric, optical and thermal properties of both the scatterer and the medium in which it lies. Among the wide range of domain of application of this numerical scheme, we illustrate its relevance when applied to two typical cases of laser damage of optical components in high power applications. [DOI: 10.2971/jeos.2011.11037]

**Keywords:** finite elements, 3D, electromagnetic scattering, thermal diffusion, multiphysics coupling, laser damage

## 1 INTRODUCTION

On the one hand, a precise control and enhancement of the absorption of metallic nano-structures can lead to useful applications like hyperthermia of tumors [1, 2], targeted destruction of microorganisms [3], triggered drugs or genes release [4], chemical vapor deposition [5], guiding [6] and mixing [7] of fluidic flow, bio-imaging [8]... On the other hand, this very same effect has proven to be harmful and costly in high-power applications where local scatterers and absorbers can enhance the local electric field and induce strong local temperature rise leading [9, 10] to the damage of expensive large optical components. But in any case, there has recently been a growing interest in photo-induced thermal effects in various domains where metallic nano-structures are at stake.

The rigorous study of this multi-physics effect can be decomposed in two phases: (i) solving of the vector Maxwell equations in order to determine the distribution of the electromagnetic field scattered by the lossy defect(s), then (ii) solving the heat equation whose sources depend on the former Joule loss distribution. The electromagnetic problem is very well known and has been extensively treated for simple geometries. One can refer to [11] for a detailed review of the most widely used methods. However, in order to take into account realistically and rigorously the whole physical complexity of the problem (*i.e.* an arbitrarily shaped, possibly graded index and/or anisotropic scatterer as well as the structure in which it is embedded), a very general method is required. Both the Finite-Difference Time-Domain (FDTD) [12, 13] and the Finite Element Method (FEM) [14, 15, 16] allow the computation of

electromagnetic vector fields and are adapted to such arbitrary geometries. The FDTD is a powerful method which operates in the time domain and thus appears to be less adapted to the monochromatic effects investigated in this paper. The FEM is a widely spread method adapted to solve partial differential equations. Its use is particularly adapted to multiphysics models, since different physical phenomena represented by distinct partial differential equations can be solved on the same tetrahedral meshing of the tri-dimensional (3D) computational domain. In this paper, we address the following multi-physics problem: (i) solving the vector Helmholtz propagation equation in frequency domain and (ii) solving a transient heat equation whose 3D distribution of sources is deduced from the former electromagnetic problem.

In a first part, we show some theoretical and practical details about the implementation of the FEM. First of all, an original formulation already introduced in the case of periodic [17, 18] problems is adapted to the case of scattering cases. This problem amounts to looking for the vector field scattered by one or several defects of arbitrary opto-geometric properties embedded in an arbitrary multilayered stack enlightened by a plane wave of arbitrary incident angle and polarization in the harmonic domain. One of the main difficulties in this physically unbounded problem is the rigorous truncation of the computation domain whereas the sources of the incoming wave are at infinity. This is overcome through a rigorous treatment of the plane wave sources thanks to an equivalence of the scatter-

ing problem with a radiation one whose sources are localized inside the scatterer itself.

We deduce from the complex electric field map the distribution of Joule losses in the lossy regions of the problem, which are used as a source for a problem of heat transfer by conduction assuming thermal temperature-dependant parameters. This later problem is projected on the same mesh than the former problem but one relies on the use of nodal elements. The validity of the electromagnetic treatment is limited by the length of the temporal laser pulse, *i.e.* as long as the spectral dispersion of the pulse can be neglected. The thermal part is adapted to pulses in the nanosecond range and longer where thermal effects overcome avalanche and photo-ionization [19].

In a second part, a convergence study of the electromagnetic part is presented by comparing the FEM solution to the closed form solution obtained from a Mie code [20]. Eventually, two examples of application of the method are provided, in the field of high power laser interaction with optical materials. Though the issue of laser damage has been known for a long time [21], its intrinsic multifactorial nature makes it extremely difficult to understand. The presented examples illustrate the crucial relevance of taking into account as precisely as possible the full optical, thermal and geometric characteristics of the possible scattering defect(s) in an optical component. In the first example, two absorbing defects embedded in a homogeneous medium are considered and the influence of their closeness on the laser induced damage threshold is investigated. In the second example, an ellipsoidal defect in a KDP lattice is considered. This two cases exhibit drastically different temperature responses depending on the geometric configuration.

## 2 Theoretical developments

### 2.1 Set up of the problem and notations

We denote by  $\mathbf{x}$ ,  $\mathbf{y}$  and  $\mathbf{z}$  the unit vectors of the axes of an orthogonal coordinate system  $Oxyz$ . In this paper, for the sake of simplicity, the materials are assumed to be isotropic and therefore are optically characterized by their relative permittivity  $\epsilon$  and relative permeability  $\mu$ . Note that the relative reluctivity, *i.e.* the inverse of permeability, is denoted  $\nu$ . The relative permittivity and relative permeability are represented by complex valued functions which allows the study of lossy materials. The optical scattering system that we are addressing in this paper can be split into the following regions as suggested in Fig. 1:

- *The superstrate* ( $z > z_0$ ) is supposed to be homogeneous, isotropic and lossless, and therefore characterized by its relative permittivity  $\epsilon^+$  and its relative permeability  $\mu^+$  ( $= 1/\nu^+$ ) and we denote  $k^+ := k_0 \sqrt{\epsilon^+ \mu^+}$ , where  $k_0 := \omega/c = 2\pi/\lambda$ . Its thermal properties are denoted  $\rho^+$ ,  $C_p^+$  and  $\kappa^+$  (respectively density, specific heat capacity at constant pressure and thermal conductivity) and are functions of the temperature  $T$ .

- *The multilayered stack* ( $z_N < z < z_0$ ) is made of  $N$  layers which are supposed to be homogeneous and isotropic, and therefore characterized by their relative permittivity  $\epsilon^n$ , their relative permeability  $\mu^n (= 1/\nu^n)$  and their thickness  $e_n$ . We denote  $k_n := k_0 \sqrt{\epsilon^n \mu^n}$  for  $n$  integer between 1 and  $N$ . Their thermal properties are denoted  $\rho^n$ ,  $C_p^n$  and  $\kappa^n$  and are functions of the absolute temperature  $T$ .
- *The scattering region* ( $z_s < z < z_{s-1}$ ) is an heterogeneous region constituted of the layer indexed  $s$  ( $\epsilon^s, \mu^s$ ) and the scatterer itself. The permittivity, permeability and thermal properties of the scatterer are denoted  $\epsilon^d(x, y, z)$ ,  $\mu^d(x, y, z)$ ,  $\rho^d$ ,  $C_p^d$  and  $\kappa^d$ , where the superscript  $d$  stands for *defect*. The method described in this paper does work irrespective of whether the scatterers are homogeneous: The permittivity  $\epsilon^d$  and permeability  $\mu^d$  can vary continuously (gradient index scatterer) or discontinuously (step index scatterer). This scattering region is thus characterized by the scalar fields defined by part  $\epsilon^{s'}(x, y, z)$  and  $\mu^{s'}(x, y, z) (= 1/\nu^{s'}(x, y, z))$ , where  $\epsilon^{s'} = \epsilon^d$  and  $\mu^{s'} = \mu^d$  (resp.  $\epsilon^{s'} = \epsilon^s$  and  $\mu^{s'} = \mu^s$ ) inside (resp. outside) the defect. The thermal properties are denoted accordingly  $\rho^{s'}$ ,  $C_p^{s'}$  and  $\kappa^{s'}$  and are functions of the temperature  $T$ .
- *The substrate* ( $z < z_N$ ) is supposed to be homogeneous and isotropic and therefore characterized by its relative permittivity  $\epsilon^-$  and its relative permeability  $\mu^- (= 1/\nu^-)$  and we denote  $k^- := k_0 \sqrt{\epsilon^- \mu^-}$ . Its thermal properties are denoted  $\rho^-$ ,  $C_p^-$  and  $\kappa^-$  and are functions of the temperature  $T$ .

Let us emphasize the fact that the method principles remain unchanged in the case of several scatterers made of distinct geometry and/or material. It is of importance to note that this approach (see Ref. [18]) allows to study diffractive effects as well and what follows can be applied to the study of thermal effect in diffractive optics [22, 23].

### 2.2 Electromagnetic problem

We only deal with time-harmonic fields, consequently electric and magnetic fields are represented by the complex vector fields  $\mathbf{E}$  and  $\mathbf{H}$ , with a time dependance in  $\exp(-i\omega t)$ . The incident field on this structure is denoted:

$$\mathbf{E}^{\text{inc}} = \mathbf{A}_0^e \exp(i\mathbf{k}^+ \cdot \mathbf{r}) \quad (1)$$

with

$$\mathbf{k}^+ = \begin{bmatrix} \alpha_0 \\ \beta_0 \\ \gamma_0 \end{bmatrix} = k^+ \begin{bmatrix} -\sin\theta_0 \cos\varphi_0 \\ -\sin\theta_0 \sin\varphi_0 \\ -\cos\theta_0 \end{bmatrix} \quad (2)$$

and

$$\mathbf{A}_0^e = \begin{bmatrix} E_x^0 \\ E_y^0 \\ E_z^0 \end{bmatrix} = A^e \begin{bmatrix} \cos\psi_0 \cos\theta_0 \cos\varphi_0 - \sin\psi_0 \sin\varphi_0 \\ \cos\psi_0 \cos\theta_0 \sin\varphi_0 + \sin\psi_0 \cos\varphi_0 \\ -\cos\psi_0 \sin\theta_0 \end{bmatrix} \quad (3)$$

where  $\varphi_0 \in [0, 2\pi]$ ,  $\theta_0 \in [0, \frac{\pi}{2}]$  and  $\psi_0 \in [0, \pi]$  (polarization angle).

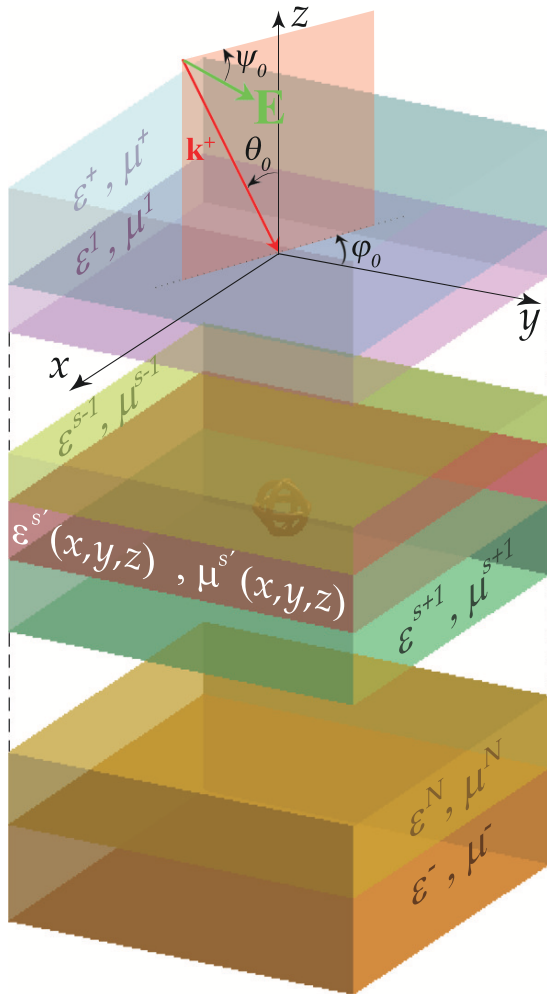


FIG. 1 Scheme and notations of the studied multi-physics problem.

The scattering problem that we address in this paper is therefore to find the solution of Maxwell equations in harmonic regime *i.e.* the unique solution  $(\mathbf{E}, \mathbf{H})$  of:

$$\begin{cases} \mathbf{curl} \mathbf{E} = i\omega \mu_0 \mu \mathbf{H} & (4a) \\ \mathbf{curl} \mathbf{H} = -i\omega \varepsilon_0 \varepsilon \mathbf{E} & (4b) \end{cases}$$

such that the scattered field satisfies a so-called *Outgoing Waves Condition* (OWC [24]).

One can choose to calculate arbitrarily  $\mathbf{E}$ , since  $\mathbf{H}$  can be deduced from Eq. (4a). The scattering problem amounts to looking for the unique solution  $\mathbf{E}$  of the so-called *vectorial Helmholtz propagation equation*, deduced from Eqs. (4a,4b):

$$\mathcal{M}_{\varepsilon,\nu} := -\mathbf{curl} (\nu \mathbf{curl} \mathbf{E}) + k_0^2 \varepsilon \mathbf{E} = \mathbf{0}, \quad (5)$$

such that the scattered field satisfies an OWC.

### 2.2.1 From a scattering problem to a radiative one with localized sources

According to Fig. 1, the scalar relative permittivity  $\varepsilon$  and reluctance  $\nu$  fields associated to the studied scattering structure can be written using complex-valued functions defined by part

and taking into account the notations adopted in Sec. 2.1:

$$v(x, y, z) := \begin{cases} \zeta^+ & \text{for } z > z_0 \\ \zeta^n & \text{for } z_{n-1} > z > z_n \\ & \text{with } 1 \leq n < s \\ \zeta^{s'}(x, y, z) & \text{for } z_{s-1} > z > z_s \\ \zeta^n & \text{for } z_{n-1} > z > z_n \\ & \text{with } s < n \leq N \\ \zeta^- & \text{for } z < z_N \end{cases} \quad (6)$$

with  $\zeta = \{\varepsilon, \nu\}$ ,  $z_0 = 0$  and  $z_n = -\sum_{l=1}^n e_l$  for  $1 \leq n \leq N$ .

It is now convenient to introduce two functions defined by part  $\varepsilon_1$  and  $\nu_1$  corresponding to the associated multilayered case (*i.e.* the same stack without any scatterer) constant over  $Ox$  and  $Oy$ :

$$\zeta_1(x, y, z) := \begin{cases} \zeta^+ & \text{for } z > 0 \\ \zeta^n & \text{for } z_{n-1} > z > z_n \\ & \text{with } 1 \leq n \leq N \\ \zeta^- & \text{for } z < z_N \end{cases} \quad (7)$$

with  $\zeta = \{\varepsilon, \nu\}$ .

We denote by  $\mathbf{E}_0$  the restriction of  $\mathbf{E}^{\text{inc}}$  to the superstrate region:

$$\mathbf{E}_0 := \begin{cases} \mathbf{E}^{\text{inc}} & \text{for } z > z_0 \\ \mathbf{0} & \text{for } z \leq z_0 \end{cases} \quad (8)$$

We are now in a position to define more explicitly the vectorial scattering problem that we are dealing with in this article. It amounts to looking for the unique vector field  $\mathbf{E}$  solution of:

$$\mathcal{M}_{\varepsilon,\nu}(\mathbf{E}) = \mathbf{0} \quad \text{such that } \mathbf{E}^s := \mathbf{E} - \mathbf{E}_0 \text{ satisfies an OWC.} \quad (9)$$

In order to reduce this scattering problem to a radiative one, an intermediary vector field denoted  $\mathbf{E}_1$  is necessary and is defined as the unique solution of:

$$\mathcal{M}_{\varepsilon_1,\nu_1}(\mathbf{E}_1) = \mathbf{0} \quad \text{such that } \mathbf{E}_1^s := \mathbf{E}_1 - \mathbf{E}_0 \text{ satisfies an OWC.} \quad (10)$$

The vector field  $\mathbf{E}_1$  corresponds to an *ancillary problem* associated to the *general vectorial case of a multilayered stack* which can be calculated *independently*. A general analytical derivation of such a problem can be found for instance in [16]. Thus  $\mathbf{E}_1$  is from now on *considered as a known* vector field. It is now apropos to introduce the unknown vector field  $\mathbf{E}_2^s$ , simply defined as the difference between  $\mathbf{E}$  and  $\mathbf{E}_1$ , which can finally be calculated thanks to the FEM:

$$\mathbf{E}_2^s := \mathbf{E} - \mathbf{E}_1 = \mathbf{E}^s - \mathbf{E}_1^s. \quad (11)$$

It is of importance to note that the presence of the superscript  $s$  is not fortuitous: As a difference between two scattered fields (Eq. (11)),  $\mathbf{E}_2^s$  also satisfies an OWC which is of prime importance in our formulation. By taking into account these new definitions, Eq. (9) can be written:

$$\mathcal{M}_{\varepsilon,\nu}(\mathbf{E}_2^s) = -\mathcal{M}_{\varepsilon,\nu}(\mathbf{E}_1), \quad (12)$$

where the right-hand member is a vector field which can be interpreted as a *known vectorial source term*  $-\mathbf{S}_1(x, y, z)$  whose

support is localized inside the scatterer itself. To prove it, let us introduce the null term defined in Eq. (10) and make the use of the linearity of  $\mathcal{M}$ , which leads to:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_1 &:= \mathcal{M}_{\varepsilon, \nu}(\mathbf{E}_1) = \mathcal{M}_{\varepsilon, \nu}(\mathbf{E}_1) - \underbrace{\mathcal{M}_{\varepsilon_1, \nu_1}(\mathbf{E}_1)}_{=0} \\ &= \mathcal{M}_{\varepsilon - \varepsilon_1, \nu - \nu_1}(\mathbf{E}_1). \end{aligned} \quad (13)$$

### 2.2.2 Weak form and truncation of physically unbounded regions

The weak form is obtained by multiplying scalarly Eq. (9) by weighted vectors  $\mathbf{E}'$  chosen among the ensemble of fields of  $L^2(\mathbf{curl})$  in  $\Omega$ :

$$\mathcal{R}_{\varepsilon, \nu}^e(\mathbf{E}, \mathbf{E}') = \int_{\Omega} \left[ -\mathbf{curl}(\nu \mathbf{curl} \mathbf{E}) \cdot \overline{\mathbf{E}'} + k_0^2 \varepsilon \mathbf{E} \cdot \overline{\mathbf{E}'} \right] d\Omega \quad (14)$$

Integrating by part Eq. (14) and making the use of the Green-Ostrogradsky theorem lead to:

$$\begin{aligned} \mathcal{R}_{\varepsilon, \nu}^e(\mathbf{E}, \mathbf{E}') &= \int_{\Omega} \left[ -\nu \mathbf{curl} \mathbf{E} \cdot \mathbf{curl} \overline{\mathbf{E}'} + k_0^2 \varepsilon \mathbf{E} \cdot \overline{\mathbf{E}'} \right] d\Omega \\ &\quad - \int_{\partial\Omega} \left[ (\mathbf{n} \times (\nu \mathbf{curl} \mathbf{E})) \cdot \overline{\mathbf{E}'} \right] dS \end{aligned} \quad (15)$$

where  $\mathbf{n}$  refers to the exterior unit vector normal to the surface  $\partial\Omega$  enclosing  $\Omega$ .

The first term of this sum concerns the volume behavior of the unknown vector field whereas the right-hand term can be classically used to set boundary conditions (Dirichlet, Neumann or so-called quasi-periodic Bloch-Floquet conditions).

The solution  $\mathbf{E}_2^d$  of the weak form associated to the diffraction problem, expressed in its previously defined equivalent radiative form at Eq. (12), is the element of  $L^2(\mathbf{curl})$  such that:

$$\begin{aligned} \forall \mathbf{E}' \in L^2(\mathbf{curl}, d_x, d_y, \mathbf{k}), \\ \mathcal{R}_{\varepsilon, \nu}(\mathbf{E}_2^d, \mathbf{E}') &= -\mathcal{R}_{\varepsilon - \varepsilon_1, \nu - \nu_1}(\mathbf{E}_1, \mathbf{E}'). \end{aligned} \quad (16)$$

A set of Perfectly Matched Layers are used in order to truncate the substrate, the superstrate and each layer of the multilayered medium (see [25] for practical implementation of PML adapted to the FEM). In the examples of Sec.3, rectangular PML have been chosen since a cartesian orthogonal coordinate system was chosen at the first place, but spherical PML could be implemented regardless of the principles of the method. For the sake of clarity, the rectangular PMLs set adapted to a bulk are represented in Fig. 2. Since the proposed unknown  $\mathbf{E}_2^d$  satisfies an OWC, this set of boundary conditions is perfectly sane:  $\mathbf{E}_2^d$  is radiated from the diffractive element towards the infinite regions of the problem and decays exponentially inside the PMLs. The total field associated to the scattering problem  $\mathbf{E}$  is deduced at once from Eq. (11). To solve this part of the problem, tetrahedral quadratic edge elements [26, 27] (or Whitney 1-form) were used together with the direct solver PARDISO. The size of each element size in each domain is set to  $\lambda / (N_m \sqrt{\Re\{\varepsilon\}})$ . The mesh parameter  $N_m$  represents the approximate number of elements by which a period of the electric field propagating in a media of permittivity  $\varepsilon$  is sampled.

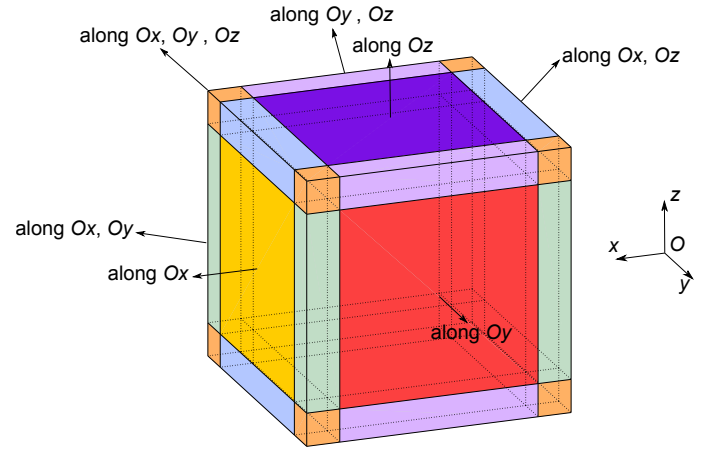


FIG. 2 Sketch of the various PML used to rigorously truncate the unbounded domain.

Compared to other FEM formulations for electromagnetic scattering or diffraction problems, the present rigorous approach exhibits several advantages. For instance, locating the sources of the electromagnetic problem inside the PML [28] or on the exterior bounds of the PML leads to the necessity to mesh the PML finely for accuracy. It should also be pointed out that the PMLs can be set as close to the scatterer as desired. Having the sources inside the domain of interest allows to gradually loosen the mesh in the PML without significant loss of accuracy. These last two practical aspects concerning the computation cell make the problem very tractable and represent two considerable assets when tackling large 3D problems.

### 2.2.3 Computation of losses and absorption cross-section

The classical dimensionless absorptivity  $\sigma$  can be obtained through the computation of the following ratio:

$$\sigma = \frac{\int_V Q^h dV}{\int_S \frac{1}{2} \Re\{\mathbf{E}_0 \times \overline{\mathbf{H}}_0\} \cdot \mathbf{n} dS}, \quad (17)$$

where

$$Q^h(x, y, z) = 1/2 \omega \varepsilon_0 \Im m(\varepsilon^d) \mathbf{E} \cdot \overline{\mathbf{E}} \quad (18)$$

The numerator in Eq. (17) clarifies losses in watts inside the considered lossy scatterer and are computed by integrating the Joule effect losses density  $Q^h(x, y, z)$  (the superscript  $h$  stands for harmonic) over the volume  $V$  of the lossy scatterer. The denominator normalizes these losses to the incident power, *i.e.* the time-averaged incident Poynting vector flux across the surface  $S$  resulting from the projection of the scatterer edges on a plane parallel to  $Oxy$  in the superstrate, whose normal oriented along decreasing values of  $z$  is denoted  $\mathbf{n}$ . Since  $\mathbf{E}_0$  is nothing but the plane wave defined at Eqs. (8,2,3), this last term is equal to  $(A_e^2 \sqrt{\varepsilon_0 / \mu_0} S) / (2 \cos(\theta_0))$ , where  $s$  denotes the surface of  $S$  in  $\text{m}^2$ . Volumes and normal to surfaces being explicitly defined, the absorptivity  $\sigma$  is instantly available once  $\mathbf{E}$  computed and interpolated between mesh nodes. Numerical examples and comparisons with an independent code are given in Sec. 3.

## 2.3 Thermal problem

### 2.3.1 Temporal domain and thermal coupling

On the one hand, the thermal coupling is possible provided that the incident pulse has a negligible spectral dispersion, which is generally the case for nanosecond pulse lasers addressed in this paper. On the other hand, the plane wave approximation is fully justified since the size of the scatterers is insignificant compared to the waist of the incident laser beam. Indeed the temporal pulse shape must be considered when tackling laser-damage effects [29]. Let us consider for instance a laser pulse with a gaussian temporal irradiance profile  $I(t)$  given in  $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ . The pulse is classically defined by its fluence  $F$  in  $\text{J}\cdot\text{m}^{-2}$ , its temporal width at half-height  $t_1 - t_0$  in seconds and we are numerically spanning the temporal domain  $[t_{\min}, t_{\max}]$ . Note that the presented method remains identical for an arbitrary temporal pulse shape. The fluence  $F$  of the pulse is defined as the temporal integral of the gaussian irradiance  $I(t)$  profile as follows:

$$\begin{aligned} F &= \int_0^{+\infty} I(t) dt = I_{\max} \int_0^{+\infty} \exp\left[-\frac{(t-\tau)^2}{2\delta^2}\right] dt \\ &\approx I_{\max} \int_{t_{\min}}^{t_{\max}} \exp\left[-\frac{(t-\tau)^2}{2\delta^2}\right] dt \quad (19) \\ &\approx I_{\max} \delta \sqrt{2\pi}, \end{aligned}$$

where  $\tau = (t_1 + t_0)/2$  and  $\delta = (t_1 - t_0)/(2\sqrt{2\ln(2)})$ . Let us assume that the electromagnetic problem was solved with an amplitude of electric field corresponding to the maximum irradiance incident on the structure  $I_{\max}$ , which is worth according to Eq. (19):

$$A_e^2 = 2 I_{\max} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} = F \sqrt{\frac{8 \times 10^{-7}}{\delta \epsilon_0}}. \quad (20)$$

Finally, since losses  $Q^h$  in harmonic domain are directly proportional to the incident irradiance  $I$ , the spatio-temporal distribution of Joule losses are expressed as follows:

$$Q^t(x, y, z, t) = Q^h(x, y, z) \exp\left[-\frac{(t-\tau)^2}{2\delta^2}\right] \quad (21)$$

### 2.3.2 Weak form of the heat equation

The complete derivation of the thermal transient problem using finite elements is outside of the scope of this paper and one can find useful details and references about its practical implementation in [30], as well as comparisons between different iterative solvers. The main goal of this part is to strengthen the rigorousness of the coupling between electromagnetic and thermal calculations by taking into account the distribution of the electromagnetic losses  $Q^t$ , as well as the temperature dependence of the constitutive materials of the system. The classical conductive heat transfer equation in solids that governs the spatio-temporal evolution of the absolute temperature  $T(x, y, z, t)$  in  $K$ , or Fourier's law:

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \frac{1}{\rho C_p} \{\text{div}[-\kappa \mathbf{grad} T] + Q^t\} = 0 \quad (22)$$

where the density  $\rho$  in  $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ , the specific heat capacity at constant pressure  $C_p$  in  $\text{J}\cdot(\text{kg}\cdot\text{K})^{-1}$  and the thermal conductivity  $\kappa$  in  $\text{W}\cdot(\text{m}\cdot\text{K})^{-1}$  are piecewise temperature dependent

functions. Thus, these functions can be defined by part using the notations of Sec. 2.1 as follows:

$$\zeta(x, y, z, T) := \begin{cases} \zeta^+(T) & \text{for } z > z_0 \\ \zeta^n(T) & \text{for } z_{n-1} > z > z_n \\ & \text{with } 1 \leq n < s \\ \zeta^{s'}(T)(x, y, z) & \text{for } z_{s-1} > z > z_s \\ \zeta^n(T) & \text{for } z_{n-1} > z > z_n \\ & \text{with } s < n \leq N \\ \zeta^-(T) & \text{for } z < z_N \end{cases}, \quad (23)$$

with  $\zeta = \{\rho, C_p, \kappa\}$ . Following the Galerkin method of weighted residual, *i.e.* the weighted functions are chosen among the shape functions, and integrating by part leads to the following weak form of Eq. (22):

$$\begin{aligned} \rho C_p \int_{\Omega} \frac{\partial T}{\partial t} T' d\Omega + \int_{\Omega} \kappa \mathbf{grad} T \cdot \mathbf{grad} T' d\Omega \\ = - \int_{\Omega} Q^t T' d\Omega. \end{aligned} \quad (24)$$

Note that convective and radiative thermal contributions are not taken into account in this formulation. Considering the scalar nature of  $T$ , the temperature  $T(x, y, z, t)$  is approximated using nodal elements of the form:

$$T(x, y, z, t) = \sum_{\text{nodes } i} N_i(x, y, z) T_i(t). \quad (25)$$

Finally, inserting the decomposition of Eq. (25) in Eq. (24) leads to final matrix system. The state-of-the-art methods used to solve the resulting differential algebraic equations are fully described in [31, 32].

## 3 Numerical illustrations

Among the various fields addressed in the introduction by the described method, we chose to illustrate the method with Laser-induced damage typical situations. Laser-induced damage in optical materials is a main issue for high-power density laser systems. The irreversible degradation and growth of damage of optical components under laser irradiation seriously limit the operational conditions of MegaJoule class laser for fusion ignition [33] as well as small and compact laser for airborne or space applications [34]. In dielectric materials irradiated by nanosecond pulses, if the wavelength is far from the absorption bands, laser damage in optical materials is mainly initiated by nanometric defects that absorb the laser energy, inducing a fast temperature rise and a subsequent plasma that will lead to mechanical failure due to extreme temperatures and pressures [35]. For surfaces, the initiating defects are often linked to polishing residues [36], fractures [37, 38], or contamination [39]. If the surface is coated, different additional limiting defects can be found in the multilayer system: Nodules [40], substrate contaminants [41], impurities coming from the coating chamber or from the source material [42, 43], voids, grain boundaries... In the case of crystals, the origin of defect may be linked to the growth condition. Indeed since the growth requires certain additives, the precursor defects may be constituted of atomic impurities (such as Al, Cr, Fe, Si) [10] or dislocations [44]. Structural defects that can form absorbing

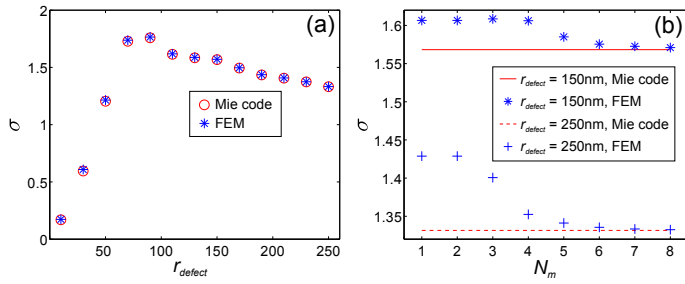


FIG. 3 (a)- Absorptivity as a function of the scatterer radius, calculated with a Mie code (circle) and the presented FEM (asterisk). (b)- Convergence of the FEM calculation as a function of the mesh refinement.

clusters can also be created during the crystal growth [45]. The creation or photo-induced defects during laser operation has also been reported in different materials [46].

In order to refine the knowledge on the precursor defects and improve the understanding of the damage initiation process, models of laser-induced damage are needed [47]. The development of such models has begun with the first studies on laser damage, for instance with the work of Hopper and Uhlmann [21] and has led to more refined models in the recent years [48]-[51]. Modeling laser damage in optical components requires the ability to deal with complex structures such as optical multilayer systems, which are often the limitation of an optical system, or diffractive optics which are more and more used in high powerful laser systems [52]. Laser damage initiation by complex defects such as fractures [38] or nodules has been theoretically addressed with 2D or 3D FDTD electromagnetic calculations developed for a particular case [51]. The present numerical scheme relying on the use of unstructured mesh presents the advantage of being suitable to single or multiple arbitrary defects of any shape, in complex optical structures, by coupling electromagnetic to thermal calculations.

### 3.1 Convergence of the electromagnetic field as a function of the mesh refinement

In this section, values of absorptivity obtained with the FEM (Eq. (17)) are compared to those obtained with a classical Mie scattering code. Let us consider a spherical defect made of hafnium (Hf of permittivity  $\epsilon^d = 7.04 + 25.30i$ ) merged in a hafnium dioxide ( $\text{HfO}_2$  of permittivity  $\epsilon^s = \epsilon^- = \epsilon^+ = 4$ ) bulk and enlighten by a plane wave at 1064 nm. Fig. 3b represents the relative error between the absorption cross section obtained by FEM and using a Mie code [20]. This case can be considered as a typical defect in a coating [53].

As depicted in Fig. 3a, the FEM calculation shows excellent numerical agreement with the Mie scattering code for various values of the radius  $r_{\text{defect}}$  of the spherical defect. Furthermore, as shown on Fig. 3b, the convergence of the FEM scattering results is fast and very accurate values can be obtained as soon as  $N_m \geq 6$ . For instance, the relative error on the absorptivity  $\sigma$  with  $r_{\text{defect}} = 150$  nm is lower than 0.1% for  $N_m = 8$ . Interestingly enough in terms of computational cost, note that this relative error is only 2.4% when  $N_m$  is set to 1. The electromagnetic part of the presented method can produce very ac-

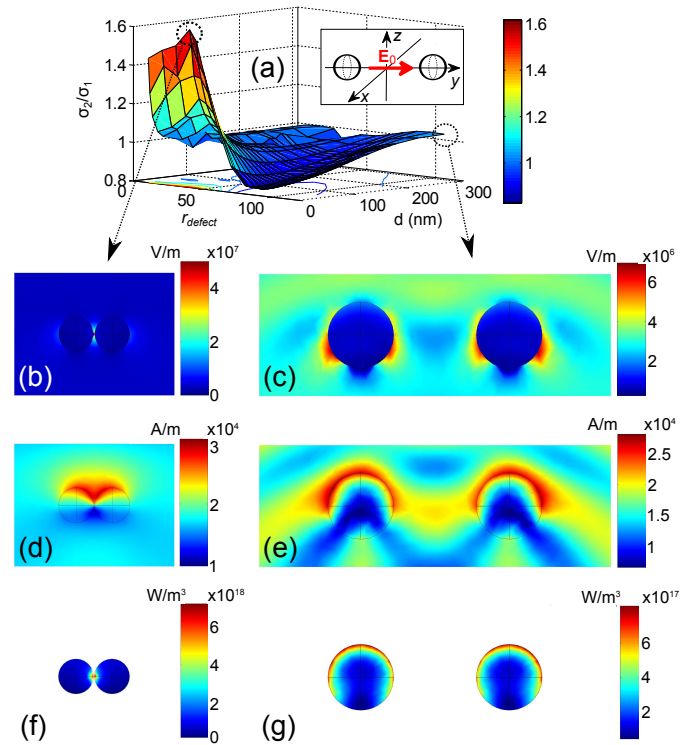


FIG. 4 (a). Ratio of absorptivities calculated in the case of two scatterers ( $\sigma_2$ ) and one scatterer ( $\sigma_1$ ). (b,c).  $|E_y|$  maps. (d,e).  $|H_x|$  maps. (f,g).  $Q^h$  maps.

curate results at low computational cost. Its interest towards a Mie code relies of course in its independence towards the geometry of the diffractive object and the structure in which it is embedded

### 3.2 Two Hf spheres in a $\text{HfO}_2$ bulk

In this section, we are dealing with multiple scatterers. With regard to the single scatterer case, the proposed method does not require any further adjustment: both the piecewise electromagnetic and thermal sources are now non null in the several scatterers. As in Sec. 3.1, the scatterers are made of hafnium (Hf of permittivity  $\epsilon^d = 7.0364 + 25.2960i$ ), merged in a hafnium dioxide ( $\text{HfO}_2$  of permittivity  $\epsilon^s = \epsilon^- = \epsilon^+ = 4$ ) bulk and enlighten by a plane wave of wavelength 1064 nm and whose electric field is polarized along the direction of alignment of the spheres. Fig. 4a represents the absorptivity  $\sigma_2$  of a defect of radius  $r_{\text{defect}}$  calculated in the two scatterers case (normalized by its single scatterer counterparts  $\sigma_1$  calculated in Sec. 3.1) as a function of the radius  $r_{\text{defect}}$  and distance  $d$  between the two closest points the spheres. The ratio  $\sigma_2/\sigma_1$  exhibits a flat portion corresponding to the distances  $d$  large enough where the defects do not interact between each other. A closer look at the point  $(r_{\text{defect}}, d) = (120, 300)$  nm (right hand side dashed circle on Fig. 4a) confirms the very weak perturbation of the symmetry of the field interference pattern, as shown on the field maps  $|E_y|$  in Fig. 4c and  $|H_x|$  in Fig. 4e. As a consequence, the distribution of losses shown at Fig. 4g is very similar to the one scatterer case, which results in a ratio  $\sigma_2/\sigma_1$  close to 1. However, the mesh plot shown in Fig. 4a exhibits a sharp peak centered at  $(r_{\text{defect}}, d) = (40, 2)$  nm. In this case, because of the transverse polarization of the electric field, the two close defects strongly interact, which results in a strong confining of the electric field shown in Fig. 4b:

The maximum value of  $|E_y|$  is 8 times stronger than the one presented on Fig. 4c. A similar asymmetry can be observed on the magnetic field distribution in Fig. 4d, which results in large off-centered losses plotted on Fig. 4f, up to 9 times the maximum losses reached by the case depicted in Fig. 4g. We are now comparing the temperature distribution result-

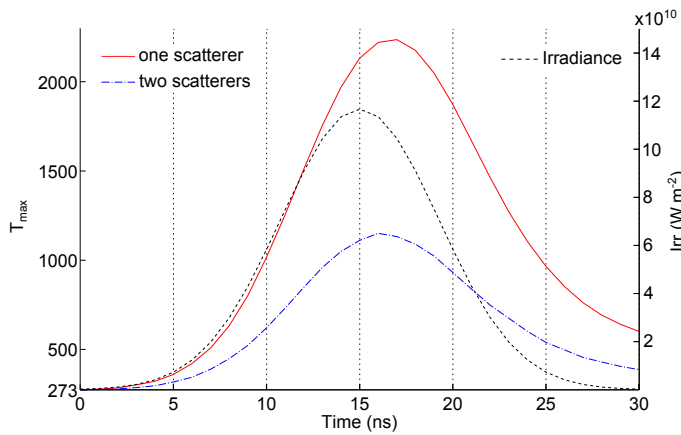


FIG. 5 Temporal evolution of the maximal temperature reached in the 1- (dash-dotted blue line) and 2-scatterer(s) (plain red line) cases. The right axis and the dotted black line represent the irradiance  $I(t)$  for a pulse fluence of  $0.124 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$ .

ing from the two-scatterers case to its single scatterer counterpart by making the use of the thermal coupling introduced in Sec. 2.3. The thermal parameters are the following [54]: For  $\text{HfO}_2$ ,  $\rho = 9880 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $C_p = 250 \text{ J} \cdot (\text{kg} \cdot \text{K})^{-1}$  and  $\kappa = 1.640 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$  and for  $\text{Hf}$ ,  $\rho = 13310 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $C_p = 140 \text{ J} \cdot (\text{kg} \cdot \text{K})^{-1}$  and the thermal conductivity, considered linearly dependant on the temperature [54]  $\kappa(T) = -0.016 * T + 26.596 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ . Let us consider an incident gaussian temporal pulse of width at half-height  $t_1 - t_0 = 10 \text{ ns}$  at  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ . The considered temporal range is  $[t_{\min}, t_{\max}] = [0, 30] \text{ ns}$  sampled with 1 ns steps. As shown in Fig. 5 the maximum of temperature reached in both 1- and 2-scatterers cases occurs 2 ns after the maximum pulse irradiance  $I_{\max} \approx 1.16 \times 10^{11} \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ . However, the temperature maximum reached in the 2-scatterers case is more than twice as high as in the 1-scatterer one (2240 K instead of 1150 K).

The hafnium fusion point is located at 2233 K [55]. The model can then be used to study cooperation between defects in laser damage, as they may electromagnetically and thermally cooperate to induce damage [56].

### 3.3 Ellipsoidal defect in a KDP lattice

The second example we have chosen concerns KDP (Potassium Dihydrogen Phosphate) which is an uniaxial anisotropic crystal, used in laser applications for its nonlinear and electro-optical properties. In the case of nanosecond laser irradiation, laser damage initiation is induced by precursor defects that efficiently absorb the laser energy, inducing a fast temperature rise and a subsequent shock wave in this material [35, 50]. The nature and origin of these defects is however unclear and still under investigation [57]. Recent experiments [58] and theoretical works [50] suggest that non-spherical absorbing defects could be involved: planar or ellipsoid-shaped. We report then in the section below a study based on the previously described

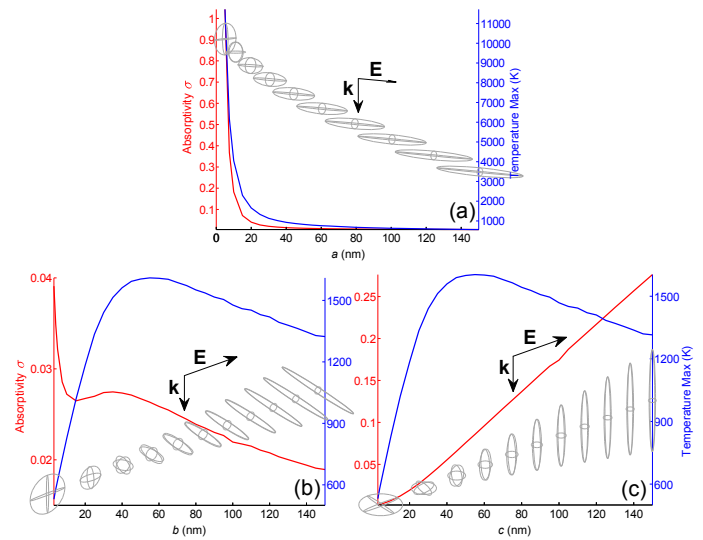


FIG. 6 Absorptivity and maximum temperature reached as a function of the elongation along  $Ox$  (a),  $Oy$  (b) and  $Oz$  (c).

model on the influence of the polarization and shape of the defects on the absorption efficiency and temperature rise inside the KDP lattice.

The configuration of this study is the following. An ellipsoidal defect geometrically characterized by its semi-axis lengths denotes  $a_d$ ,  $b_d$  and  $c_d$  respectively along  $Ox$ ,  $Oy$  and  $Oz$  lies in an infinite bulk lattice of KDP. The dielectric permittivity of this defect is chosen according to [58]:  $\epsilon^d = 0.08 + 0.06i$ . The permittivity of the KDP lattice is set to  $\epsilon^s = \epsilon^- = \epsilon^+ = 2.35$ . We are considering in what follows KDP as an optically isotropic material, which is not a big assumption since generally accepted ordinary/extraordinary optical index values are  $n_o = 1.53$  and  $n_e = 1.49$  at 1064 nm. Moreover, the simulations have been done using an anisotropic material with these values. The results showed negligible discrepancies in terms of absorption and temperature reached compared those obtained with an isotropic KDP of optical index 1.5318.

Still according to the experimental set up described in [58], let us consider an incident gaussian temporal pulse of width at half-height  $t_1 - t_0 = 6.5 \text{ ns}$  and fluence  $11 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$  at  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  polarized along  $Ox$ . The considered temporal range is  $[t_{\min}, t_{\max}] = [0, 25] \text{ ns}$  sampled with 1 ns steps.

As for thermal parameters of the KDP lattice, the conductivity is set to  $\kappa = 1.9 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$  and its thermal diffusivity to  $\kappa/(\rho \cdot C_p) = 6.5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . Thermal parameters for the typical defect lying in a KDP lattice being unknown so far, let us consider a typical metallic case of thermal conductivity  $50 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$  and diffusivity  $10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . Fig. 6 sums up the absorptivity and maximum temperature reached in the system for the three different types of elongated ellipsoids. For each case, one of the three semi-axis is spanned from 5 to 150 nm and the two other semi-axis are considered of equal lengths such that the volume of the resulting ellipsoid  $V_e = 4/3 \pi a b c$  remains constant and equal to the volume of a sphere of 25 nm radius. As depicted in Fig. 6a, the system exhibits a strong resonance when the field is polarized in the direction of elongation of the ellipsoid, for small values



of the semi-axis  $a$ . The ellipsoidal defect is then very flat and one can note that this strong resonance occurs when the incident electric field is orthogonal to very sharp edges: this resonance leads to an absorptivity at least 4 times stronger than for the other polarization case (see Fig. 6b) and to a maximum temperature increase 8.5 times more important (11400 K in the case of Fig. 6a instead of 1300 K in the case of Fig. 6b). Note that the shape of the absorptivities presented in Fig. 6b and Fig. 6c are different only because the apparent surface differs from case a) to case b). Otherwise, the amount of absorbed incident power in W (the numerator of Eq. (17)) is the same. Finally, the maximum temperature increase inside all these systems occurs between 1 and 2 ns after the maximum of the pulse. This short timescale can be explained by both the metallic order of magnitude chosen for the diffusivity and the size of the defect. Finally, it is of importance to emphasize that these numerical values are of the same order of magnitude than in the experimental results described in [58, 59].

#### 4 Concluding remarks

The main advantage of the proposed finite element based multiphysics model is its complete arbitrariness towards the number, geometric shape, dielectric and magnetic properties, embedding environment of the scatterers. Moreover, the fact that the model takes into account both the spatial distribution of the thermal sources inside the scatterer and the thermal dependency.

This is due to a rigorous treatment of the electromagnetic sources which leads to a precise determination of the spatial distribution of the source losses even inside a very lossy material. PMLs allow to truncate the computational domain. Using second order edge elements provides enough accuracy to match the value obtained using a Mie code, even using a very coarse mesh inside the PML. Finally, the distribution of Joule losses calculated using this rigorous and precise electromagnetic approach are used as a source of a classical temporal variational formulation of the heat equation.

We finally applied the proposed method to the study of laser damage of optical components used in high power applications in order to stress the importance of taking into account all the details of a defect scattering in such structures. For instance, considering a cluster of defects rather than a single one brings out new critical defect parameters compared to previous study where only the diameter of the defect was considered. Thus, two non critical defects if considered isolated could actually lead to a damage when considered together and close. Considering the typical shape of a defect is also of prime importance, since an elongated defect can lead to a temperature rise almost 10 times superior to a spherical one with identical volume.

Test structures have been conceived at Institut Fresnel to test the ability of this model to match experimental cases and are under realization. Taking into account more closely the damage initiators with this rigorous multi-physics model can allow a better understanding of the inner mechanisms of laser damage. As detailed in the introduction, this method can be

applied to many other nanophotonic applications involving photo-induced thermal effects.

#### References

- [1] A. K. Oyelere, P. C. Chen, X. Huang, I. H. El-Sayed, and M. A. El-Sayed, "Peptide-conjugated gold nanorods for nuclear targeting", *Bioconjugate Chem.* **18**, 1490-1497 (2007).
- [2] C. Loo, A. Lowery, N. J. Halas, J. L. West, and R. Drezek, "Immuno-targeted nanoshells for integrated cancer imaging and therapy", *Nano Lett.* **5**, 709-711 (2005).
- [3] D. Pissuwan, S.M. Valenzuela, C.M. Miller, and M.B. Cortie, "A golden bullet? Selective targeting of *Toxoplasma gondii* tachyzoites using antibody-functionalized gold nanorods", *Nano Lett.* **7** 3808-3812 (2007).
- [4] S. R. Sershen, S. L. Westcott, N. S. Halas, and J. L. West, "Temperature-sensitive polymer-nanoshell composites for photothermally modulated drug delivery", *J. Biomed. Mater. Res.* **51**, 293-298 (2000).
- [5] D. A. Boyd, L. Greengard, L. Brongersma, M. Y. El-Naggar, and D. G. Goodwin, "Plasmon-assisted chemical vapor deposition", *Nano Lett.* **6**, 2592-2597 (2006).
- [6] X. Miao, B. K. Wilson, and L. Y. Lin, "Localized surface plasmon assisted microfluidic mixing", *Appl. Phys. Lett.* **92**, 124108-1 - 124108-3 (2008).
- [7] G. L. Liu, J. Kim, Y. Lu and L. Lee, "Optofluidic control using photothermal nanoparticles", *Nat. Mater.* **5**, 27-32 (2005).
- [8] R. Q. G. Baffou and C. Girard, "Heat generation in plasmonic nanostructures: Influence of morphology", *Appl. Phys. Lett.* **94**, 153109 (2009).
- [9] D. Milam, R. Bradbury, and M. Bass, "Laser damage threshold for dielectric coatings as determined by inclusions", *Appl. Phys. Lett.* **23**, 654-657 (1973).
- [10] N. Zaitseva, L. Carman, I. Smolsky, R. Torres, and M. Yan, "The effect of impurities and supersaturation on the rapid growth of KDP crystals", *J. Cryst. Growth* **204**, 512-524 (1999).
- [11] F. Kahnert, "Numerical methods in electromagnetic scattering theory", *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **79**, 775-824 (2003).
- [12] K. Yee, "Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media", *IEEE Trans. Ant. Prop.* **AP-14**, 302-307 (1966).
- [13] K. S. Yee and J. S. Chen, "The finite-difference time-domain (FDTD) and the finite-volume time-domain (FVTD) methods in solving Maxwell's equations", *IEEE Trans. Ant. Prop.* **45**, 354-363 (1997).
- [14] J. L. Volakis, A. Chatterjee and L. C. Kempel, "Review of the finite-element method for three-dimensional electromagnetic scattering", *J. Opt. Soc. Am. A* **11**, 1422-1422 (1994).
- [15] X. Wei, A. J. Wachers and H. P. Urbach, "Finite-element model for three-dimensional optical scattering problems", *J. Opt. Soc. Am. A* **24**, 866-881 (2007).
- [16] G. Demésy, F. Zolla, A. Nicolet and M. Commandré, "All-purpose finite element formulation for arbitrarily shaped crossed-gratings embedded in a multilayered stack", *J. Opt. Soc. Am. A* **27**, 878-889 (2008).
- [17] G. Demésy, F. Zolla, A. Nicolet, M. Commandré and C. Fossati, "The finite element method as applied to the diffraction by an anisotropic grating", *Opt. Express* **15**, 18089-18102 (2007).
- [18] G. Demésy, F. Zolla, A. Nicolet, and M. Commandré, "Versatile full-

- vectorial finite element model for crossed gratings”, *Opt. Lett.* **34**, 2216–2218 (2009).
- [19] M. Perry, B. Stuart, P. Banks, M. Feit, V. Yanovsky, and A. Rubenchik, “Ultrashort-pulse laser machining of dielectric materials”, *J. Appl. Phys.* **85**, 6803 (1999).
- [20] C. Mätzler, “MATLAB Functions for Mie scattering and absorption”, IAP Res. Rep (2002).
- [21] R. W. Hopper and D. P. Uhlmann, “Mechanism of Inclusion Damage in Laser Glass”, *J. Appl. Phys.* **41**, 4023 (1970).
- [22] J. Néauport, E. Lavastre, G. Razé, G. Dupuy, N. Bonod, M. Balas, G. de Villele, J. Flamand, S. Kaladgew, and F. Desserouer, “Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings”, *Opt. Express* **15**, 12508–12522 (2007).
- [23] X. Jing, J. Shao, J. Zhang, Y. Jin, H. He, and Z. Fan, “Calculation of femtosecond pulse laser induced damage threshold for broadband antireflective microstructure arrays”, *Opt. Express* **17**, 24137–24152 (2009).
- [24] F. Zolla and R. Petit, “Method of fictitious sources as applied to the electromagnetic diffraction of a plane wave by a grating in conical diffraction mounts”, *J. Opt. Soc. Am. A* **13**, 796–802 (1996).
- [25] Y. Ould Agha, F. Zolla, A. Nicolet, and S. Guenneau, “On the use of PML for the computation of leaky modes : an application to gradient index MOF”, *COMPEL* **27**-1, 95–109 (2008).
- [26] A. Bossavit and I. Mayergoz, “Edge-elements for scattering problems”, *IEEE T. Magn.* **25**, 2816–2821 (1989).
- [27] P. Dular, A. Nicolet, A. Genon, and W. Legros, “A discrete sequence associated with mixed finite elements and its gauge condition for vector potentials”, *IEEE T. Magn.* **31**, 1356–1359 (1995).
- [28] G. Bao, Z. Chen and H. Wu, “Adaptive finite-element method for diffraction gratings”, *J. Opt. Soc. Am. A* **22**, 1106–1114 (2005).
- [29] C. W. Carr, J. B. Trenholme, and M. L. Spaeth, “Effect of temporal pulse shape on optical damage”, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 041110 (2007).
- [30] M. Vujicic, “Finite element solution of transient heat conduction using iterative solvers”, *Eng. Computation* **23**, 408–431 (2006).
- [31] P. N. Brown, A. C. Hindmarsh, and L. R. Petzold, “Using Krylov methods in the solution of large-scale differential-algebraic systems”, *SIAM J. Sci. Comput.* **15**, 1467–1488 (1994).
- [32] A. C. Hindmarsh, P. N. Brown, K. E. Grant, S. L. Lee, R. Serban, D. E. Shumaker, and C. S. Woodward, “SUNDIALS: Suite of nonlinear and differential/algebraic equation solvers”, *ACM T. Math. Software (TOMS)* **31**, 363–396 (2005).
- [33] H. Bercegol, A. Boscheron, J. M. Di-Nicola, E. Journot, L. Laignère, J. Néauport and G. Razé, “Laser damage phenomena relevant to the design and operation of an ICF laser driver”, *J. Phys. Conf. Ser.* **112**, 032013 (2008).
- [34] P. Allenspacher, W. Riede, and D. Wernham, “Laser qualification testing of space optics”, *P. SPIE. IS&T Elect. Im.* **6403**, 64030T (2006).
- [35] C.W. Carr, H.B. Radousky, A.M. Rubenchik, M.D. Feit, and S.G. Demos, “Localized dynamics during laser-induced damage in optical materials”, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 087401 (2004).
- [36] J. Néauport, P. Cormont, P. Legros, C. Ambard, and J. Destribats, “Imaging subsurface damage of grinded fused silica optics by confocal fluorescence microscopy”, *Opt. Express* **17**, 3543–3554 (2009).
- [37] N. Bloembergen, “Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surface of transparent dielectrics”, *Appl. Opt.* **12**, 661–664 (1973).
- [38] F. Y. Génin, A. Salleo, T. V. Pistor, and L. L. Chase, “Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces”, *J. Opt. Soc. Am. A* **18**, 2607–2616 (2001).
- [39] K. Bien-Aimé, C. Belin, L. Gallais, P. Grua, E. Fargin, J. Néauport and I. Tovenca-Pecault, “Impact of storage induced outgassing organic contamination on laser induced damage of silica optics at 351 nm”, *Opt. Express* **17**, 18703–18713 (2009).
- [40] R. Chow, S. Falabella, G. E. Loomis, F. Rainer, C. J. Stolz, and M. R. Kozlowski, “Reactive evaporation of low-defect density hafnia”, *Appl. Opt.* **23**, 174 (1993).
- [41] M. Reichling, A. Bodemann, and N. Kaiser, “Defect induced laser damage in oxide multilayer coatings for 248 nm”, *Thin Solid Films* **320**, 264–279 (1998).
- [42] S. Papernov and A. Schmid, “Localized absorption effects during 351 nm, pulsed laser irradiation of dielectric multilayer thin films”, *J. Appl. Phys.* **82**, 5422 (1997).
- [43] D. Ristau, M. Jupé, and K. Starke, “Laser damage thresholds of optical coatings”, *Thin Solid Films* **518**, 1607–1613 (2009).
- [44] J. J. DeYoreo, Z. U. Rek, N. P. Zaitseva, and B. W. Woodsa, “Sources of optical distortion in rapidly grown crystals of KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>”, *J. Cryst. Growth* **166**, 291–297 (1996).
- [45] N. Y. Garces, K. T. Stevens, L. E. Halliburton, S. G. Demos, H. B. Radousky, and N. P. Zaitseva, “Identification of electron and hole traps in KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub> crystals”, *J. Appl. Phys.* **89**, 47–52 (2001).
- [46] A. Hildenbrand, F.R. Wagner, J.-Y. Natoli, and M. Commandré, “Nanosecond laser induced damage in RbTiOPO<sub>4</sub>: The missing influence of crystal quality”, *Opt. Express* **17**, 18273–18280 (2009).
- [47] L. Gallais, P. Voarino, and C. Amra, “Optical measurement of size and complex index of laser-damage precursors: the inverse problem”, *JOSA B* **21**, 1073–1080 (2004).
- [48] J. Trenholme, M. Feit, and A. Rubenchik, “Size-selection initiation model extended to include shape and random factors”, *Proc. of SPIE* **5991**, 59910X (2005).
- [49] F. Bonneau, P. Combis, J. Rullier, J. Vierne, B. Bertussi, M. Commandré, L. Gallais, J. Natoli, I. Bertron, F. Malaise, et al., “Numerical simulations for description of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica”, *Appl. Phys. B-Lasers O.* **78**, 447–452 (2004).
- [50] G. Duchateau, “Simple models for laser-induced damage and conditioning of potassium dihydrogen phosphate crystals by nanosecond pulses”, *Opt. Express* **17**, 10434–10456 (2009).
- [51] C. J. Stolz, M. D. Feit, and T. V. Pistor, “Laser intensification by spherical inclusions embedded within multilayer coatings”, *Appl. Optics* **45**, 1495–1601 (2006).
- [52] C. Dorner, “High-damage-threshold beam shaping using binary phase plates”, *Opt. Lett.* **34**, 2330–2332 (2009).
- [53] L. Gallais, J. Capoulade, J.Y. Natoli and M. Commandré, “Investigation of nanodefekt properties in optical coatings by coupling measured and simulated laser damage statistics”, *J. Appl. Phys.* **104**, 053120 (2008).
- [54] Y. S. Touloukian, *Thermo-physical properties of matter* (IFI/Plenum, 1970).
- [55] D. Lide, *CRC handbook of chemistry and physics* (CRC press, 1993).
- [56] G. Duchateau and A. Dyan, “Coupling statistics and heat transfer to study laser-induced crystal damage by nanosecond pulses”, *Appl. Opt.* **23**, 3796 (1984).
- [57] S. G. Demos, P. DeMange, R. A. Negres, and M. D. Feit, “Investigation of the electronic and physical properties of defect structures

responsible for laser-induced damage in DKDP crystals”, *Opt. Express* **18**, 13788–13804 (2010).

- [58] S. Reyné, G. Duchateau, J. Natoli, and L. Lamaignère, “Laser-induced damage of KDP crystals by  $1\omega$  nanosecond pulses: influence of crystal orientation”, *Opt. Express* **17** 21652–21665 (2009).
- [59] C. Carr, H. Radousky, A. Rubenchik, M. Feit, and S. Demos, “Localized dynamics during laser-induced damage in optical materials”, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 87401 (2004).

## Transient interference implications on the subpicosecond laser damage of multielectrics

Laurent Gallais,<sup>1,a)</sup> Benoît Mangote,<sup>1</sup> Mireille Commandré,<sup>1</sup> Andrius Melninkaitis,<sup>2</sup> Julius Mirauskas,<sup>2</sup> Maksim Jeskevic,<sup>2</sup> and Valdas Sirutkaitis<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Institut Fresnel, Ecole Centrale Marseille, CNRS, Aix-Marseille Université, Campus de St Jérôme, 13013 Marseille, France*

<sup>2</sup>*Laser Research Center, Vilnius University, Sauletekio Avenue 10, 10223 Vilnius, Lithuania*

(Received 29 June 2010; accepted 19 July 2010; published online 6 August 2010)

Laser-induced damage in optical thin films with subpicosecond pulses is investigated. A model dedicated to optical interference coatings and based on the rate equation for free electron generation is introduced. It takes into account the transient interference effects induced by changes in the dielectric function during the laser pulse and its feedback effect on the electron density distribution in the multilayer stack. Simulations are compared to experiments on HfO<sub>2</sub> and Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> films with pulses ranging from 45 fs to 1 ps. It is shown that this approach can improve the interpretation of femtosecond and picosecond laser induced damage in thin films. © 2010 American Institute of Physics. [doi:10.1063/1.3477961]

In the development of subpicosecond lasers, from table top lasers to tera/hexawatt class facilities, laser-induced damage to optical components is one of the main limitations. Such laser systems require specific coatings for controlling the light temporally (pulse compressors or stretchers), spatially (mirrors, beamsplitters, and polarizers), or spectrally (dispersive mirrors), and these coatings are often the weakest part when laser damage resistance is concerned. This issue is then one of the main concerns in the production of high quality coatings for short and ultrashort pulse lasers. In this field, it is of high interest for scientists and manufacturers to have available models for interpretation of damage phenomena and for describing the scaling of laser induced damage threshold (LIDT) as a function of operational parameters of the laser (pulse duration, wavelength, polarization, repetition rate, and number of pulses) and the multielectric stack (dielectric functions, band gaps, thicknesses, and design of the system). The damage of dielectric materials in the femtoseconds (fs) up to few picoseconds (ps) range can be understood as a result of electronic processes. Free electrons will be generated during the laser pulse up to a level where the electron density in the conduction band reaches a critical density.<sup>1</sup> The free-electron generation in dielectrics can be described by the rate equation (RE) (Ref. 1)

$$\frac{dN}{dt} = W_{PI}(E) + W_{AI}(E, N) - W_{Loss}(N). \quad (1)$$

The variation in the free electron density,  $N$ , in the material as a function of time and the electric field,  $E$ , depends on the rate of photoionization, ( $W_{PI}$ ), the rate of avalanche ionization, ( $W_{AI}$ ), and a relaxation rate, ( $W_{Loss}$ ), that takes into account relaxation of electrons from the conduction band to lower electronic states. The relative role of photoionization and avalanche ionization in dielectrics excited by fs pulses is in debate in the literature,<sup>2-6</sup> particularly below 100 fs. The different parameters used in avalanche ionization (AI) or photo-ionization (PI) models are also not perfectly known

(reduced mass used in the Keldysh expression, and the avalanche coefficient for instance). Furthermore, in the case of thin film materials, the material parameters can be quite different from their bulk counterparts and depend also on the deposition process. Then only the trends predicted by these models are usually used to interpret data. The RE has recently been used to scale the fs/ps-LIDT in dielectric thin films as a function of laser (pulse duration,<sup>7</sup> wavelength<sup>8</sup>) or material parameters (band gap).<sup>7</sup> It was proved to be a powerful approach on which we will base our interpretations in the following. In the case of photoionization, free carrier in the conduction band can arise either from tunneling (TI) or multiphoton (MPI) ionization. Using the Keldysh parameter,<sup>9</sup> it appears that in our experimental conditions, TI or MPI can occur. In this study, we then used the so called exact Keldysh theory for photoionization.<sup>9</sup> The corresponding reduced electron-hole mass for calculation of  $W_{PI}$  in the Keldysh expression is not known for the materials under study, especially in thin film form, and is usually used as a fit parameter in the literature. It has been set to the electron mass in our calculations. The Drude model of free carrier absorption has been used to get the avalanche coefficient. In this model another parameter, the Drude relaxation time, is unknown precisely for the materials under study. It has been set to  $10^{-15}$  s (Ref. 1) in the calculations. One of the particularities of thin films is the presence of optical interference effects that induce an electric field distribution that has to be taken into account for interpretations. The introduction of a correction coefficient in the RE has been suggested to deal with interference effects in optical coatings.<sup>10</sup> Using the RE, an arbitrary damage criterion must also be set. It has been proposed and used in numerous studies that damage occurs when the plasma frequency reaches the laser frequency,<sup>2</sup> i.e., where linear absorption of the laser energy starts to increase strongly and a runaway process can take place. The free electron density in this case reaches values of  $10^{21}$ – $10^{22}$  cm<sup>-3</sup>. Such electronic densities strongly affect the dielectric function of the material under irradiation.<sup>11,12</sup> The electronic density dependence of the refractive index can be described by the Drude model of free electron gas<sup>13</sup>

<sup>a)</sup>Electronic mail: laurent.gallais@fresnel.fr.

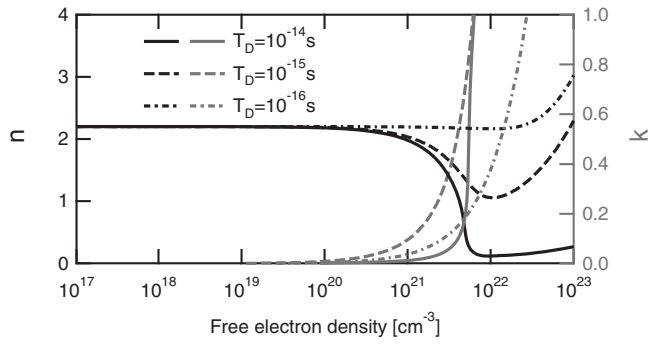


FIG. 1. Variation in the real ( $n$ ) and imaginary ( $k$ ) part of the complex index as a function of the free electron density, considering Eq. (2).

$$\tilde{n}(N) = \sqrt{n_0^2 - \frac{Ne^2}{m^* \epsilon_0 \omega^2 + i\omega/\tau_D}}, \quad (2)$$

where  $n_0$  is the refractive index of the unexcited material,  $m^*$  is the effective mass of electrons,  $\epsilon_0$  is the free space dielectric permittivity,  $\omega$  is the laser pulsation, and  $\tau_D$  is the Drude relaxation time. For illustration the variation in the complex refractive index of a coating material (hafnia) with electronic density is given in Fig. 1.

These changes in complex index will lead to modifications of the electric field repartition during the laser pulse. At the location of the peaks of standing electric-field, the optical response of the dielectric material initially due to the bound electrons will gradually acquire a metal-like behavior with free carrier effects. This can totally change the electric-field repartition during the pulse and the prediction obtained with models when applied to optical interference coatings. The ultrafast evolution of reflection and transmission properties of thin films during subpicosecond irradiation has experimentally been shown and attributed to the electric film modulation across the film.<sup>11</sup> In order to deal with these phenomena, the dependence of the electric field repartition on the complex index variations has to be taken into account. It can be done by adding the spatial and temporal variations in the electric field in the RE

$$\frac{dN^i(z,t)}{dt} = W_{\text{PI}}^i[E(z,t,N^i)] + W_{\text{AV}}^i[E(z,t,N^i),N^i] - W_{\text{Loss}}[N^i,t], \quad (3)$$

with the superscript “ $i$ ” referring to the layer,  $i$ , of the stack. Practically, to solve this equation each film “ $i$ ” of the stack can be divided in slices located at  $z_j$ , each slice being characterized by its electronic density,  $N_j$ , and refractive index,  $n_j(N_j)$ . The problem is then equivalent to a multilayer stack in which the electric field has to be recalculated for each time iteration when solving Eq. (3). This approach involves coupled differential equations that are solved numerically. The electric field distribution is calculated with the matrix method, which offers the ability to change the polarization and the incidence angle of the incoming wave.<sup>14</sup> A pulse laser with a Gaussian temporal shape is considered but arbitrary shapes can easily be implemented (addition of a pedestal for instance). The pulse however is considered to have a negligible spectral dispersion which can be a limitation of our approach in some multilayer systems. The spatial pulse length needs also to be large compared to the film thickness.

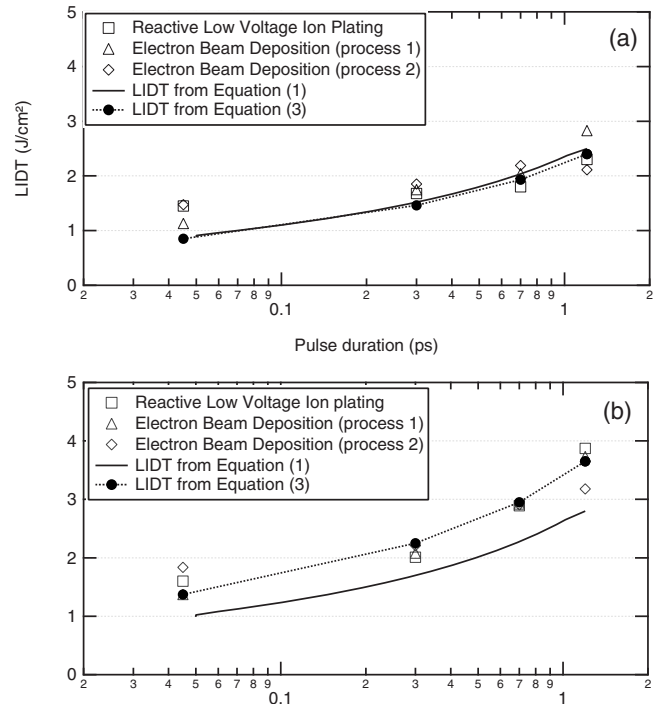


FIG. 2. Comparison of experimental measurements to theoretical prediction. (a) 2H hafnia single layers; (b) 2H/3 hafnia single layers.

As an experimental illustration of this effect, we chose two simple cases involving in each case only one material. One set of samples consist of hafnia single layers deposited on superpolished fused silica substrates. Two thicknesses were chosen (2H and 2H/3, where H represents one-quarter wave layer at 1030 nm), leading to different intensity repartitions and values in the stack. In the case of 2H thickness the intensity has two maxima: at the Air/film and film/substrate interface. In the second case (2H/3), it is maximum at the layer/substrate interface. The thin film properties depend on the deposition process and their characteristics can change with the deposited thickness. This can increase the complexity for interpretations. In order to bypass this difficulty, different set of samples were manufactured with three deposition process involving different materials and methods (see Ref. 15 and other references therein for the detailed deposition processes and characteristics). To avoid any experimental artifact resulting from the damage tests, three different independent facilities were used for this study (complete details of the measurements will be presented in another paper). The samples were tested with 1030 nm pulses of 45 fs, 300 fs, 670 fs, and 1.2 ps. The focusing element on each facility has been chosen in order to obtain laser spot sizes in the same range, i.e., between 30 and 50  $\mu\text{m}$ . Single shots were used in order to avoid any incubation or fatigue effects known to occur in thin film materials. A statistical approach involving 50 tested sites at each fluence was used to test the sample. Damage in our study is defined as an irreversible modification detected by a Nomarski microscope at higher magnification. The results of the measurements are given in Figs. 2(a) and 2(b).

Considering Figs. 2(a) and 2(b) independently, variations in damage threshold between the samples made with different deposition techniques can be observed. The analysis of this difference is not the subject of this paper but it can be linked to small differences in properties between the samples

(band gap, dielectric function). However, the same tendency is observed on all samples when comparing Figs. 2(a) and 2(b): the LIDT of 2H/3 layers is higher than the 2H layers. Depending on the samples, the increase in LIDT is between 10% and 25% at 45 fs, 20% and 25% at 300 fs, 30% and 60% at 600 fs, and 30% and 70% at 1.2 ps. The prediction based on Eq. (1) has been calculated and plotted on the figures. PI and AI rates discussed before have been taken for the calculation, with bulk material parameters, as well as a correction factor that takes into account interference effects in the coatings.<sup>10</sup> It should be noted that the values used for the calculations were not adjusted to fit the data since relative comparison were of interest. It can be seen from these theoretical results that the differences in LIDT between thick and thin films cannot be explained by the “classical” treatment. If we take into account the transient effects, as described in Eq. (3), a relatively good agreement is obtained between experiments and results to describe the LIDT dependence as a function of pulse duration. In the case of 2H layer, the E-field peaks are located at the air/film and film/substrate interface. The electronic density will then strongly increase during the pulse at these two locations. Calculations with Eq. (3) show that the E-field peak at the film/substrate interface is strongly reduced but the air/film interface value is weakly affected. Equations (1) and (3) provide then the same results and damage is located at the air/film interface. In the case of 2H/3 layer, the E-field peak is located at the film/substrate interface, where damage should occur according to Eq. (1). Calculations with Eq. (3) show that during the pulse, the E-field peak value is decreased which lead to higher damage thresholds from the prediction of Eq. (1).

Another set of samples, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> single layers deposited on superpolished fused silica substrates, were made. Four thicknesses were chosen: 4H, 2H, H, and H/2. The samples were tested at 1030 nm, 530 fs. The results and the comparison to the model described above are shown on Fig. 3.

Again, a relatively good agreement is obtained between experiments and results on the description of LIDT as a function of the film thickness. The description of fs/ps LIDT is then clearly improved with this approach.

Analysis of experiments in thin films requires precise knowledge of the temporal and spatial modulation of the electric field due to interference effects. A specific approach was developed and presented in this paper that allows one to take into account the changes in the dielectric function during the laser pulse. Several experimental examples have been given to illustrate the interest of our model. It can improve

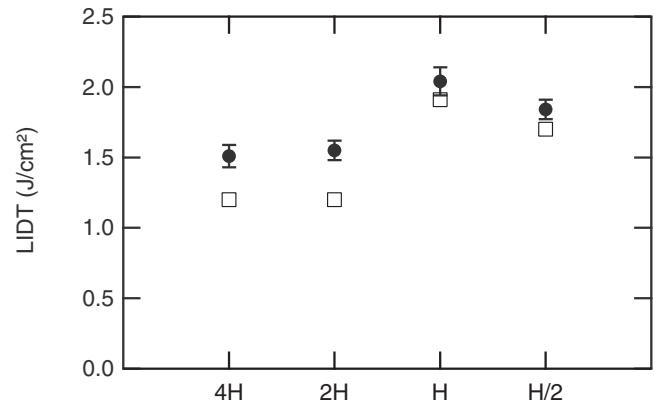


FIG. 3. Comparison of experimental measurements to theoretical prediction made on Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> single layers of different thicknesses. H represents one-quarter wave layer at 1030 nm.

the interpretation of fs and ps laser induced damage in thin films, and can be taken into account when designing damage resistant coatings.

The research leading to these results has received funding from the EC's Seventh Framework Program (LASERLAB-EUROPE, Grant Agreement No. 228334) and the Lithuanian French Program “Gilibert” (Lithuanian Science Council and French Foreign Ministry).

<sup>1</sup>N. Bloembergen, *IEEE J. Quantum Electron.* **10**, 375 (1974).

<sup>2</sup>D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3071 (1994).

<sup>3</sup>W. Kautek, J. Kruger, M. Lenzner, S. Sartania, C. Spielmann, and F. Krausz, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3146 (1996).

<sup>4</sup>M. D. Perry, B. C. Stuart, P. S. Banks, M. D. Feit, V. Yanovsky, and A. M. Rubenchik, *J. Appl. Phys.* **85**, 6803 (1999).

<sup>5</sup>T. Apostolova and Y. Hahn, *J. Appl. Phys.* **88**, 1024 (2000).

<sup>6</sup>F. Quéré, S. Guizard, and P. Martin, *EPL* **56**, 138 (2001).

<sup>7</sup>M. Mero, J. Liu, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke, *Phys. Rev. B* **71**, 115109 (2005).

<sup>8</sup>M. Jupé, L. Jensen, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, and D. Ristau, *Opt. Express* **17**, 12269 (2009).

<sup>9</sup>L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965).

<sup>10</sup>J. Jasapara, A. V. V. Nampoothiri, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke, *Phys. Rev. B* **63**, 045117 (2001).

<sup>11</sup>T. Q. Jia, H. Y. Sun, X. X. Li, D. H. Feng, C. B. Li, S. Z. Xu, R. X. Li, Z. Z. Xu, and H. Kuroda, *J. Appl. Phys.* **100**, 023103 (2006).

<sup>12</sup>T. Balciunas, A. Melninkaitis, G. Tamosauskas, and V. Sirutkaitis, *Opt. Lett.* **33**, 58 (2008).

<sup>13</sup>N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Brooks Cole, Belmont, 1976).

<sup>14</sup>H. A. Macleod, *Thin-film Optical Filters* (IOP, Bristol, 2001).

<sup>15</sup>L. Gallais, J. Capoulade, J.-Y. Natoli, and M. Commandré, *J. Appl. Phys.* **104**, 053120 (2008).

# Investigation of stress induced by CO<sub>2</sub> laser processing of fused silica optics for laser damage growth mitigation

Laurent Gallais,<sup>1,\*</sup> Philippe Cormont,<sup>2</sup> Jean-Luc Rullier<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institut Fresnel, CNRS, Aix-Marseille Université, Ecole Centrale Marseille, Campus de Saint-Jérôme, 13013 Marseille, France

<sup>2</sup>CEA CESTA, F-33114 Le Barp, France  
[laurent.gallais@fresnel.fr](mailto:laurent.gallais@fresnel.fr)

**Abstract:** 'Laser damage mitigation' is a process developed to prevent the growth of nanosecond laser-initiated damage sites under successive irradiation. It consists of re-fusing the damage area with a CO<sub>2</sub> laser. In this paper we investigate the stress field created around mitigated sites which could have an influence on the efficiency of the process. A numerical model of CO<sub>2</sub> laser interaction with fused silica is developed. It takes into account laser energy absorption, heat transfer, thermally induced stress and birefringence. Residual stress near mitigated sites in fused silica samples is characterized with specific photoelastic methods and theoretical data are compared to experiments. The stress distribution and quantitative values of stress levels are obtained for sites treated with the CO<sub>2</sub> laser in various conditions of energy deposition (beam size, pulse duration, incident power). The results provided evidence that the presence of birefringence/residual stress around the mitigated sites has an effect on their laser damage resistance.

©2009 Optical Society of America

OCIS codes: (140.3330) Laser damage ; (160.6030) Silica .

---

## References and links

1. J. Neauport, L. Lemaignere, H. Bercegol, F. Pilon and J.-C. Birolleau, "Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm," *Opt. Express* **13**, 10163-10171 (2005).
2. S. G. Demos, M. Staggs, and M. R. Kozlowski, "Investigation of processes leading to damage growth in optical materials for large-aperture lasers," *Appl. Opt.* **41**, 3628-3633 (2002).
3. R. M. Brusasco, B. M. Penetrante, J. A. Butler and L. W. Hrubes, "Localized CO<sub>2</sub> laser treatment for mitigation of 351 nm damage growth on fused silica," *Proc. SPIE* **4679**, 40-47 (2002).
4. R. Prasad, J. Bruere, J. Peterson, J. Halpin, M. Borden and R. Hackel, "Enhanced performance of large of optics using UV and IR lasers," *Proc. SPIE* **5273**, 288-295 (2003).
5. M. D. Feit and A. M. Rubenchik, "Mechanisms of CO<sub>2</sub> laser mitigation of laser damage growth in fused silica," *Proc. SPIE* **4932**, 91-102 (2003).
6. M. D. Feit, A. M. Rubenchik, C. D. Boley and M. Rotter, "Development of a process model for CO<sub>2</sub> laser mitigation of damage growth in fused silica," *Proc. SPIE* **5273**, 145-154 (2004).
7. E. Mendez, K.M. Nowak, H. J. Baker, F. J. Villareal and D. R. Hall, "Localized CO<sub>2</sub> laser damage repair of fused silica optics," *Opt. Express* **45**, 5358-5367 (2006).
8. G. Guss, I. Bass, V. Draggoo, R. Hackel, S. Payne, M. Lancaster and P. Mak, "Mitigation of growth of laser initiated surface damage in fused silica using a 4.6 μm wavelength laser," *Proc. SPIE* **6403**, 64030M (2007).
9. S. Palmier, L. Gallais, M. Commandré, P. Cormont, R. Courchinoux, L. Lemaignère, J-L Rullier and P. Legros "Optimization of a laser mitigation process in damaged fused silica," *Appl. Surface Science* **255**, 5532-5536 (2008).
10. I. L. Bass, G. M. Guss and R. P. Hackel, "Mitigation of laser damage growth in fused silica with a galvanometer scanned CO<sub>2</sub> laser," *Proc. SPIE* **5991**, C9910-C9910 (2005).
11. A. During, P. Bouchut, J. G. Coutar, C. Leymarie and H. Bercegol, "Mitigation of laser damage on fused silica surfaces with a variable profile CO<sub>2</sub> laser beam," *Proc. SPIE* **6403**, 40323-40323 (2007).
12. S. G. Demos, M. Staggs, K. Minoshima, and J. Fujimoto, "Characterization of laser induced damage sites in optical components," *Opt. Express* **10**, 1444-1450 (2002).

13. G. Guss, I. Bass, R. Hackel, C. Mailhiot and S. Demos, "In situ monitoring of surface post processing in large-aperture fused silica optics with optical coherent tomography," *Appl. Opt.* **47**, 4569-4576 (2008).
14. B. Bertussi, P. Cormont, S. Palmier, P. Legros and J.-L. Rullier, "Initiation of laser-induced damage sites in fused silica optical components," *Opt. Express* **17**, 11469-11479 (2009).
15. M. A. Stevens-Kalceff and J. Wong, "Distribution of defects induced in fused silica by ultraviolet laser pulses before and after treatment with a CO<sub>2</sub> laser," *J. Appl. Phys.* **97**, 113519 (2005).
16. S. Mainguy and B. Le Garrec, "Propagation of LIL/LMJ beams under the interaction with contamination particles and component surface defects," *J. de Phys. IV* **133**, 653-655 (2006).
17. M. J. Matthews, I. L. Bass, G. M. Guss, C. C. Widmayer and F. L. Ravizza, "Downstream intensification effects associated with CO<sub>2</sub> laser mitigation of fused silica," *Proc. SPIE* **6720**, A7200-A7200 (2008).
18. L. Lamaignère, S. Bouillet, R. Courchinoux, T. Donval, M. Josse, J.-C. Poncetta, and H. Bercegol, "An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials," *Rev. Scientific Instruments* **78**, 103105 (2007).
19. M. Von Allmen, *Laser-beam interactions with material*, (Spinger-Verlag, 1987).
20. A. D. McLachlan and F. P. Meyer, "Temperature dependence of the extinction coefficient of fused silica for CO<sub>2</sub> laser wavelengths," *Appl. Opt.* **26**, 1728-1731 (1987).
21. <http://optics.heraeus-quarzglas.com>
22. <http://www.comsol.com/>
23. J. Zarzyski, "Les verres et l'état vitreux", Masson (1982).
24. S. Huard, *Polarization of light*, (John Wiley and Sons, 1997).
25. Y. S. Touloukian, "Thermo-physical properties of matter vol.3 – Thermal conductivity of liquids and gases," IFI/Plenum, 1970.
26. F. Dahmani, J.C. Lambropoulos, A. W. Schmid, S. Papernov and S. J. Burns, "Crack Arrest and Stress Dependence of Laser-Induced Surface Damage in Fused-Silica and Borosilicate Glass," *Appl. Opt.* **38**, 6892-6903 (1999).
27. L. Xu, D. Lowney, P. J. McNally, A. Borowiec, A. Lankinen, T. O. Tuomi and A. N. Danilewsky, "Femtosecond versus nanosecond laser micro-machining of InP: a nondestructive three-dimensional analysis of strain," *Semicond. Sci. Technol.* **22**, 970-979 (2007).

## 1. Introduction

Laser damage of optical components is a main issue for high power laser systems. Particularly for ICF class lasers, the laser damage resistance of fused silica surfaces at 351 nm in the nanosecond regime is a major concern. Indeed such facilities involve many large and high-cost elements, such as windows, lenses, crystals, diffractive optical elements...etc. Although the polishing techniques of silica have been considerably improved, defects that can initiate damage are still present in the material [1]. Laser irradiations of these weak points lead to stress, cracks and absorption. The created damage grows under subsequent irradiations and makes the component unsuitable [2]. To avoid damage site growth, one of the most promising methods uses a CO<sub>2</sub> laser operating at a 10.6 μm wavelength to locally melt and evaporate the silica surface by producing typically smooth, Gaussian shaped pits [3]. The successful demonstration of this method [4] motivates theoretical and experimental work to improve the process. For instance, the influence of irradiation parameters with models taking into account heating, evaporation and stress generation has been studied [5,6]. Some parametric studies have been conducted in order to determine optimum irradiation conditions [7-9] and different protocols have been developed to increase the efficiency of the technique [10,11]. Dedicated tools have also been developed to characterize the damages sites and the mitigated area [12-14]. The material structural changes induced by CO<sub>2</sub> laser processing of damage have also been investigated [15]. Other studies on the downstream intensification effects associated with the perturbation to the optical surface profile following the mitigation process were also conducted [16,17].

In this context, it has been observed that after 355 nm irradiation, of a zone that has received CO<sub>2</sub> laser treatment, new damages always occur in the surrounding area of the crater, even when the surface is free from any visible defects or silica re-deposition. The understanding of the silica weakening and the apparition of damage around the mitigated site is then of major interest for the optimization of the mitigation process. This motivation was completed by the observation that the same effect is obtained when a crater is created on a blank sample with no initial damage. The objective of our work is then, to investigate the stress generated around the mitigated sites, of an un-damaged silica sample, by the heating



and cooling process, and study its influence on the laser damage resistance of the treated sites. Another motivation of this work is that the link between laser damage and local stress is still unclear.

To address this issue, first the experimental details of stress measurements and laser damage testing are given, with a focus on the different photoelastic tools that have been implemented for this study. Secondly, we describe a simple model to obtain the stress distribution in the CO<sub>2</sub> heated material that we have developed for the interpretation of photoelastic measurements. Finally, calculated values of stresses and strains around the mitigated sites are compared with experiments, and the stress influence on the laser damage resistance is discussed.

## 2. Experiments

The samples under investigation in this study are specimen of UV fused silica (Corning 7980), polished by SESO, 50 mm in diameter, and 5 mm thick. On these blank samples, craters were created by CO<sub>2</sub> laser irradiation with various parameters (power, irradiation time, beam diameter). Laser damage tests were performed to analyze the damage initiation process on these sites and the residual stress field around the craters was characterized with photoelastic tools. For each set of parameters, 30 craters were created and analyzed. The results given in this paper are then based on a statistical analysis on these samples.

### 2.1 CO<sub>2</sub> Laser mitigation procedure

The CO<sub>2</sub> laser used for silica irradiation is a Synrad Firestar V20, operating at 10.6 μm wavelength with a 20 W maximum power. The beam is focused with a ZnSe lens with a 10 in. focal length. The latter is mounted on a z translation stage to adjust the beam diameter on the sample from 200 μm to 800 μm measured at 1/e<sup>2</sup>. More details about the experimental arrangement can be found in reference [9].

The irradiation conditions were adjusted to create 20 μm to 50 μm deep craters, which corresponds to the depth of typical damages that we need to treat for the laser mitigation process of LMJ optics [14]. The different set of parameters that were used in this study, with the corresponding crater dimensions are listed in table 1.

**Table 1: Details of the different irradiation conditions and dimensional characteristics of the CO<sub>2</sub>-craters studied. The crater dimensions are measured with an optical profiler.**

Case	Irradiation parameters			Crater dimensions	
	Diameter (1/e <sup>2</sup> )	Pulse duration	Power	Diameter	Depth
1	300 μm	0.25 s	2.5 W	130 μm	24 μm
2	300 μm	1 s	2.5 W	145 μm	35 μm
3	460 μm	0.25 s	3.4 W	150 μm	25 μm
4	460 μm	1 s	3.4 W	180 μm	43 μm
5	550 μm	0.25 s	4.5 W	180 μm	27 μm
6	550 μm	1 s	4.5 W	260 μm	54 μm

### 2.2 Laser damage tests procedure and results

Laser damage resistance tests are performed with a Nd:YAG table-top laser, which delivers a pulse length of 2.5 ns at 355 nm with a diameter of 0.9 mm at 1/e<sup>2</sup> at the sample surface [18]. The beam is centered on the crater to be tested and the fluence is increased until damage

occurs. The damage detection is made *in situ* by monitoring a scattering signal, completed with a mobile microscope.

On the different craters that were created with the parameters given above, damages were systematically initiated in an area surrounding the crater. An illustration of this behavior is given in Fig. 1a, and the part b of the figure shows that even after damage growth the localization follows a circle.

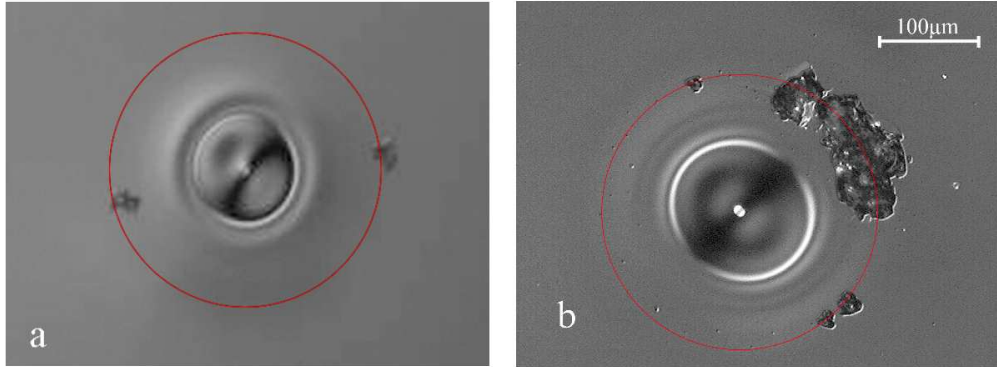


Fig. 1. Observation by Nomarski microscopy of mitigated sites after the laser damage test procedure. a- after one shot at 11J/cm<sup>2</sup>, b- after 10 shots at 11J/cm<sup>2</sup>. The red circle is plotted to evidence the circular symmetry of the damage appearance.

As indicated by the red circle, the location of the 'weak' area regarding the laser damage resistance is circular and centered on the crater. For the different cases that we have tested, similar behavior has been obtained. Moreover, we have observed that this “damage initiation diameter” depends on the parameters used to create the crater. The relationship between this diameter ( $\phi_{damage}$ ) and the crater diameter ( $\phi_{crater}$ ) is given in Fig. 2.

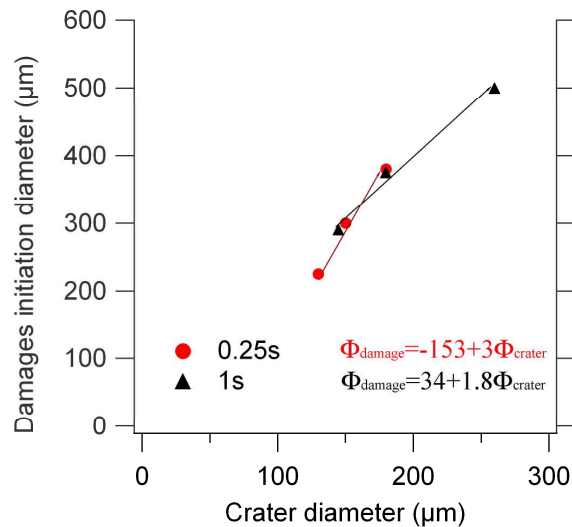


Fig. 2. Relation between the “damage initiation diameter” and the crater diameter.

These measurements reveal for each pulse length a clear proportionality between the “damage initiation diameter” and the crater dimension. A factor 3 and 1.8 are respectively found for 0.25s and 1s length of irradiation.

If the laser damage tests permit us to delineate this 'weak' area, no indication on the origin of the weakness can be obtained with this test. Different investigations conducted by Nomarski and dark field microscopy have not shown any correlation between visible defects or contaminants due to silica evaporation and location of the damages. Indeed, whereas the surrounding area of the crater is uniformly polluted on an area extending far away from the crater, damage occurs at a precise location.

### 2.3 Photoelastic measurement setup and results

The laser processing of silica involves heating at high temperature and rapid cooling which can produce some stress in the material. We have therefore implemented some tools to evaluate the stress and study its potential correlations with laser damage. Since we are investigating a transparent material, a photoelastic method was chosen for evaluating and measuring the stresses around the mitigated sites. The method is based on the property of birefringence which is exhibited by certain transparent materials under stress. It consists in measuring the phase retardation, and hence the refractive indices, between two waves polarized along two directions of stress. The advantages of such methods is that they are non-invasive and do not necessitate any preparation of the samples.

Two complementary experimental set-ups were developed to localize the stress area and to measure quantitatively the birefringence. The first one is a polariscope, described in Fig. 3. The silica sample, illuminated with a collimated white light source, is placed between two cross polarizers and observed with a long working distance microscope associated to a cooled camera. The microscope is a BXFM from Olympus.

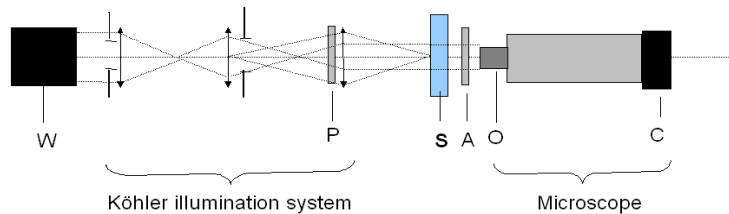


Fig. 3. Polariscope developed for the observation of mitigated sites. W: White light collimated source, P/A: high contrast polarizer and analyzer (10000:1); S: silica sample; C: Camera (12.5 million-pixel, 12-bits, cooled color camera), O: long working distance objective (X10).

In this configuration, the stress-induced anisotropy in the sample will result in a light pattern associated to the stress distribution. An example of the pattern observed when looking at mitigated sites with this setup is given in Fig. 4.

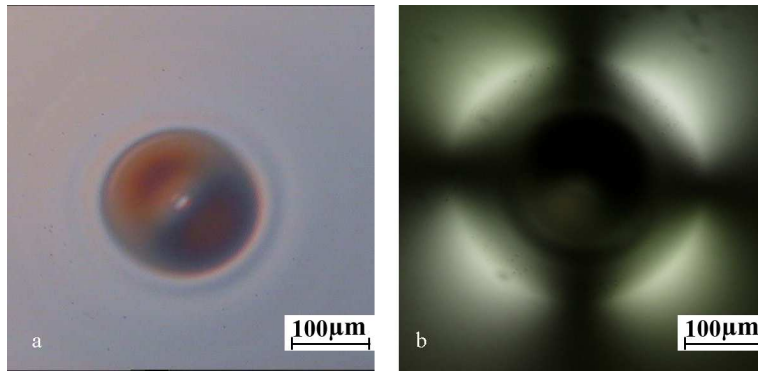


Fig. 4. Observation of a mitigated site, with parameters of the case 4, by Nomarski microscopy (a) and with the polariscope (b).

A maximum of retardance is evidenced around the crater, and from this position the retardance decreases rapidly in the inner part, and decreases slowly on the outer part. The measured retardance in the different cases under study is less than one wavelength.

Because of the structure of the crater the stress distribution has an azimuthal symmetry. The directions of principal stresses are parallel or orthogonal to the radius as represented in Fig. 5a. The local birefringence depends on the difference between these two principal stresses. When the light is polarized along a stress direction it remains linearly polarized and no light can pass through the cross polarizer, which happens for four different directions as shown in Fig. 5b. On the contrary a maximum retardance occurs when the light is polarized at  $45^\circ$  with respect to the two principal stress directions, which describes the pattern observed in Fig. 4b.

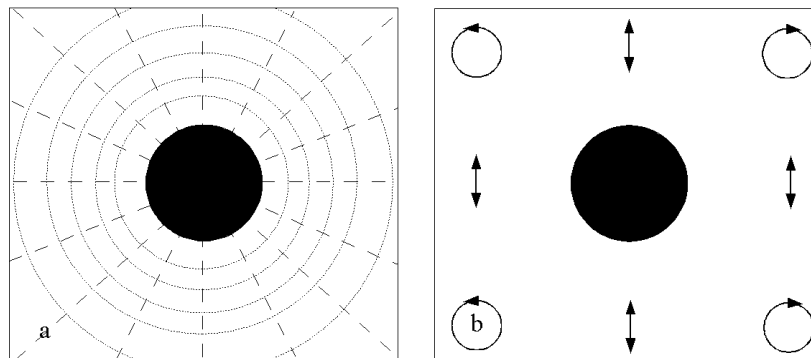


Fig. 5. a. The principal directions of the stress around the mitigated site, which are either parallel or orthogonal to the radius. b. Schematic representation of the resulting polarization state at the output of a mitigated site for incident light linearly polarized in the vertical direction.

The measurements made on the cases under study reveal that the craters have comparable stress pattern characteristics but the maximum retardance have location and magnitude depends on the irradiation parameters. The location of the “maximum retardance diameter” ( $\phi_{max\ ret}$ ) has been evaluated by analyzing microscope images and related to the crater diameter ( $\phi_{crater}$ ) in Fig. 6.

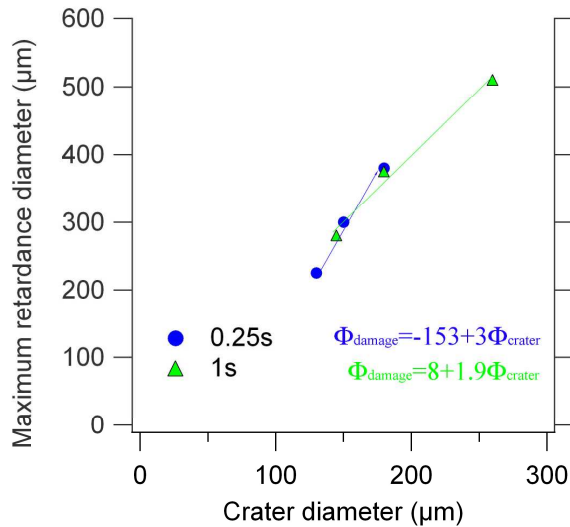


Fig. 6. Relation between the “maximum retardance diameter” and the crater diameter.

As previously observed for the damage position, for each pulse length a linear relationship links the “maximum retardance diameter” and the crater diameter. By comparing these results with those of the Fig. 2, it appears clearly that damage is initiated close to the location where the retardance is maximum. This relation is obvious when one looks at the damaged craters under the polariscope. In Fig. 7, two extreme parameter conditions, more representative than the 6 cases under study, are shown. They indicate unequivocally that the damage occurs at a radius where the retardance is maximum. This happens regardless of whether the radius is large or small as shown in the Fig. 7.

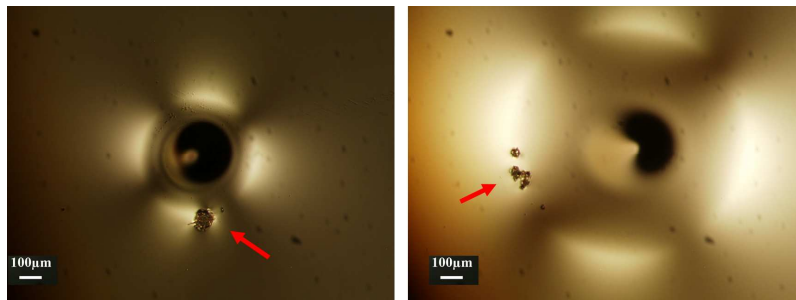


Fig. 7. Observation of two craters with the polariscope. The damages are indicated with the red arrows. Notice that the polarizers were not perfectly orthogonal in order to image simultaneously the sample surface and the stress field.

Since polariscope is not suitable for obtaining a calibrated measure of retardance, a second setup, described in Fig. 8, has been implemented. A polarized He-Ne laser beam is focused on the sample surface with approximately 5 μm diameter. A second lens is used to collimate the beam before passing through a Soleil-Babinet compensator. The retardation of the compensator is adjusted to reduce to zero the amount of light passing through the analyzer oriented perpendicular to the input polarization. In this configuration the retardation induced by the sample can be obtained. The sample being mounted on a XY translation stage, the birefringence can be measured at different locations.

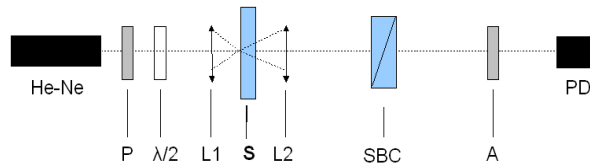


Fig. 8. Experimental setup for measuring birefringence with a Soleil-Babinet compensator (SBC). He-Ne: 0.5mW Helium-Neon Laser; P/A: high contrast polarizer and analyzer (10000:1);  $\lambda/2$ : half wave plate; L1: microscope objective (X20); S: silica sample; L2: microscope objective (X10).

The maximum retardance has been measured with the compensator setup, for the 6 cases studied. The results are given in Fig. 9 as a function of the crater depth.

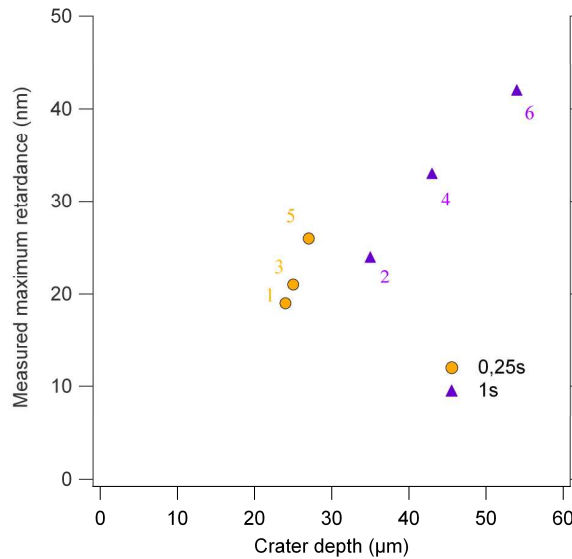


Fig. 9. Relation between the maximum retardance measured and the crater depth for the 6 cases under study.

These measurements show that the maximum retardance measured depends strongly on the irradiation parameters. As for the location of the maximum retardance, for each pulse length a quasi-linear relation links the quantitative value of the maximum retardance with the crater depth. The retardance value is associated to the stress level that we want to evaluate. However, there is no direct proportionality between the retardance and the stress level since the retardance is integrated over the thickness of the sample. Hence a low level of stress extending far from the surface and a high level of stress near the surface can lead to the same results. Thus a model is needed to obtain an interpretation of the measurements.

### 3. Theoretical analysis

In order to evaluate the temperature reached and the stresses generated during CO<sub>2</sub> laser irradiation of fused silica, a numerical model has been developed. The objective of our approach is to be able to quantify the stresses, strains and induced birefringence generated around the crater by the mitigation process. Given the symmetry of the study, the geometry used to solve the heat equation is 2D axi-symmetric, as shown in Fig. 10.

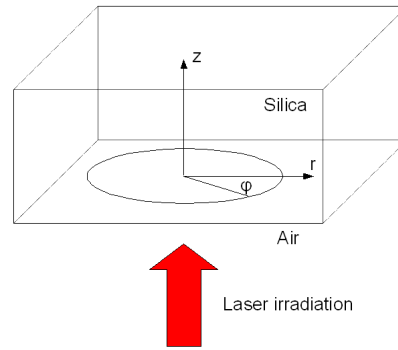


Fig. 10. Geometry used in the model

### 3.1 Temperature distribution

The energy of the CO<sub>2</sub> laser beam is absorbed by the silica. It generates a heat source  $Q$  during the irradiation time in the material. In our case of a Gaussian laser beam, the heat source can be expressed as [19]:

$$Q = \alpha \frac{(1-R)P}{\pi a^2} \exp\left(-\frac{r^2}{a^2}\right) \exp(-\alpha z) \quad (1)$$

with  $a$  the radius waist at  $1/e$ ,  $P$  the incident laser power (considering a constant laser power during the irradiation time),  $R$  the Fresnel reflection coefficient and  $\alpha$  the absorption coefficient. The absorption coefficient of silica at 10,6  $\mu\text{m}$  is temperature dependent. To take into account this variation, we have used the experimental data reported by McLachlan and Meyer [20]. As concerns the Fresnel coefficient (which depends of the refractive index) we have not found any significant variation with the temperature in the literature.

To calculate the temperature distribution around a mitigated site, we have only considered heat transfer by conduction: radiation losses which occur at high temperature are taken into account with the non-linearity of the thermal conductivity with temperature. We do not consider in our calculation the evaporation of material during the irradiation, indeed this case is much more complex to model and we are only interested in the thermal gradient far from the center. Therefore the results obtained at the position where experimentally a crater is observed are not valid.

In the silica, the heat equation for conductive heat transfer is:

$$\rho C \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (-k \nabla T) = Q \quad (2)$$

where  $T$  is the temperature,  $\rho$  the density,  $C$  the heat capacity, and  $k$  the thermal conductivity. The thermal parameters of silica are temperature dependent. Particularly the thermal conductivity, which is the key parameter governing the temperature rise, increases with temperature. We have used in our simulations the data on fused silica given by glass manufacturers [21].

Finally, the equation is numerically solved using the commercial software COMSOL Multiphysics, version 3.2 [22]. The mesh element is triangular. Its surface is around  $50 \mu\text{m}^2$  in the strongly heated area. This surface is increased when moving from this position up to  $10^4 \mu\text{m}^2$  on the sample edges. Boundary condition is an inward heat flux on the surface exposed to laser, and thermal insulation on the other surfaces of the sample. A solution calculated for the case 3 of our study is given in Fig. 11.

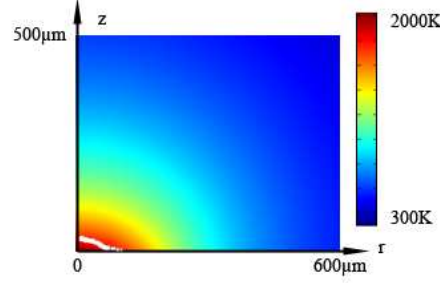


Fig. 11. Calculated temperature distribution in fused silica at the end of the CO<sub>2</sub> laser irradiation for parameters of the case 3. The crater is delimited by the white line.

From this calculation, it can be seen that the heated area extends far beyond from the crater dimensions delimited by the white line. The spatial distribution of temperature follows the crater shape, and decreases slowly with distance. It is important to notice that in the crater vicinity, the calculated temperature is not valid because the material removed as the crater is shaped is not included in our simple model.

### 3.2 Stress and strains

After laser heating, when the material cools down, the viscosity rapidly increases [23] and stresses cannot be relieved by materials displacements. It appears that whatever the irradiation parameters (for the six cases of our study) the area where the maximum retardance is experimentally observed corresponds to a calculated temperature reached at the end of the pulse between 1300 to 1400°C. These values have to be compared to the strain temperature (1100°C) and the softening temperature (1600°C) of fused silica [23]. The strain point is the temperature at which internal stress in a piece of glass is substantially relieved and the softening point corresponds to the transition from 'soft' to solid material. For low temperatures compared to these values the stresses can be considered as imprinted into the material after heating because of the very high viscosity. Then far away from the crater the residual stress present in the material corresponds to the stress at the end of the pulse. However near the center the stress can be relieved due to material displacement in the created hole. This could explain the retardance pattern experimentally observed.

In our approach the stresses are calculated at the end of the laser pulse. As said above, for temperatures below a limit between 1100 and 1600°C, the stresses can be treated as imprinted into the material. Thus we can only consider stress values obtained below this range of temperature. This is certainly a limitation, but it seems sufficient to deal with our problem since we are only interested in the stress field at a distance from the crater where the temperature rise is moderate.

The laser heating of the glass generates material displacements due to thermal expansion. The thermal expansion coefficient value of silica is  $5 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$  and does not vary significantly with temperature [21]. In our case the material displacement have components in the  $r$  and  $z$  directions that will be called  $u$  and  $w$  respectively. The strain-displacement relationships in the case of small displacements are given by:

$$\varepsilon_r = \frac{\partial u}{\partial r}; \varepsilon_\phi = \frac{u}{r}; \varepsilon_z = \frac{\partial w}{\partial z}; \gamma_{rz} = \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial r} \quad (3)$$

with  $\varepsilon_r$ ,  $\varepsilon_\phi$ ,  $\varepsilon_z$  the strains in the  $r$ ,  $\phi$ ,  $z$  directions and  $\gamma_{rz}$  the shear strain in the  $r z$  plane. The stresses consisting of three normal stresses ( $\sigma_r$ ,  $\sigma_\phi$ ,  $\sigma_z$ ) and one shear stress ( $\tau_{rz}$ ), are related to the strains in the case of elastic deformation:

$$\sigma_{ij} = D_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (4)$$



with  $D_{ijkl}$  the elasticity tensor which depends on Young's modulus ( $E=7.2 \times 10^{10} \text{ N.m}^{-2}$ ) and Poisson's ratio ( $\nu=0.17$ ) [23].

A solution calculated for the case 3 is given in Fig. 12.

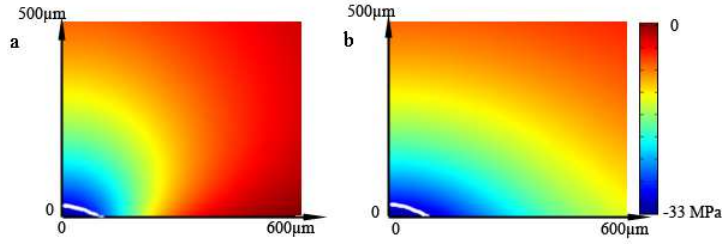


Fig. 12. Calculated hoop (a) and radial (b) stresses in fused silica at the end of the CO2 laser irradiation for the parameters of the case 3. The crater is delimited by the white line.

The calculations indicate that a compressive stress of few tens of Mpa can be reached under the irradiation conditions and that the stress affected area extends far away from the crater. However, near the crater, the stress can be relaxed after the irradiation because of the presence of the hole in the material (material displacement can occur) and the calculation is not valid.

### 3.3 Birefringence

To be able to compare our calculations with experimental results, we have to link in our model the stress to the retardation of linearly polarized plane waves traveling along the  $z$  direction, as it is the case in the experiments. If we consider a wave polarized in the  $r$  direction, called  $E_r$ , and the corresponding perpendicular polarization  $E_\phi$ , we can work for simplicity in the local Cartesian coordinates  $x, y, z$  as defined on the Fig. 13.

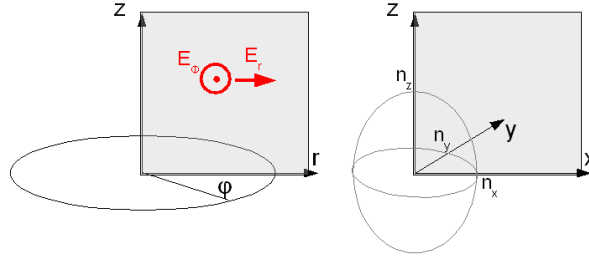


Fig. 13. Description of the index ellipsoid as used in our calculation.

The coefficient refractive index of a material subject to elastic stress can be written in the local Cartesian coordinates defined above as [24]:

$$\frac{1}{n_{ij}^2} = \left[ \frac{1}{n_{ij}^2} \right]_{[\sigma]=0} + \Delta \frac{1}{n_{ij}^2} \quad (5)$$

with  $i$  and  $j = x, y$  or  $z$ .

The refractive index variations and the strains  $[\varepsilon]$  are related by the photoelastic tensor  $[p]$ :

$$\Delta \frac{1}{n_{ij}^2} = p_{ijmn} \varepsilon_{mn} \quad (6)$$

In a first order approximation and considering the photoelastic tensor of an isotropic media [24], the refractive indices  $n_x$  and  $n_y$  can be expressed as:

$$n_x = n_0 - \frac{1}{2} n_0^3 \left[ p_{11} \varepsilon_x + p_{12} (\varepsilon_y + \varepsilon_z) \right] \quad (7)$$

The birefringence  $B$  is defined as the difference of  $n_x$  and  $n_y$  refractive indices:

$$B = n_x - n_y = \frac{1}{2} n_0^3 [p_{11}(\varepsilon_x - \varepsilon_y) + p_{12}(\varepsilon_y - \varepsilon_x)] \quad (8)$$

with  $n_0=1.46$  the stress-independent refractive index of fused silica at  $0.633 \mu\text{m}$ ,  $p_{11}=0.121$  and  $p_{12}=0.270$  at  $0.633 \mu\text{m}$  for fused silica [24].

The retardance can be calculated:

$$\Gamma = \int_0^e B(z) dz \quad (9)$$

with  $e$  the sample thickness. The calculated retardance for the case 3 is finally given in Fig. 14.

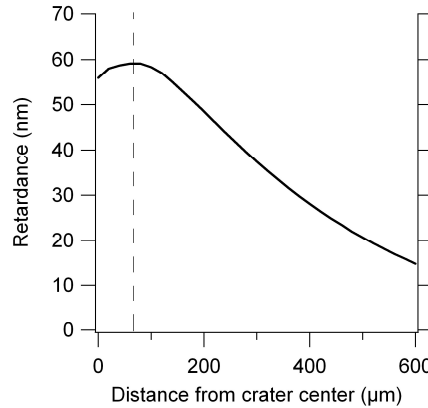


Fig. 14. Theoretical retardance for the case 3. The crater diameter is delimited by the dashed line.

As observed in experiments a maximum of retardance is observed near the crater, and from this position the retardance decreases slowly in the outer part of the crater. However the maximum is not at the right place compared to measured ones. The same behavior is observed for the other cases. This calculations will be compared to measurements in the next section.

#### 4. Discussion

For the two  $\text{CO}_2$  pulse lengths used in this study, a comparable behavior has been observed and we will restrict our discussion to the three cases using 250 ms duration. From the simple model developed in the preceding part of this paper, we can visualize for the fused silica surrounding the crater, the distribution of strains at the end of the  $\text{CO}_2$  laser irradiation. In parallel, the experimental measurement presented earlier gave a precise position for the maximum retardance. Confrontations between experiment and simulation are then given in Fig. 15, where the measured maximum retardance (which is proportional to the integral of the difference of refractive indices along the dashed white line) is positioned on the calculated strain repartition. Each image corresponds to one of the case 1, 3 and 5 under study for both radial (a) and hoop (b) strains.

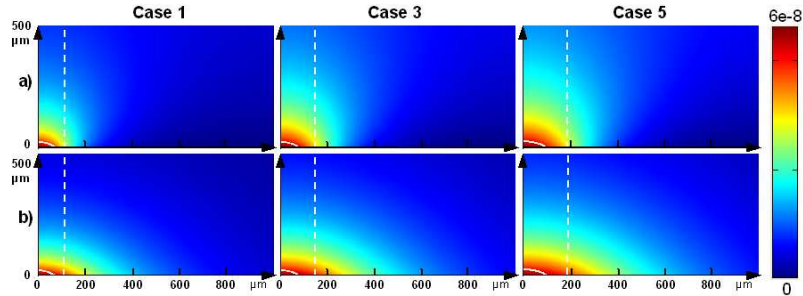


Fig. 15. Calculated strain repartition in fused silica at the end of the CO<sub>2</sub> laser irradiation for parameters of the three cases with a pulse length of 250 ms. Radial strains are represented on the upper part (a), and hoop at the lower (b). Craters sizes and positions of each maximum of retardance are indicated with a full and dashed white line respectively.

Similar behavior is obtained for the three cases, and the strain area expands following the increase in crater size. The hoop strain (b) decreases with distance from the crater. However, the contours of constant strain maintain a shape similar to the crater. The radial strain (a) also exhibits this behavior, but decreases much more rapidly along the silica-air interface. The position of the experimental maximum retardance corresponds to a distance from the center where the two calculated strains are noticeably different along the depth axis, but still with a high level. For the three cases 1, 3 and 5, their theoretical values are respectively 48, 53 and 55 nm, which is of the same order as experimental results given in Fig. 9 (19, 21 and 26 nm). As mentioned above, the crater area and its nearby proximity are not well simulated with our model, which explain that simulation values are greater by a factor comprised between 2.1 to 2.5. Taking into account the material removal, and a better kinetic of cooling for silica would reduce significantly this disagreement. In addition, some parameter values are not known perfectly: concerning the thermal conductivity, different experimental and theoretical data are available in the literature, sometimes with large discrepancies as can be observed in the data summarized by Touloukian [25].

On the one hand we know from the experiment that the maximum retardance position and the damage initiation are tightly correlated. On the other hand, Fig. 15 shows clearly that when the crater diameter increases, the maximum retardance gets farther from it and originates from a wider strain area. Thus for an equivalent value of retardance, we can look forward to a smaller effect on the damage creation for a larger crater size.

Laser damage resistance tests performed with our Nd:YAG laser at a fluence of 11 J/cm<sup>2</sup>, show that only 10 % of crater sites were damaged in the case 5 where the maximum retardance was measured at 190 μm from the crater center, whereas more than 80 % are damaged in the case 1 for which the distance is 130 μm. For the intermediate case 3, about 20 % of sites are damaged at a distance of 150 μm.

Even if these results seem to confirm our hypothesis, they are not sufficient to conclude at a direct connection between damage initiation and silica stress. Indeed, for the three cases, although an unambiguous difference is obtain for the damage initiation, the stress values at the position of the maximum retardance and at the silica surface (where damages arise) are comparable: about 25 Mpa for the radial, and comprised between 15 and 20 Mpa for the hoop. Our study indicates a clear link between the stress and the laser damage resistance. Previous works by Dahmani et al. [26] have also shown a relationship between stress and laser-induced damage in silica (in their case an enhancement of threshold with external applied stress). However the physical mechanisms implied are unclear and still more work are needed to investigate the relationship between the stress level and the laser damage initiation.

## 5. Conclusion

As mentioned in the introduction of this paper, the objective of our work was the understanding of the silica weakening and re-initiation of damage around the mitigated sites.

We have realized an experiment focusing on six different CO<sub>2</sub> laser parameters. We have shown that for all the six cases, that have been irradiated with a Nd:YAG nanosecond laser, the damage initiation has occurred on a peripheral area free from any visible defects and submitted to a high level of stress. In order to estimate the stress value in this area and understand the potential weakness of the material, we have measured the retardance and a model has been established to link the retardance to the stress. From these results, it comes out that even if the theoretical and experimental values are of the same order of magnitude there is an overestimation of the retardance with our model. However, these results can be very useful since they give a good indication of the stress levels induced by the CO<sub>2</sub> laser processing of fused silica: few tens of Mpa of compressive stress occurring near the surface at a distance of twice the crater size (in our irradiation conditions).

We have evidenced a correlation between the place where damage takes place and the location of the maximal residual retardance around the mitigated site. Then again an extensive work that we will consider in a near future involving local analysis (micro-Raman spectroscopy for instance is well adapted [27]) associated with an accurate metrology of LIDT is needed to understand the potential mechanisms that can be involved. Also, we have developed a thermo-mechanical model of CO<sub>2</sub> laser interaction with fused silica with applications in the optimization of the mitigation of damage growth process. The perspectives on this point are now to take into account the material removal by evaporation and recalculate the stresses more accurately.

## Investigation of nanod defect properties in optical coatings by coupling measured and simulated laser damage statistics

Laurent Gallais,<sup>a)</sup> Jérémie Capoulade, Jean-Yves Natoli, and Mireille Commandré  
*Institut Fresnel (UMR CNRS 6133), Université Aix Marseille, Ecole Centrale Marseille, Domaine  
 Universitaire de St Jérôme, 13397 Marseille Cedex 20, France*

(Received 20 May 2008; accepted 1 July 2008; published online 10 September 2008)

We propose a model to link laser damage initiator properties (such as nature, size distribution, and density) to measured laser damage probabilities in optical materials. The model is based on the calculation of light absorption in nanoabsorbers and subsequent heating, coupled to laser damage statistics, and allows to obtain the laser damage probability as a function of laser fluence. Applications to the case of optical coatings irradiated in the nanosecond regime are presented. Laser damage probability curves are measured in hafnia single layer coatings made under different conditions: electron beam deposition and reactive low voltage ion plating. By studying the influence of the laser irradiation parameters (wavelength and beam size) and coating properties on the simulations, we show with our methodology that initiating defects (hafnium inclusions) can be identified. The implications of this approach for physical understanding and metrology applications are discussed. © 2008 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.2975179]

### I. INTRODUCTION

Laser damage of dielectric thin films in the nanosecond regime is mainly initiated by nanometric absorbing defects<sup>1-3</sup> inherent to the manufacturing process. An identification of these defects and understanding of the damage mechanisms could lead to the improvement of the manufacturing process. However, in the case of high quality coatings, the defects are not detectable by conventional techniques before any macroscopic damage occurs. Hence their nondestructive detection is still an issue for the community.

Since laser damage is linked to defects, damage initiation is localized and probabilistic. A useful method to obtain information on the damaging defects is to study the laser damage statistics: for instance, plotting the laser damage probability as a function of fluence. Simple models have been developed in order to relate the defect properties (such as the density) and experimental parameters (such as the spot size) to the damage statistics.<sup>4-9</sup> This is done by assuming that the probability of damage is the probability that a defect with a certain intrinsic threshold is present in the irradiated area where the fluence is higher than the defect threshold. With the defects being unknown, different hypotheses were made about the defect ensembles and their threshold distribution (Dirac, power law, Gaussian law, etc.). Recently, thermal models coupled to statistics were proposed, based on damage initiation by heating of size-distributed inclusions<sup>10,11</sup> or cluster of defects<sup>12</sup> to a critical temperature. These approaches have proved to be successful for the qualitative interpretation of experimental data, such as temporal and wavelength dependence of the damage probability, and conditioning effects in the case of potassium dihydrogen phosphate (KDP) crystals.

In the case of optical coatings, a first attempt to extract the physical properties of defects from laser damage mea-

surements was presented in Ref. 13: it was shown by comparing laser damage statistics and heat transfer in absorbing inclusions that the complex refractive index and the size of precursors could be estimated. In this paper we go further in these investigations using the nanoabsorber model to identify (or eliminate) potential defects in optical coatings, responsible for initiation of damage. The spot size dependence is considered up to the case of very small beam sizes (few micrometers diameters). Furthermore the cases of surfaces, bulk materials, and thin films are addressed.

In the first part Section II, we detail the model developed for this study. It is based on the calculation of absorption of spherical absorbers, then solving of the heat equation for nanosecond pulsed laser irradiation and calculation of the laser damage probability taking into account the defect size distribution and density. In Section III, dedicated to experiments, the samples under study (hafnia monolayers) and their fabrication processes are described. The experimental setup used to measure laser damage probability curves with high accuracy is detailed. The results of the laser damage tests made in one on one mode with different spot sizes and wavelengths are given. These results are analyzed and discussed in Section IV: the model is applied to fit the results in order to identify potential initiating defects.

### II. MODEL

The aim of the model is to simulate laser damage probability curves by calculating the fluence necessary to initiate damage as a function of the defect properties. Nevertheless we want to keep the model as simple as possible and reasonable simplifications can be made for this. Below we detail the different assumptions that have been made, and discuss their validity and limitations.

- The precursors are assumed to be spherical. Non-spherical shapes (rods and plates) can also be

<sup>a)</sup>Electronic mail: laurent.gallais@fresnel.fr. URL: www.fresnel.fr.

considered,<sup>14</sup> but are more adapted to the case of crystals where planar defects, for instance, can be involved.

- Precursors have a size distribution and a homogeneous density. The size distribution is of course unknown. We consider that the size distribution follows a power law, as commonly observed for clusters embedded in solid materials.<sup>15</sup> This is detailed in Sec. II C. Another approach<sup>12</sup> is to consider a random distribution of identical defects (same size) that can aggregate and thermally cooperate to create damage. In fact, this approach is very similar since the critical element is the cluster size and the distribution in size.
- All parameters are independent of the temperature. Particularly the thermal parameters of the inclusion certainly vary with temperature, but it has been shown that large variations in the thermal properties of the defect only weakly affect temperature predictions by the inclusion-dominated model of laser-induced damage.<sup>16</sup>
- Because of the small size of considered precursors in comparison with the thermal diffusion length, the energy deposition is considered uniform throughout the precursor.
- We assume that damage is reached when the temperature of the surrounding matrix exceeds a critical value (for instance, the melting point). This is an arbitrary criterion, but it is based on the fact that above a critical temperature a thermal runaway process takes place,<sup>17</sup> leading to damage. We can note that the maximum temperatures reached in our approach are relatively low compared to the one measured in the real process which can reach 10 000 K.<sup>18</sup>
- Only losses by heat conduction are considered. This is certainly a limitation since it has been shown that energy transfer by radiation has to be taken into account in the laser damage mechanism.<sup>19</sup>

## A. Optical and thermal properties of inclusions

When dealing with nanometric to micrometric defects, it is usual to consider in calculation the bulk material properties. However, for small particles the dielectric function “ $\epsilon$ ” depends on the particle size and differs from the bulk values because of the increasing importance of the surfaces compared to the volume, the change of the atomic structure, and the inhomogeneities of the electron density. We want to use the Mie theory to evaluate the absorption of a defect; thus we need of course to use the appropriate dielectric function. Consequently the problem is to first find the size limit for the validity of bulk value and second to find a model that describes  $\epsilon$  as a function of the size.

In the case of metals, if we consider the Drude model, the complex dielectric function can be expressed as

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\Gamma)}, \quad (1)$$

where  $\omega_p$  is the plasma pulsation and  $\Gamma$  is a damping term. This coefficient is related to the electron mean free path  $l$  by

$\Gamma = v_F/l$ , where  $v_F$  is the Fermi velocity. The mean free path in the case of the bulk material (denoted as  $l_\infty$ ) is linked to interactions with phonons, electrons, impurities, lattice defects, etc. However, in the case of a small particle the particle size can become comparable or smaller than  $l_\infty$ , and interactions of electrons with the surface have to be taken into account. This leads to an effective mean free path smaller than  $l_\infty$  which is referred to the *free path effect* for small clusters. Then a reasonable value of the cluster size (radius  $R$ ) for the application of the bulk dielectric function is  $2R \geq l_\infty$ . The order of magnitude of the mean free path in metals is of 10 nm to few tens of nanometers depending on the material.<sup>15</sup> In the case of clusters of few nanometers, the dielectric function is therefore different from the bulk one.

A number of different approaches have been developed for the calculation of  $\epsilon$  as a function of the cluster size.<sup>15</sup> These different approaches lead to the conclusion that a contribution linked to the cluster size has to be added to the damping term  $\Gamma$  in the Drude model:

$$\Gamma(R) = \Gamma_\infty + \Delta\Gamma(R), \quad (2)$$

and that this contribution is proportional to  $1/R$ :

$$\Delta\Gamma(R) = A \frac{v_F}{R}. \quad (3)$$

Applying formulas (1)–(3) we can take into account the defect size in the inclusion-dominated model of laser damage. However, we will see in Section II C that clusters of few nanometers cannot initiate damage under our working conditions: their absorption cross section is so weak that fluences of several orders of magnitude higher than the measured threshold are needed to reach the melting point. As a consequence we will use the bulk properties of metals for estimating the inclusion absorption and finally the temperature elevation under irradiation.

Similar remarks can be made on the thermal conductivity since this parameter depends on the electronic mean free path. The bulk thermal properties of the metal will then also be used for our calculations.

In the case of dielectric particles, we will see that relatively large particles have to be involved to initiate damage; thus the bulk values can be used in this case too.

## B. Absorption

We consider a dielectric or metallic absorbing particle (complex refractive index:  $\tilde{n} = n + ik$ ) embedded in a transparent material without absorption.

The absorbed power by a spherical absorbing particle is

$$Q = \sigma I, \quad (4)$$

where  $\sigma$  is the absorption cross section and  $I$  is the intensity in W/cm<sup>2</sup>. The absorption cross section is calculated with the Mie theory.<sup>20</sup>

We plotted in Fig. 1 the absorption cross section of a hafnium spherical particle in a hafnia matrix. This kind of metallic defect can be found in hafnia coatings so we chose to use it throughout this section as an illustration of the model.

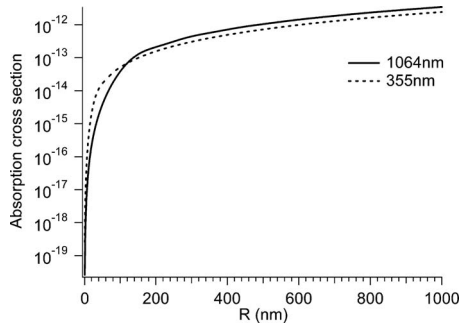


FIG. 1. Absorption cross section calculated with Mie theory for a hafnium inclusion in a hafnia matrix.

### C. Critical fluence

Damage is assumed to take place when the temperature of the inclusion reaches a critical value  $T_c$ . The fluence necessary to reach this value is called the critical fluence  $F_c$ .

To calculate the temperature we solve the heat equation under the assumptions detailed before. For this calculation we do not use the classical approximation of Hopper and Uhlmann<sup>21</sup> (high thermal conductivity for the defect) since the solution fails for dielectric impurities,<sup>22</sup> but we numerically calculate the solution in order to take into account either metallic or dielectric defects that can be found in thin films. We consider a Gaussian temporal profile for the irradiation to be closer to the experimental conditions. Indeed, it has been experimentally shown by Carr *et al.* that the temporal pulse shape has an effect on laser damage.<sup>23</sup> The details of the thermal part of the model are exposed in Ref. 13.

By calculating the heating of the inclusion as a function of the fluence, we find the critical fluence required to reach  $T_c$ . Furthermore by iterating this calculation for different absorber radii,  $F_c$  can be plotted as a function of the inclusion size. This has been done for illustration in Fig. 2 in the case of the hafnium inclusions in a hafnia matrix, with  $T_c$  chosen as the melting temperature of hafnia.

In the case of very small absorbers, the absorptivity decreases dramatically as the size decreases (Fig. 1). Therefore the value of the fluence necessary to damage rises (Fig. 2). On the contrary, for large particles, the pulse is too short in time to heat them since they contain too much matter. As a consequence there is an inclusion size most susceptible to

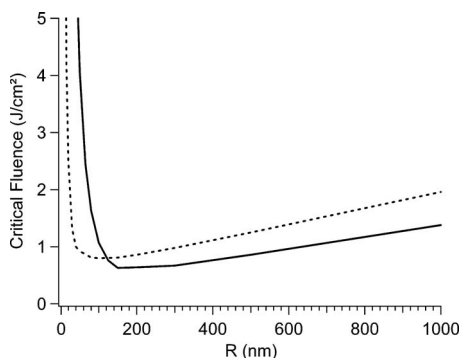


FIG. 2. Critical fluence calculated for a hafnium inclusion in a hafnia matrix. Irradiation is at 1064 or 355 nm with a pulse duration of 12 ns at 1/e (Gaussian temporal shape).

create damage, and this size depends on the pulse duration, as first pointed out by Hopper and Uhlmann.<sup>21</sup> In the case of hafnium inclusions in hafnia (Fig. 2) the critical radius is about 150 nm at 1064 nm and 100 nm at 355 nm. However, if these inclusions are the most susceptible to create damage, they are not the damage initiators found in high quality coatings since damage initiates on areas free from any visible defects. Indeed, in the case of particles of few 100 nm in films of the same few 100 nm thickness, the defects should be detectable by classical optical techniques. As a consequence, only the left part of the critical fluence curves is of interest for our application.

### D. Laser damage probability

The standard measurement in laser damage experiments is to plot the damage probability as a function of the fluence.<sup>24</sup> If we assume that damage occurs if a defect is irradiated with a fluence higher than  $F_c$ , this damage probability can be theoretically calculated and compared to experiments.

However,  $F_c$  depends on the precursor size, and the size distribution of defects is unknown. Without knowledge of this distribution we chose to consider a power law distribution since this type of variation is typically found for clusters.<sup>15</sup> These distributions are also often observed in natural processes such as optics contamination.<sup>14</sup> The distribution of defects in our model is then assumed to follow the law:

$$\rho(R) = A/R^\alpha, \quad (5)$$

where  $A$  is a constant that will be explained later. In fact, we expect that there are much more small precursors than large ones, and the coefficient “ $\alpha$ ” will be a fit parameter of the model. In addition only a range of size is of interest since very small/large precursors are not susceptible to damage as seen before. As a consequence, we insert lower and upper limits for calculation convenience ( $R_{\min}$  and  $R_{\max}$ ). Then we obtain an expression for  $A$ :

$$A = (1 - \alpha)d_0/(R_{\max}^{1-\alpha} - R_{\min}^{1-\alpha}), \quad (6)$$

with  $d_0$  the total density of defects per unit of volume or surface (volume or surface defects can be considered). This parameter is also chosen as a fit parameter of the model.

The defect population can be described by the ensemble function  $g(F_c)$ , which gives the number of defects per unit of volume that damage at fluence (or threshold) between  $F_c$  and  $F_c + dF_c$ . The relationship between  $g(F_c)$  and the defect density  $d$  is

$$\int_0^\infty g(F_c)dF_c = d. \quad (7)$$

With the knowledge of the critical fluence (damaging fluence as a function of size) and the defect size distribution (density as a function of size) one can obtain the function  $g(F_c)$  (density of damaging defects as a function of fluence). This calculation is done numerically in our case. An example is shown in Fig. 3 for the case of hafnium inclusions in hafnia, with an arbitrary value for  $\alpha$  and  $d$ .

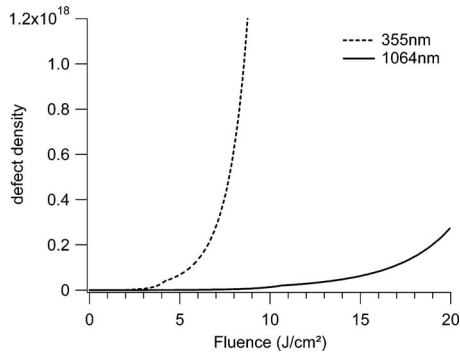


FIG. 3.  $g(F_C)$  function (defect repartition as a function of their irradiating fluence  $F_C$ ) calculated for a hafnium inclusion in a hafnia matrix. Irradiation is at 1064 or 355 nm with a pulse duration of 12 ns at  $1/e$  (Gaussian temporal shape). The parameter  $\alpha$  was set to 3.

The probability of damage  $P(F)$  is the probability of the presence of a defect that receives more energy density than its critical fluence. This probability can classically be expressed as

$$P(F) = 1 - \exp[-N(F)], \quad (8)$$

where  $N(F)$  is the number of defects under the laser spot that can induced damage at the fluence  $F$ .

- In the case of surface precursors, the number of defects  $N(F)$  located under the laser spot of fluence  $F$  and whose threshold is lower than  $F$  is

$$N(F) = \int_0^F g(F_C) S_{F_C}(F) dF_C, \quad (9)$$

with  $S_{F_C}(F)$  the part of the spot size where the fluence  $F$  is greater than the precursor critical fluence  $F_C$ . If a Gaussian beam is considered,  $S_{F_C}(F)$  is

$$S_{F_C}(F) = \frac{\pi\omega^2}{2} \ln\left(\frac{F}{F_C}\right), \quad (10)$$

with  $\omega$  the beam waist radius.

- In the case of bulk precursors the number of defects  $N(F)$ , localized in the volume under irradiation and whose threshold is lower than  $F$ , is

$$N(F) = \int_0^F g(F_C) V_{F_C}(F) dF_C, \quad (11)$$

with  $V_{F_C}(F)$  the volume where the fluence  $F$  is greater than the precursor critical fluence  $F_C$ . If a Gaussian beam is considered,  $V_{F_C}(F)$  is

$$V_{F_C}(F) = \frac{4}{3} \omega_0^2 Z_R \left( \frac{\sqrt[3]{\frac{F}{F_C} - 1}}{6} + \sqrt{\frac{F}{F_C} - 1} - \arctan\left(\sqrt{\frac{F}{F_C} - 1}\right) \right), \quad (12)$$

with  $Z_R$  the Rayleigh length and  $\omega_0$  the beam waist.

- In the case of thin films we have to take into account

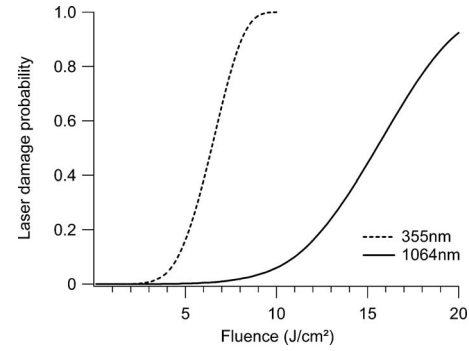


FIG. 4. Laser damage probability curves calculated for a hafnia film (mechanical thickness of 100 nm) containing hafnium inclusions. Irradiation is at 1064 or 355 nm with a pulse duration of 12 ns at  $1/e$ .

the electric field repartition, particularly if we deal with a multilayer system. The number of defects  $N(F)$  can then be expressed as

$$N(F) = \int_0^F g(F_C) V_{F_C}^e(F) dF_C, \quad (13)$$

with  $V_{F_C}^e$  an efficient volume where the fluence  $F$  is greater than the precursor critical fluence  $F_C$ :

$$V_{F_C}^e = \frac{\pi}{2} \int_0^e \omega^2(z) \ln\left(\frac{F(z)}{F_C} \frac{\omega_0}{\omega^2(z)}\right) dz, \quad (14)$$

with  $e$  the mono- or multilayer total thickness and  $z$  the orthogonal direction to the films.  $F(z)$  (or energy density repartition in the films) can be easily obtained with classical electric field calculations in thin films.<sup>25</sup>

With this model we have the ability to describe laser damage in surface, bulk, or thin films as a function of three physical characteristics: the defect composition, the size distribution of defects, and their density in the material.

We plot for illustration (Fig. 4) the theoretical laser damage probability curves calculated in the case of hafnia thin films containing hafnium inclusions with distribution of size. A typical S-curve is obtained, as observed in experiments.

### III. EXPERIMENTS

#### A. Samples

The samples under study are  $\text{HfO}_2$  single layer coatings. This material has been chosen for our study because it is one of the most important high index materials for the production of optical coatings for UV to IR high power laser applications. For damage resistance, it is known to be the limiting material in silica/hafnia multilayer coatings.<sup>26</sup>

A Balzers BAP 800 reactive ion plating (IP) system was used to deposit the coatings from hafnium starting material. A run of samples were made through a standard electron beam deposition (EBD) process and another run using the argon ion plasma assistance. Except for the assistance, the deposition parameters were the same for both series of samples (see Table I). These parameters correspond to the optimized process developed at the Fresnel Institute for this material.<sup>27</sup> The substrates were 1 in. diameter fused silica



TABLE I. Sample description.

Reference	Optical thickness	Deposition parameters
EBD 2H@1064	$\lambda/2$ at 1064 nm	Deposition technique: EBD Source material: Hf 99.5% (Umicore granulate) Liner: carbon; voltage: 10 kV
EBD 2H@355	$\lambda/2$ at 355 nm	Base pressure: $3 \times 10^{-7}$ mbar Partial pressure ( $O_2$ ): $5 \times 10^{-4}$ mbar Deposition rate: 0.9 nm/s; substrate temperature (250 °C)
IP 2H@1064	$\lambda/2$ at 1064 nm	Deposition technique: RLVIP Source material: Hf 99.5% (Umicore granulate) Liner: carbon; voltage: 10 kV
IP 2H@355	$\lambda/2$ at 355 nm	Base pressure: $3 \times 10^{-7}$ mbar Partial pressure ( $Ar+O_2$ )mbar: $6 \times 10^{-4}$ Deposition rate: 0.2 nm/s; substrate temperature (250 °C) Assistance parameters: plasma source (55 A, 66 V)

substrates (Corning 7980) polished for high power applications. All the substrates were coming from the same batch and have been polished at the same time.

Since we want to study the influence of the wavelength on the laser damage behavior, samples of different thickness were made with the two techniques: half wave at 1064 nm (made for testing at 1064 nm) and half wave at 355 nm (made for testing at 355 nm). In this way the standing electric field in the coating is the same at the two wavelengths and the results can be easily compared. The sample denominations used in this paper are referenced in Table I.

## B. Laser damage probability measurements

Laser damage probability curves were measured at 1064 and 355 nm using an injected Nd:YAG laser (Quantel YG 980) with a pulse duration of 12 ns (effective pulse duration<sup>24</sup> at  $1/e$ ). The laser beam was linearly polarized and focused at normal incidence at the front face of the coated samples. Different spot diameters were used for the tests: 44 and 320  $\mu\text{m}$  at 1064 nm and 3  $\mu\text{m}$  at 355 nm. The damage detection was done by comparing the area before and after irradiation with an imaging system (magnification  $\times 200$ ) and an image processing software. The damage criterion is then any visible modification detected with this system. The

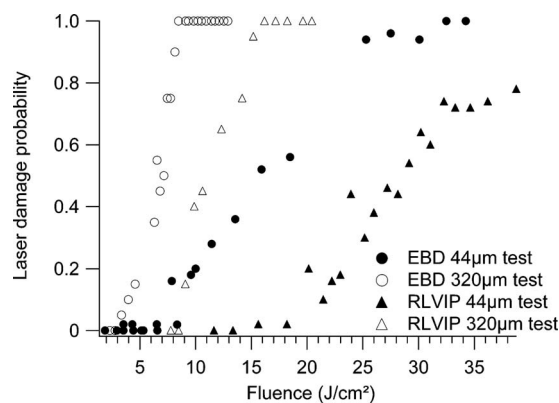


FIG. 5. Results of the laser damage tests made at 1064 nm. Test conditions: one on one mode, 12 ns, 44 and 320  $\mu\text{m}$  spot diameters (at  $1/e^2$ ).

damage test procedure one on one mode was applied, with a large number of points to obtain a reliable measurement: each curve  $P(F)$  is plotted with 1000 data points that involve 20 different fluencies and 50 tested sites at each fluence in the case of the 3 and 44  $\mu\text{m}$  beam size tests and 400 data points (20 fluences  $\times$  20 sites) in the case of the 320  $\mu\text{m}$  beam size tests. The error bars for the probability measurements are calculated using the procedure described in Ref. 28. The error bars in this paper correspond to a confidence level of 95%. The damage probability curves obtained under these conditions on the two different samples [EBD and reactive low voltage ion plating (RLVIP)] are reported in Figs. 5 and 6.

Uncoated samples have also been tested. In comparison to the coatings, the front surface Laser Induced Damage Threshold (LIDT) of the uncoated substrate samples was 80  $\text{J}/\text{cm}^2$  at 1064 nm and 20  $\text{J}/\text{cm}^2$  at 355 nm in the same test conditions.

The damage morphology observed near threshold fluences consists of one or several micronic pits localized under the irradiated area. Several images of the typical morphologies observed for both deposition technologies are given in Fig. 7.

The morphology clearly evidences an initiation process by very small defects. However, the size of the pits cannot be linked directly to the precursor size (except by giving a

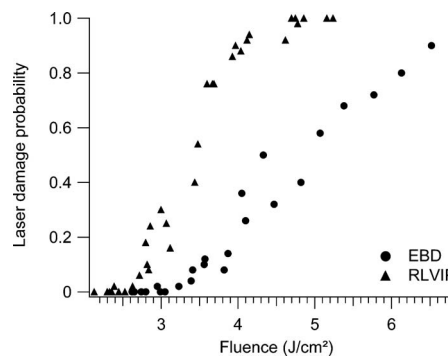


FIG. 6. Results of the laser damage tests made at 355 nm. Test conditions: one on one mode, 12 ns, 3  $\mu\text{m}$  spot diameter (at  $1/e^2$ ).

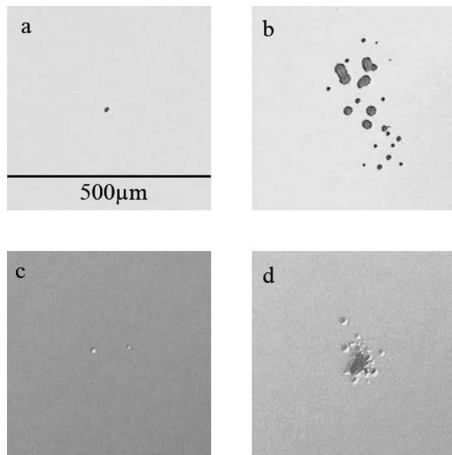


FIG. 7. Laser damage morphologies observed on the samples after irradiation at 1064 nm/12 ns with a beam diameter of 320  $\mu\text{m}$ . (a) RLVIP sample irradiated near the LIDT. (b) RLVIP sample irradiated at high fluence, compared to the LIDT, to emphasize the pits. (c) EBD sample irradiated near the LIDT. (d) EBD sample irradiated at high fluence.

maximum value). Indeed, the pit diameter is linked in a complex way to the size of the laser damage precursor and also depends strongly on the thermal and mechanical properties, residual stresses, and adhesion of the film. For instance, Papernov and Schmid<sup>29</sup> stated that the pit diameter in silica thin films can reach ten times the initiator diameter.

#### IV. RESULTS AND DISCUSSION

The laser damage initiation on the hafnia coatings under test is initiated by subwavelength precursor defects. In order to identify the damaging precursor defects, we have applied the model described in Sec. II. With the nature of the precursors being unknown, our approach has been to try different potential candidates and compare the theoretical results to the measurements. We have considered two different kinds of absorbing defects that are potential initiators in  $\text{HfO}_2$ .<sup>19</sup>

- Metallic Hf nanoclusters, with bulk-metal optical and thermal parameters (parameters given in Table II).
- Nonstoichiometric  $\text{HfO}_2$  defects, with thin-film real index and thermal parameters but with an imaginary index to account for absorption (parameters given in Table II).

##### A. Spot size dependence

We first consider the results obtained on the RLVIP sample tested at 1064 nm. For this sample a spot size depen-

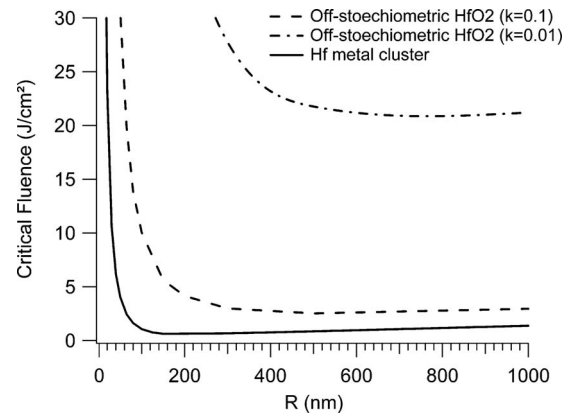


FIG. 8. Critical fluence calculated for different inclusions (hafnium metal or off-stoichiometric absorbing  $\text{HfO}_2$  defects) in a hafnia matrix. Irradiation is at 1064 nm with a pulse duration of 12 ns at  $1/e$  (Gaussian temporal shape).

dence is observed as expected from the theory: the measured low threshold is 8  $\text{J}/\text{cm}^2$  in the case of the 320  $\mu\text{m}$  spot size and 15  $\text{J}/\text{cm}^2$  in the case of the 44  $\mu\text{m}$  spot size. For comparison, we have calculated the critical fluence curves obtained for hafnium defects or nonstoichiometric  $\text{HfO}_2$  defects embedded in a bulk hafnia matrix. The results are given in Fig. 8.

Considering these calculations and the thresholds measured on the samples, it appears that dielectric defects cannot be precursors of damage under our assumptions. Indeed, with an extinction coefficient of approximately  $10^{-2}$ , defects cannot induce damage at the level of the measured fluence: 8  $\text{J}/\text{cm}^2$ . If the extinction coefficient was larger ( $\approx 10^{-1}$ ), dielectric defects could induce damage at 8  $\text{J}/\text{cm}^2$ , but their size needs to be more than 100 nm, which is almost the layer thickness. These large defects would be visible under the microscope. However, the comparison of Fig. 8 with the measured damage threshold shows that hafnium defects of few tens of nanometers are potential initiators. We now apply our model with hafnium defects to fit the experimental data points in order to check the validity of this assumption. A very good agreement was obtained between the data and the theory, as shown in Fig. 9, when considering a defect size distribution between 5 and 55 nm (and  $\alpha=4$ ). The interesting point is that the model can describe the observed spot size dependence since with the same parameters the data obtained with the two different spot sizes can be fitted.

##### B. Influence of the deposition technique

In the case of the electron beam deposited layers, the same deposition plant was used, the same materials, as well

TABLE II. Material thermal and optical parameters.

Material	Real index $n$	Imaginary index $k$	Conductivity	Diffusivity
Bulk $\text{HfO}_2$ <sup>a</sup>	2 at 1064 nm	0 at 1064 nm	1.67 W/m K	$6.8 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$
	2 at 355 nm	0 at 355 nm		
Hf inclusion <sup>a</sup>	4.08 at 1064 nm	3.1 at 1064 nm	18.4 W/m K	$9.9 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$
	1.71 at 355 nm	2.58 at 355 nm		
Nonstoichiometric $\text{HfO}_2$ inclusions	2 at 1064 nm	0.01–1 at 1064 nm	1.67 W/m K	$6.8 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$
	2 at 355 nm	0.01–1 at 355 nm		

<sup>a</sup>Reference 30.

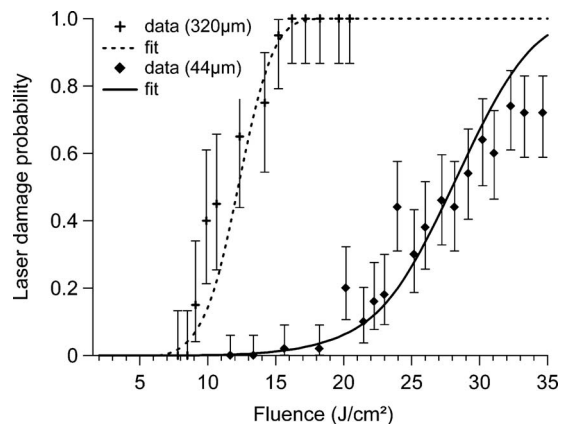


FIG. 9. Laser damage probability measured (at 1064 nm/12 ns) for a hafnia film made by RLVIP (half wave at 1064 nm). The calculated curves are plotted for the same values of fit parameters for both beam sizes.

as the same parameters, except for the assistance. Thus one would expect similar defects to be present in both types of films. However, lower thresholds were measured for the EBD layers at 1064 nm, as shown in Fig. 5. To explain these results, one should consider that the mechanical and thermal properties of these coatings are different from the dense ones obtained with plasma assistance. Indeed, EBD films are known to exhibit a porous structure.<sup>31</sup> This is confirmed on our samples by the refractive index deduced from spectrophotometry measurements. For the EBD coatings we obtain  $n=1.92$  at 1064 nm, compared to the IP coatings:  $n=2.21$  at 1064 nm. This last refractive index is very close to the bulk value reported for hafnia.<sup>32</sup> Heat transport in EBD films is influenced by the columnar structure of the films, and the thermal conductivity of the coated material may be smaller than that of the bulk. From the few studies in literature devoted to the thermal properties of optical thin films,<sup>33–38</sup> it appears that the thermal properties of EBD coatings, particularly the thermal conductivity, are strongly dependent on the deposition process and can differ by several orders of magnitude from those of bulk materials. The thermal conductivity of the matrix is of critical importance for the laser damage threshold in the case of an absorbing inclusion driven mechanism.<sup>22</sup> In order to study the influence of the thermal conductivity of the host material on the damage threshold, we plotted in Fig. 10 the critical fluence calculated for a

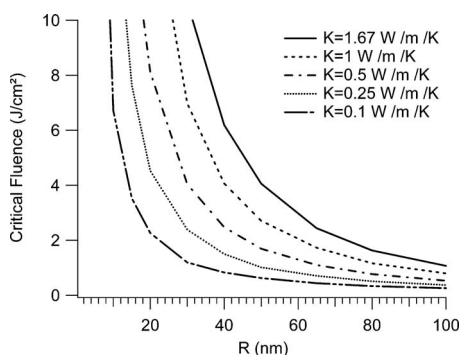


FIG. 10. Critical fluence calculated for a hafnium inclusion in a hafnia matrix with different conductivities. Irradiation is at 1064 nm with a pulse duration of 12 ns at  $1/e$  (Gaussian temporal shape)

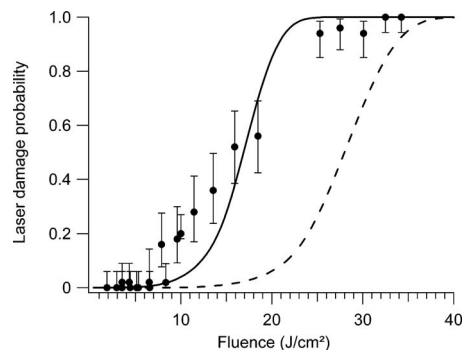


FIG. 11. Laser damage probability measured with a beam spot size of 44  $\mu\text{m}$  (at 1064 nm/12 ns) for a hafnia film made by EBD (half wave at 1064 nm). The fits of the experimental data are made with the same parameters found on the films obtained by IP (dotted line) and with a thermal conductivity of 0.68 W/m K (plain line).

hafnium inclusion in a hafnia matrix with different thermal conductivities.

Based on these simulations we tried to fit the laser damage probabilities obtained on the EBD samples using the same defect parameters found on the IP samples but adjusting the thermal conductivity of the host material. We found that with a thermal conductivity of 0.7 W/m K (to be compared to the bulk one: 1.67 W/m K) a reasonable agreement was obtained for the small beam size test results (even if the shape of the curve differs) and a very good agreement was obtained for the large beam size test results (Figs. 11 and 12). Hence, even if the defect distribution may be slightly different, the model describes damage probability curves on dense and porous coatings for two different laser beam sizes on each coating.

### C. Wavelength dependence

The other samples, half wave at 355 nm, made with the same techniques and in the same conditions, were laser damage tested at 355 nm, 12 ns, with a spot size of 3  $\mu\text{m}$ , as shown in Fig. 6. Since these coatings were made in the same conditions as the 1064 nm samples, a simple assumption would be that the same defects are embedded in both kinds of samples. Then the theoretical laser damage probability curve at 355 nm may be obtained by using the parameters

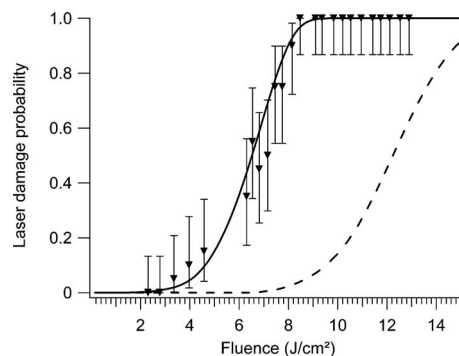


FIG. 12. Laser damage probability measured with a beam spot size of 320  $\mu\text{m}$  (at 1064 nm/12 ns) for a hafnia film made by EBD (half wave at 1064 nm). The fits of the experimental data are made with the same parameters used for the films obtained by IP (dotted line) and with a thermal conductivity of 0.68 W/m K (plain line).

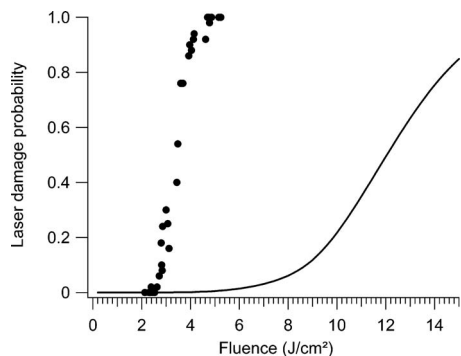


FIG. 13. Laser damage probability curve measured at 355 nm, 12 ns, with a spot size of 3  $\mu\text{m}$  for a hafnia film made by RLVIP (half wave at 355 nm). The plain line is the theoretical laser damage probability curve obtained by applying the parameters found at 1064 nm to the 355 nm case.

found previously (defect distribution) and by calculating the critical fluence at 355 nm for hafnium. The result of this calculation is plotted in Fig. 13.

Obviously, a large discrepancy is found between theory and experiment. The measured laser damage threshold is found to be lower than the one expected with our simple assumptions. Since it appears difficult to imagine different defects more absorbing than metallic clusters, the explanation is perhaps to be found in the laser damage mechanism and the theoretical damage criterion that we apply. Indeed, it has been shown experimentally in the case of UV irradiation that the material around a damage initiator defect is modified during the laser pulse.<sup>39,40</sup> When a nanoabsorber is strongly heated, energy is transferred to the surrounding matrix (by conduction and radiation). Subsequently, the matrix is modified and can be converted into an absorbing material. This additional absorption around the defect is perhaps critical in the case of UV irradiation compared to IR irradiation (far from the absorption band of  $\text{HfO}_2$ ) and could explain these discrepancies between theory and experiment. This is clearly a limitation of our approach, and refined models have to be used in this case.

## V. CONCLUSION

A model has been developed in order to relate the material properties of initiating defects to the laser damage probability as a function of fluence. Different assumptions that have been clearly detailed have been made in order to keep the approach simple.

The model has been applied to the study of hafnia thin films made with different deposition technologies. Different laser damage tests were conducted on the samples. At 1064 nm, the results show a good agreement between measurements and theoretical predictions and demonstrate the validity of the approach. In the studied samples, hafnium clusters with diameters order of magnitude of 10 nm have been identified as damaging defects. A very good agreement with the spatial scaling law has been observed. Thus an application of this study is to obtain functional threshold of optical components.

Of course the results must be taken with caution since different assumptions have been made for the calculations,

but it is interesting to point out that all the results obtained (laser damage spot size and material property dependence) have been explained with the same kind of defects having a given density and size distribution. The interest of this approach is of course not to identify with certainty the defects but to highlight potential candidates.

One perspective is now to extend this model to the case of repetitive shots since it is known that successive shots can increase (conditioning effect) or decrease (fatigue effect) the LIDT depending on the material. For this purpose, modification of the defect properties under successive irradiations will be taken into account.

## ACKNOWLEDGMENTS

We thank the RCMO team of the Institut Fresnel for manufacturing the samples. Funding of this work by the European Union (Grant Nos. FEDER 2646 and FSE 2003.21.02.0037), the region PACA, and the Conseil General des BDR is gratefully acknowledged.

## APPENDIX: PARAMETERS USED FOR CALCULATION

The parameters used in the calculations are listed in Table II.

- <sup>1</sup>D. Milam, R. A. Bradbury, and M. Bass, *Appl. Phys. Lett.* **23**, 654 (1973).
- <sup>2</sup>M. R. Kozlowski and R. Chow, in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1993*, edited by H. E. Bennet, A. H. Guenther, M. R. Kozlowski, B. E. Newnam, and M. J. Soileau (SPIE, Bellingham, WA, 1994), Vol. 2114, p. 640.
- <sup>3</sup>J. Dijon, T. Poiroux, and C. Desrumaux, in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1996*, edited by H. E. Bennett, A. H. Guenther, M. R. Kozlowski, B. E. Newnam, and M. J. Soileau (SPIE, Bellingham, WA, 1997), Vol. 2966, p. 315.
- <sup>4</sup>R. Picard, D. Milam, and R. Bradbury, *Appl. Opt.* **16**, 1563 (1977).
- <sup>5</sup>J. O. Porteus and S. C. Seitel, *Appl. Opt.* **23**, 3796 (1984).
- <sup>6</sup>R. M. O'Connell, *Appl. Opt.* **31**, 4143 (1992).
- <sup>7</sup>J. Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra, *Appl. Opt.* **41**, 3156 (2002).
- <sup>8</sup>H. Krol, L. Gallais, C. Grèzes-Besset, J. Y. Natoli, and M. Commandré, *Opt. Commun.* **256**, 184 (2005).
- <sup>9</sup>Z. Xia, Z. Fan, and J. Shao, *Opt. Commun.* **265**, 620 (2006).
- <sup>10</sup>M. D. Feit and A. M. Rubenchik, in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2003*, edited by G. J. Exarhos, A. H. Guenther, N. Kaiser, K. L. Lewis, M. J. Soileau, and C. J. Stolz (SPIE, Bellingham, WA, 2004), Vol. 5250, p. 74.
- <sup>11</sup>A. Dyan, F. Enguehard, H. Piombini, S. Lallich, and G. Duchateau, *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, 1087 (2008).
- <sup>12</sup>G. Duchateau and A. Dyan, *Opt. Express* **15**, 4557 (2007).
- <sup>13</sup>L. Gallais, P. Voarino, and C. Amra, *J. Opt. Soc. Am. B* **41**, 4023 (2003).
- <sup>14</sup>J. B. Trenholme, M. D. Feit, and A. M. Rubenchik, *Laser-Induced Damage in Optical Materials—2005*, edited by G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, D. Ristau, M. J. Soileau, and C. J. Stolz (SPIE, Bellingham, WA, 2005), Vol. 5991, p. 59910X.
- <sup>15</sup>U. Kreibitz and M. Vollmer, *Optical Properties of Metal Clusters* (Springer, New York, 1995).
- <sup>16</sup>M. Z. Fuka, J. K. McIver, and A. H. Guenther, *Laser-Induced Damage in Optical Materials—1989*, edited by H. E. Bennett, L. L. Chase, A. H. Guenther, B. E. Newnam, and M. J. Soileau (SPIE, Bellingham, WA, 1990), Vol. 1438, p. 576.
- <sup>17</sup>M. F. Koldunov, A. A. Manenkov, and I. L. Pokotilo, *Sov. J. Quantum Electron.* **20**, 456 (1990).
- <sup>18</sup>C. W. Carr, H. R. Radousky, A. M. Rubenchik, M. D. Feit, and S. G. Demos, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 087401 (2004).
- <sup>19</sup>S. Papernov and A. W. Schmid, *J. Appl. Phys.* **82**, 5422 (1997).
- <sup>20</sup>We used the S1 code (available at <http://atol.ucsd.edu/~pflatau/>) described in P. W. Barber and S. C. Hill, *Light Scattering by Particles: Computational Methods* (World Scientific, Singapore, 1990).
- <sup>21</sup>R. W. Hopper and D. P. Uhlmann, *J. Appl. Phys.* **41**, 4023 (1970).

- <sup>22</sup>T. W. Walker, A. H. Guenther, and P. Nielsen, *IEEE J. Quantum Electron.* **17**, 2053 (1981).
- <sup>23</sup>C. W. Carr, J. B. Trenholme, and M. L. Spaeth, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 041110 (2007).
- <sup>24</sup>ISO Standard 11254-1, 2000.
- <sup>25</sup>H. A. MacLeod, *Thin Film Optical Filter*, 3rd ed. (Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 2001).
- <sup>26</sup>C. J. Stolz and F. Génin, *Optical Interference Coatings*, edited by N. Kaiser and H. Pulker (Springer, New York, 2003).
- <sup>27</sup>L. Gallais, J. Capoulade, J. Y. Natoli, M. Commandé, M. Cathelinaud, C. Koc, and M. Lequime, *Appl. Opt.* **47**, C107 (2008).
- <sup>28</sup>A. Hildenbrand, F. Wagner, H. Akhouayri, J. Y. Natoli, and M. Commandé, *Opt. Eng.* **47**, 083603 (2008).
- <sup>29</sup>S. Papernov and A. W. Schmid, *J. Appl. Phys.* **97**, 114906 (2005).
- <sup>30</sup>*CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 87th ed., edited by D. R. Lide (Taylor and Francis, Boca Raton, FL, 2007).
- <sup>31</sup>J. Yao, Z. Fan, Y. Jin, Y. Zhao, H. He, and J. Shao, *J. Appl. Phys.* **102**, 063105 (2007).
- <sup>32</sup>D. L. Wood, K. Nassau, T. Y. Kometai, and D. L. Nash, *Appl. Opt.* **21**, 604 (1990).
- <sup>33</sup>R. T. Swimm, *Appl. Phys. Lett.* **42**, 955 (1983).
- <sup>34</sup>D. Ristau and J. Ebert, *Appl. Opt.* **25**, 4571 (1986).
- <sup>35</sup>M. Rohde, *Thin Solid Films* **238**, 199 (1994).
- <sup>36</sup>E. Welsch and D. Ristau, *Appl. Opt.* **34**, 7239 (1995).
- <sup>37</sup>A. Ocariz, A. Sanchez-Lavega, A. Salazar, D. Fournier, and A. C. Boccara, *J. Appl. Phys.* **80**, 2968 (1996).
- <sup>38</sup>Z. L. Wu, M. Thomsen, P. K. Kuo, Y. Lu, C. J. Stolz, and M. Kozolowski, *Opt. Eng.* **36**, 251 (1997).
- <sup>39</sup>M. A. Stevens-Kalceff, A. Stesmans, and J. Wong, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 758 (2002).
- <sup>40</sup>F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, M. Commandre, A. During, J. Y. Natoli, M. J. Pellin, M. R. Savina, E. Cottancin, and M. Pellarin, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3855 (2003).

# Photothermal deflection in multilayer coatings: modeling and experiment

Laurent Gallais and Mireille Commandré

A model of the photothermal deflection signal in multilayer coatings is presented that takes into account optical interference effects and heat flow within the stack. Measurements are then taken of high-reflectivity  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  ultraviolet mirrors made by plasma ion assisted deposition and compared to calculations. Good agreement is found between the experimental results and the model. Using this model for the calibration and the setup described, one can measure absorption in multilayer coatings accurately down to  $10^{-7}$  of the incident power. © 2005 Optical Society of America

OCIS codes: 350.5340, 310.0310.

## 1. Introduction

The measurement of optical losses or thermal parameters in optical coatings is of great interest, for instance in the development of applications that use high-power systems. For this purpose, photothermal tools and in particular the photothermal deflection technique<sup>1–6</sup> are useful techniques for the characterization of absorption losses, with detectivity reaching  $10^{-7}$  (Refs. 5 and 7), of the incident power and submicrometer resolution.<sup>8</sup> The measurement of single layer coatings with these techniques can be made quite easily if care is taken in the calibration. In the case of multilayer coatings, photothermal measurements are often used for the inspection of absorbing defects<sup>9–11</sup> (and possible connections with laser damage) to obtain the total absorption of the stack<sup>12–14</sup> or to separate the different contributions of substrate, film, volume, and interface absorption.<sup>13–15</sup> But, in such studies, interpretation or calibration is difficult because of the complex structure of the system (interference effects, absorption from the interface–layer volume, differences in thermal parameters, etc.). Then a theoretical approach must be associated with the measurements. In the case of multilayers, the calculation was made

for the photoacoustic technique,<sup>16</sup> but, in the case of photothermal deflection (PD), although the theoretical approach in a monolayer has been described in detail in several papers,<sup>1,5,17–19</sup> no modeling of the photothermal signal has been done in a multilayer structure with optical interference effects and heat flow within the stack taken into account, though such a model could be of great interest for calibration of the signal, to dissociate the contributions of the layers and interfaces from the absorption and to extract thermal parameters from the measurements.

First we present the model that we developed. Then we apply it for various classic structures such as a mirror and a bandpass filter. Second, we present absorption measurements of a deep-ultraviolet mirror and calibrate them with our model. To finish, we discuss the limitations of the method and the advances and potential applications that can be obtained with this study.

## 2. Theory

### A. Principles

The PD technique is based on the interaction of an intense modulated laser beam, called the pump beam, and the absorbing media. This interaction results in a temporal variation of temperature and then in a refractive-index gradient, surface bumping, and an acoustic wave, which are able to deflect a second laser beam, i.e., the probe beam. This deflection is measured and, by calibration, one can obtain the absorption value of the sample.

We have considered in our model the transmission configuration in which the pump and probe beams are normal to the surface and go through the sample

---

The authors are with the Institut Fresnel (Unité Mixte de Recherche, Centre National de la Recherche Scientifique), Ecole Généraliste d'Ingénieurs de Marseille, Aix Marseille I, Aix Marseille III, Domaine Universitaire de St Jérôme, 13397 Marseille Cedex 20, France. L. Gallais's e-mail address is laurent.gallais@fresnel.fr.

Received 8 December 2004; accepted 4 February 2005.

0003-6935/05/255230-09\$15.00/0

© 2005 Optical Society of America

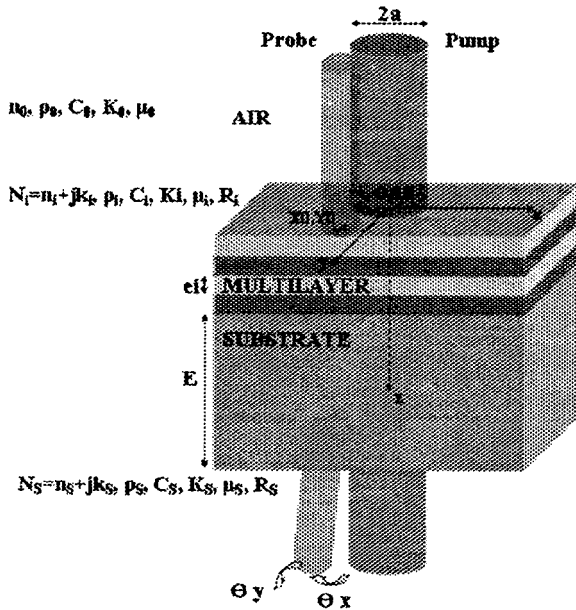


Fig. 1. Configuration and notation used in our model transmission calculation:  $n_i, k_i$ , real and imaginary parts of complex index  $N_i$  of medium  $i$  ( $i = 0$  for air,  $i = 1$  for the first layer,  $\dots$ ,  $i = N$  for the last layer, and  $i = S$  for the substrate),  $K_i$  is the thermal conductivity,  $\rho_i$  is the mass density,  $C_i$  is the heat capacity per unit mass,  $R_i$  is the thermal resistance at the interface between media  $i - 1$  and  $i$ ,  $e_i$  is the film's thickness, and  $2a$  is the diameter at  $1/e^2$  of the Gaussian pump beam.

(Fig. 1). This configuration has been chosen for its great sensitivity and its ability to yield a high spatial resolution and to facilitate measurement in bulk material. The influence of the surface displacement on the sample is not considered: Indeed, previous studies of similar systems showed that the total deflection that is due to index gradients is greater than the deflection that is due to thermal expansion, in this configuration.<sup>5</sup> The probe beam is then deflected only by the radial index gradient in the air, the thin films, and the substrate.

The calculation of PD in these conditions is divided into two parts. First, by using the expression for the heat source that results from optical absorption in the thin films and in the substrate, we calculate the modulated temperature distribution in each medium: air, film, and substrate. Second, the effects of temperature distribution on the probe-beam propagation are calculated. Notice that in this calculation we have considered absorption only in bulk films, but interface absorption can also be modeled easily by the use of thin and absorbing layers at the interfaces.

#### B. Calculation of Modulated Temperature

We denote by  $T_i(x, y, z, t)$  the time-dependent component of temperature distribution in medium  $i$ . The notation for the parameters is given in Fig. 1. The modeling was performed under some assumptions, as follows:

- The three media are isotropic and infinite in

the  $x$  and  $y$  directions. The air and the substrate are also semi-infinite in the  $z$  direction.

- The pump and probe beams are parallel, are Gaussian in the  $x$ - $y$  plane, and have a cylindrical symmetry in the  $z$  direction. Given that experimentally these two beams are Gaussian and focused on the surface of the sample, this hypothesis is valid only if the Rayleigh length of the pump beam is larger than the absorbing medium and the Rayleigh length of the probe beam is larger than the heated zone.

- The pump beam's waist is larger than the probe beam.

- Calculation is made under the assumption of unique heat conduction: Radiation losses and natural convection are negligible at ambient temperature.<sup>20</sup>

Given the cylindrical symmetry of the system, the temperature distribution keeps a cylindrical symmetry  $T_i(r, z, t)$ , where  $r^2 = x^2 + y^2$ , as for the pump beam. In this paper we are interested only in harmonic solutions:  $T_i(r, z, t) = T_i(r, z) \exp(j\omega t)$ , where  $\omega = 2\pi F$  is the modulation pulsation of the pump beam.

Under these conditions, the temperature distribution in the various media satisfies the heat equations

$$\begin{aligned} \nabla^2 T_0(r, z, t) - \frac{\rho_0 C_0}{K_0} \frac{\partial T_0}{\partial t} &= 0, \\ \nabla^2 T_i(r, z, t) - \frac{\rho_i C_i}{K_i} \frac{\partial T_i}{\partial t} &= -\frac{Q_i(r, z, t)}{K_i}, \\ \nabla^2 T_S(r, z, t) - \frac{\rho_S C_S}{K_S} \frac{\partial T_S}{\partial t} &= -\frac{Q_S(r, z, t)}{K_S}, \end{aligned} \quad (1)$$

where  $Q_i(r, z, t)$  are the heat sources that result from the optical absorption in medium  $i$ . They are calculated with the following equation, with interference and absorbing effects taken into account<sup>5</sup>:

$$\begin{aligned} Q_i(r, z, t) &= \frac{4\pi k_i}{\lambda} \frac{n_i}{n_0} \frac{p_0}{\pi a^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2}\right) \\ &\quad \times \exp(j\omega t) \left| \frac{E_i}{E_0^+}(z) \right|^2, \end{aligned} \quad (2)$$

where  $E_i(z)$  is the electric field in medium  $i$ ,

$$E_i(z) = E_i^+ \exp\left(-j \frac{2\pi N_i}{\lambda} z\right) + E_i^- \exp\left(j \frac{2\pi N_i}{\lambda} z\right),$$

$P_0$  and  $E_0^+$  are, respectively, the incident power and field. The  $E_i$  values are calculated numerically through a classic thin-film calculation.<sup>21</sup>

To solve system (1) we use the radial Fourier transform of the temperature distribution and the following conditions (see Appendix A for details):

Continuity of temperature

$$\begin{aligned} T_0(r, z = 0) &= T_1(r, z = 0) - \text{Res}_0 \Phi_{1 \rightarrow A}, \\ T_i(r, z = e_i) &= T_{i+1}(r, z = e_i) - \text{Res}_i \Phi_{i+1 \rightarrow i}, \\ T_N(r, z = e_N) &= T_S(r, z = e_N) - \text{Res}_N \Phi_{S \rightarrow N}, \end{aligned} \quad (3)$$

where  $\text{Res}_i$  is the interface resistivity.

Continuity of heat fluxes

$$\begin{aligned} \phi_{1 \rightarrow A} &= K_0 \left. \frac{\partial T_0}{\partial z} \right|_{z=0} = K_1 \left. \frac{\partial T_1}{\partial z} \right|_{z=0}, \\ \phi_{i+1 \rightarrow i} &= K_i \left. \frac{\partial T_i}{\partial z} \right|_{z=e_i} = K_{i+1} \left. \frac{\partial T_{i+1}}{\partial z} \right|_{z=e_i}, \\ \phi_{S \rightarrow N} &= K_N \left. \frac{\partial T_N}{\partial z} \right|_{z=e_N} = K_S \left. \frac{\partial T_S}{\partial z} \right|_{z=e_N}, \end{aligned} \quad (4)$$

where  $\phi_{i+1 \rightarrow i}$  is the heat flux from layer  $i + 1$  to layer  $i$ .

After resolution of this system, the temperature distributions in the different media can be written as follows:

$$\begin{aligned} T_0(r, z, t) &= 2\pi \int_0^{+\infty} \sigma J_0(2\pi\sigma r) \{A_0(\sigma) \\ &\quad \times \exp[\alpha_0(\sigma)z]\} d\sigma \exp(j\omega t), \\ T_i(r, z, t) &= 2\pi \int_0^{+\infty} \sigma J_0(2\pi\sigma r) \left\{ A_i(\sigma) \exp[\alpha_i(\sigma)z] \right. \\ &\quad + B_i(\sigma) \exp[-\alpha_i(\sigma)z] + F_i(\sigma) \left[ E_i^{+2} \right. \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{4\pi k_i}{\lambda} z\right) + E_i^{-2} \exp\left(\frac{4\pi k_i}{\lambda} z\right) \\ &\quad + G_i(\sigma) \left[ E_i^+ E_i^{-*} \exp\left(-j\frac{4\pi n_i}{\lambda} z\right) \right. \\ &\quad \left. \left. + E_i^{+*} E_i^- \exp\left(j\frac{4\pi n_i}{\lambda} z\right) \right] \right\} d\sigma \exp(j\omega t), \\ T_s(r, z, t) &= 2\pi \int_0^{+\infty} \sigma J_0(2\pi\sigma r) \left\{ B_S(\sigma) \right. \\ &\quad \times \exp[-\alpha_S(\sigma)z] + F_S(\sigma) E_S^{+2} \\ &\quad \left. \times \exp\left(-\frac{4\pi k_S}{\lambda} z\right) \right\} d\sigma \exp(j\omega t), \end{aligned} \quad (5)$$

where  $A_i$  and  $B_i$  are calculated in Appendix A.

### C. Photothermal Deflection

We neglect in the calculation the effect of the acoustic wave that accompanies the temperature rise. Given that and the conditions described above, the total

shift of the probe beam in the  $x$  direction is small compared with the probe-beam diameter ( $x$  can be assumed constant along the beam path). The deflection in the  $x$  direction is given for medium  $i$  by

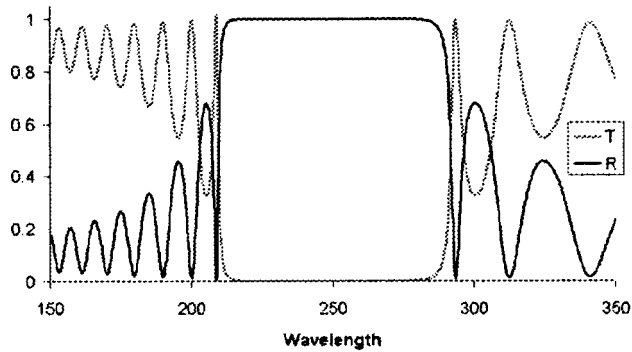
$$\theta_i = \frac{1}{n_i} \frac{\partial n_i}{\partial T} \int_{\text{path } i} \left[ \frac{\partial T_i}{\partial x}(x, y, z, t) \right]_{x=x_0, y=y_0} dz, \quad (6)$$

where  $(x_0, y_0)$  is the shift between the centers of the pump and the probe beams in the plane  $z = 0$ .

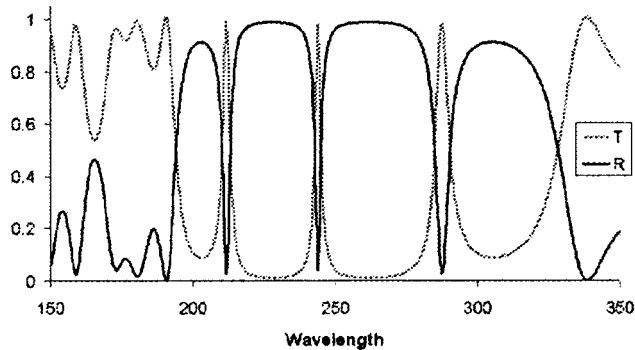
Then, after derivation and integration, we find that

$$\begin{aligned} \theta_{y \text{ air}}(x_0, y_0, t) &= -\frac{1}{n_0} \frac{\partial n_0}{\partial T} 4\pi^2 \exp(j\omega t) \frac{y_0}{r_0} \int_0^{+\infty} \\ &\quad \times \sigma^2 J_1(2\pi\sigma r_0) \frac{A_0}{\alpha_0} d\sigma, \\ \theta_{y \text{ couche } i}(x_0, y_0, t) &= -\frac{1}{n_i} \frac{\partial n_i}{\partial T} 4\pi^2 \exp(j\omega t) \frac{y_0}{r_0} \int_0^{+\infty} \\ &\quad \times \sigma^2 J_1(2\pi\sigma r_0) \left( \frac{A_i}{\alpha_i} [\exp(\alpha_i e_i) \right. \\ &\quad \left. - \exp(\alpha_i e_{i-1})] + \frac{B_i}{\alpha_i} [\exp(-\alpha_i e_{i-1}) \right. \\ &\quad \left. - \exp(-\alpha_i e_i)] + F_i \frac{\lambda}{4\pi k_i} \left\{ E_i^{+2} \right. \right. \\ &\quad \times \left[ \exp\left(-\frac{4\pi k_i}{\lambda} e_{i-1}\right) - \exp \right. \\ &\quad \times \left. \left. \left(-\frac{4\pi k_i}{\lambda} e_i\right) \right] + E_i^{-2} \left[ \exp\left(\frac{4\pi k_i}{\lambda} e_i\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \exp\left(\frac{4\pi k_i}{\lambda} e_{i-1}\right) \right] \right\} + G_i \frac{\lambda}{j4\pi n_i} \\ &\quad \times \left\{ E_i^+ E_i^{-*} \left[ \exp\left(-\frac{j4\pi n_i}{\lambda} e_{i-1}\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \exp\left(-\frac{j4\pi n_i}{\lambda} e_i\right) \right] + E_i^{+*} E_i^- \right. \\ &\quad \times \left[ \exp\left(\frac{j4\pi n_i}{\lambda} e_i\right) \right. \\ &\quad \left. \left. - \exp\left(\frac{j4\pi n_i}{\lambda} e_{i-1}\right) \right] \right\} \right) d\sigma, \\ \theta_{y \text{ substrate}}(x_0, y_0, t) &= \frac{1}{n_S} \frac{\partial n_S}{\partial T} 4\pi^2 \exp(j\omega t) \frac{y_0}{r_0} \int_0^{+\infty} \\ &\quad \times \sigma^2 J_1(2\pi\sigma r_0) \left\{ \frac{B_S}{\alpha_S} [\exp(-\alpha_S e_N) \right. \\ &\quad \left. - \exp(-\alpha_S E)] + F_S E_S^{+2} \frac{\lambda}{4\pi k_S} \right. \\ &\quad \times \left[ \exp\left(-\frac{4\pi k_S}{\lambda} e_N\right) \right. \\ &\quad \left. \left. - \exp\left(-\frac{4\pi k_S}{\lambda} E\right) \right] \right\} d\sigma. \end{aligned} \quad (7)$$





(a)



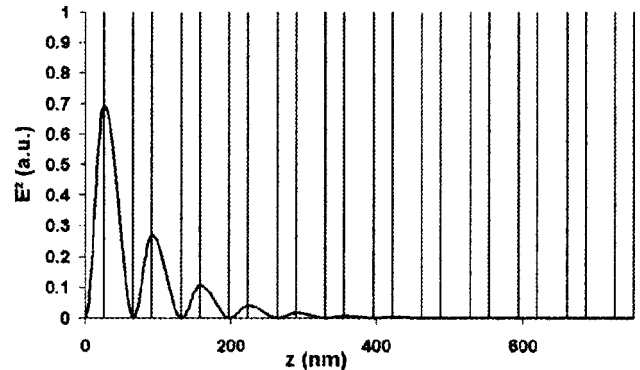
(b)

Fig. 2. Calculation of the spectral reflectance (R) and transmittance (T): (a) mirror M23, (b) Fabry-Perot filter: mirror M5, 12B, mirror M5. Materials:  $\text{HfO}_2$  ( $n = 2.4$ ) and  $\text{SiO}_2$  ( $n = 1.5$ ).

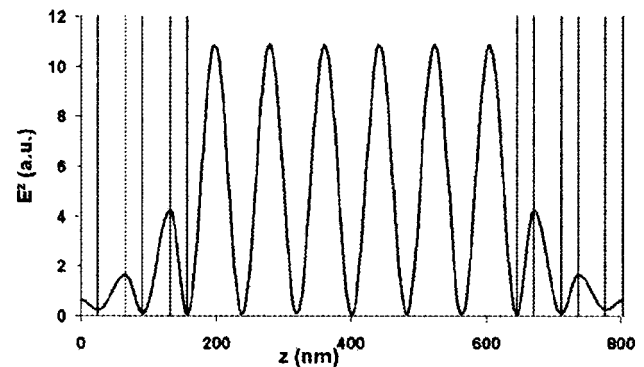
In the transmission configuration the total PD is the sum of the complex deflections in the three media: air, thin films, and substrate.

#### D. Applications

We present two examples of calculations with the model described above, applied for two thin-film optical components, a mirror M23 ( $[\text{HB}]^{11}\text{H}$ ), and a Fabry-Perot filter, mirror M5-12B-mirror M5 ( $[\text{HB}]^2\text{H}12\text{B}[\text{HB}]^2\text{H}$ ), centered at 244 nm (spectral reflectance and transmittance are calculated in Fig. 2), made from  $\text{HfO}_2$  and  $\text{SiO}_2$ . For these materials we used in our computation the thermal parameters taken from Refs. 22–26. Note that there are few values in the literature for the thermal parameters of optical thin films, particularly for the thermo-optic coefficient. We did not find this value for  $\text{HfO}_2$ ; consequently we used the same value as for  $\text{SiO}_2$  in this calculation. The two systems (mirror and bandpass filter) have roughly the same optical thickness and are composed of the same materials, so only the electric-field distribution is changed (Fig. 3): It is localized near the surface for the mirror and enhanced in the spacer for the Fabry-Perot filter. We present in Fig. 4 our calculation of the relative PD versus shift distance between pump and probe beams for both systems, using the model presented above with an imaginary index of  $10^{-4}$  ( $k$ ) for the H and B layers.



(a)



(b)

Fig. 3. Electric-field distribution calculated at 244 nm in (a) mirror M23, (b) Fabry-Perot filter: mirror M5, 12B, mirror M5. Materials:  $\text{HfO}_2$  ( $n = 2.4$ ) and  $\text{SiO}_2$  ( $n = 1.5$ ).

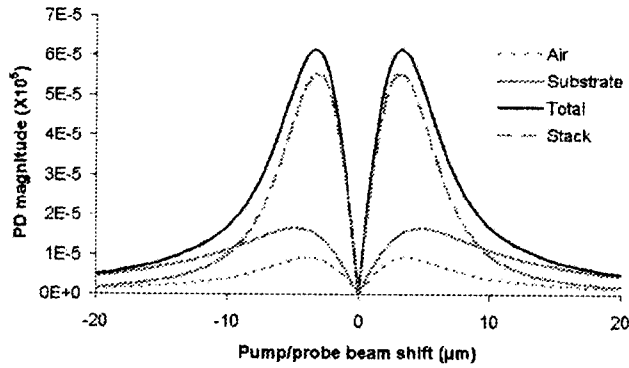
These calculations were made for a pump beam of  $10\ \mu\text{m}$  diameter at 244 nm and 1 kHz of modulation frequency.

We can observe that the two systems exhibit strongly different amplitude signals (ratio of almost 100) owing to differences in the electric-field distribution and subsequent absorption: Indeed, in the case of the Fabry-Perot filter the  $e$ -field enhancement in the spacer induced a strong absorption of optical power, whereas, in the mirror, absorption occurs only near the surface. In both cases the deflection is predominant in the stack (which has a total thickness of almost 800 nm) and consequently the thermal properties of the materials will have a great influence on the signal. This effect increases when the beam is focused or when the frequency increases.

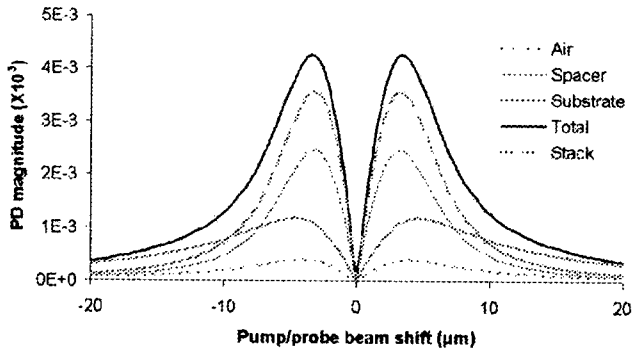
### 3. Experiment

#### A. Experimental Setup

The experimental setup is shown in Fig. 5 (a detailed description is given in Ref. 27). It involves a 488 nm argon laser doubled at 244 nm with an external-cavity frequency doubler. The beam is modulated (1500 Hz in this study), spatially filtered, and focused onto the sample through one of a number of lenses, depending on the required pump-beam diameter. For



(a)



(b)

Fig. 4. Calculated photothermal deflection versus separation between pump and probe beams in (a), mirror M23, (b) Fabry-Perot filter: mirror M5, 12B, mirror M5. Materials:  $\text{HfO}_2$  ( $K = 0.1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ,  $\rho C = 1.7 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ ,  $\partial n/\partial T = 5E - 5K^{-1}$ ) and  $\text{SiO}_2$  ( $K = 0.2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ,  $\rho C = 1.5 \times 10^6 \text{ J m}^{-3} \text{ K}^{-1}$ ,  $\partial n/\partial T = 5E - 5K^{-1}$ ).

this study the pump-beam waist was  $30 \mu\text{m}$  and the probe-beam waist was  $6 \mu\text{m}$ . The positions and sizes of the image waists of the pump and probe beams are checked with a knife-edge technique. In this configuration the Rayleigh length of the pump beam is larger than the absorbing medium ( $\sim 1 \mu\text{m}$  for the multilayers under study). The Rayleigh length of the probe beam has to be larger than the heated zone to fulfill the conditions for the calculation (see Section 2). We calculated from Eqs. (5) the temperature

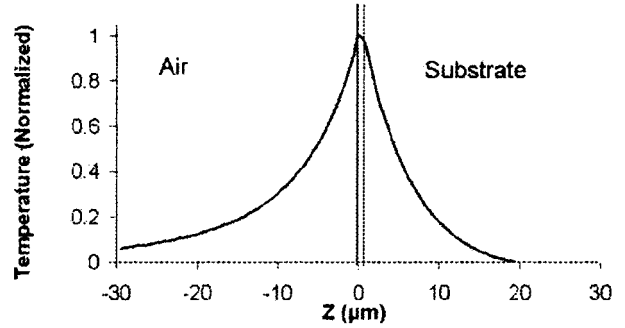


Fig. 6. Calculation of the temperature distribution in mirror M23 in our experimental configuration along the  $z$  axis at the center of the pump beam.

repartition in the sample under study (deep-ultraviolet mirror described below) and compared it to the Rayleigh length of the probe beam. The results, presented in Fig. 6, show that the condition that the probe beam's Rayleigh length ( $\sim 350 \mu\text{m}$ ) be larger than the heated zone is fulfilled.

The deflection of the probe beam is measured in this setup with a quadrant sensor. The lowest absorption that we can detect with this apparatus is related to the background noise in the case of a nonabsorbing sample: The noise equivalent absorptance equals 0.4 parts in  $10^6$  with 200 mW pump power.<sup>28</sup>

#### B. Study of a Deep-Ultraviolet Mirror

We used the model presented above to analyze and interpret measurements in a practical case: that of a high-reflectivity  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  ultraviolet mirror ( $[\text{HB}]^{11\text{H}}$ ) centered at 250 nm, made at the Institut Fresnel by plasma ion assisted deposition (more details on the method of manufacture can be found in Ref. 29). For this sample the various optical and thermal parameters that were used in the calculation are summarized in Tables 1 and 2. These parameters were either measured in the laboratory or found in the literature.

For this sample we measured the PD signal to obtain its absorption. First the signal (amplitude and phase) was measured as a function of the pump-probe-beam shift and compared with calculations (Fig. 7). Good agreement was obtained, and the model is a good description of the photothermal signal.

Then, to obtain the absorption from this measurement, we performed the appropriate calibration procedure. Indeed, the absorption measurement is indirect, and the PD signal (PDS) is strongly dependent on the thermal parameters of the sample under study. The PDS is related to the absorption of the sample ( $A_{\text{Sample}}$ ):  $A_{\text{Sample}} = \alpha \times \beta_{\text{sample}} \times \text{PDS}_{\text{sample}}$ , where  $\beta_{\text{sample}}$  is a constant that depends on the sample's properties and  $\alpha$  is a constant that depends on experimental conditions. The calibration procedure that we used is based on a comparison of the signal of sample  $\text{PDS}_{\text{sample}}$  with a calibration sample (CS) of well-known absorption. We have

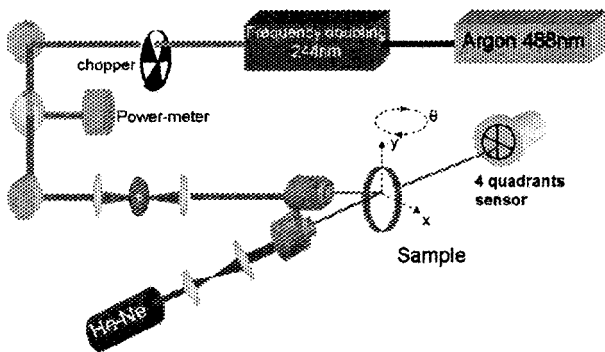


Fig. 5. Experimental setup for photothermal deflection measurements.

Table 1. Optical Parameters of the HfO<sub>2</sub> Layers

Parameter	<i>n</i>	<i>k</i>	<i>e</i> (nm)	<i>K</i> (W m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	$\rho C$ (J m <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup> )	$\partial n/\partial T$ (K <sup>-1</sup> )
Value	2.25 <sup>a</sup>	0.0025 <sup>a</sup>	28 nm <sup>a</sup>	1.7 <sup>b</sup>	1.71 × 10 <sup>6</sup> (bulk)	Unknown

<sup>a</sup>Ref. 29.

<sup>b</sup>Refs. 24 and 25.

Table 2. Optical Parameters of the SiO<sub>2</sub> Layers

Parameter	<i>n</i>	<i>k</i>	<i>e</i> (nm)	<i>K</i> (W m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	$\rho C$ (J m <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup> )	$\partial n/\partial T$ (K <sup>-1</sup> )
Value	1.52 <sup>a</sup>	0.0015 <sup>a</sup>	41 nm <sup>a</sup>	1 <sup>b</sup>	1.46 × 10 <sup>6</sup> (bulk)	5 × 10 <sup>-5c</sup>

<sup>a</sup>Ref. 29.

<sup>b</sup>Ref. 25.

<sup>c</sup>Ref. 26.

$$A_{CS} = \alpha \times \beta_{CS} \times PDS_{CS}, \quad (8)$$

$$A_{sample} = \alpha \times \beta_S \times PDS_{Sample}. \quad (9)$$

The absorption of the sample can be deduced as follows:

$$A_{sample} = A_{CS} \frac{\beta_S PDS_{sample}}{\beta_{CS} PDS_{CS}}. \quad (10)$$

*A*<sub>CS</sub> is known, the PDSs are measured, and  $\beta$  are calculated with our model.

The calibrated absorbing samples were obtained by implantation of titanium into fused-silica substrates and measured with a spectrophotometer (more de-

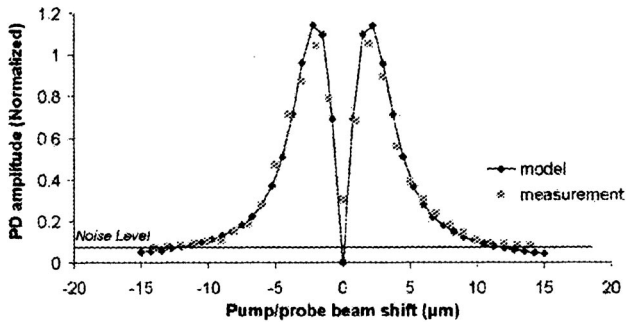
tails can be found in Refs. 28 and 30). By adjusting the ion dose we obtained four calibrated absorbing samples, to which we refer as samples 1, 2, 3, and 4 (*A*<sub>1</sub> = 0.48, *A*<sub>2</sub> = 0.15, *A*<sub>3</sub> = 0.02, and *A*<sub>4</sub> = 0.006). The photothermal deflection signal was measured on the mirror and on the various calibrated samples. The results are illustrated in Fig. 8.

Then, by applying the calibration procedure described above, we obtained the absorption of the mirror. We found that 0.005 ± 0.002. The uncertainty in this measurement is due to the fact that the HfO<sub>2</sub> thermo-optic coefficient is unknown (it varied from -10<sup>-4</sup> to 10<sup>-4</sup> in the calculation of  $\beta$ ).

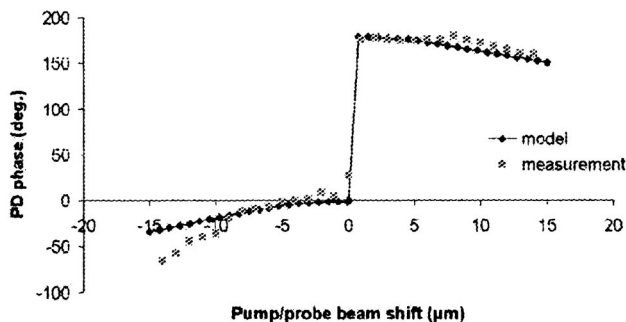
The theoretical absorption of the mirror can be calculated because we know the extinction coefficients of these two materials (see Tables 1 and 2):

$$A_{stack} = \sum_i \frac{4\pi k_i}{\lambda} \frac{n_i}{n_0} \int_{e_{i-1}}^{e_i} \left| \frac{E_i}{E_0^+}(z) \right|^2 dz. \quad (11)$$

We found a theoretical absorption of 0.009, which is similar to the calculated value. The little difference can be explained by uncertainties that have not been taken into account in our measurement and calibration procedure (mostly uncertainties in the thermal conductivity value of both materials, and in the alignment of the two beams) but also by uncertainties in the extinction index measurements.



(a)



(b)

Fig. 7. Measurement and theoretical PD versus separation between pump and probe beams in mirror M23: (a) amplitude; (b) phase.

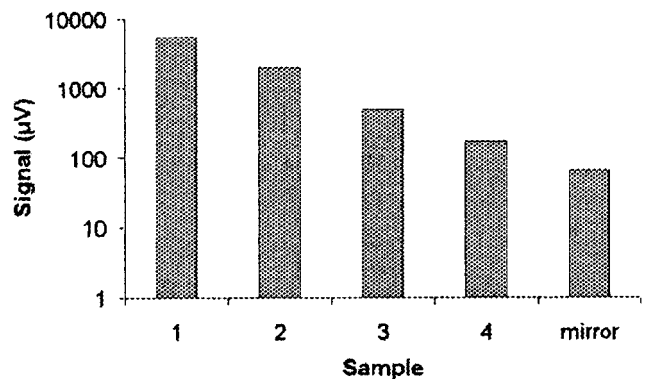


Fig. 8. Measurement of the photothermal signal on the calibration samples and on the deep-ultraviolet mirror.

#### 4. Discussion

The main difficulty in using the PD technique to measure losses in multilayer components is in the calibration of the absorption. Without this calibration, if one assumes a simple proportionality between the PDS of a calibration sample and the unknown sample, the error can be quite significant. The model presented above permits a rigorous measurement of the absorption, but it requires a good knowledge of the sample properties. The problem is that for thin-film materials we lack accurate numerical values for their thermal properties (mainly for  $\partial n/\partial T$ ). To get around this problem, solutions can be the use of a large beam or a low frequency or both for the measurement: Then the deflection is no longer predominant in the multilayer, and the error is minimized. But in this case we do not have access to measurement of local absorption. However, when the PDS is strongly dependent on the material properties a detailed study of the signal's (amplitude and phase) dependence on experimental parameters (frequency, beam size, pump-probe beam shift, wavelength, incidence, etc.) can give access to values of these properties by fits of the measurements with the model.

#### 5. Conclusions

A calculation of the photothermal deflection signal in multilayer coatings was presented. The model has been applied to the study of the deflection signal in different systems (mirror, bandpass filter) and to the interpretation of absorption measurement of a high-reflectivity HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> deep-ultraviolet mirror. Good agreement has been obtained between measurements and theoretical values.

Using the system and the model presented in this paper, one may measure accurately absolute absorption in multilayer coatings down to 10<sup>-7</sup> of the incident power. Other applications could be the determination of thermal properties and discrimination between interface and volume absorption of complex systems such as multilayer coatings.

#### Appendix A: Calculation of the Temperature Distribution

$T_i(r, z)$  is the solution of the system

$$\begin{aligned} \nabla^2 T_0(r, z, t) - \frac{\rho_0 C_0}{K_0} \frac{\partial T_0}{\partial t} &= 0, \\ \nabla^2 T_i(r, z, t) - \frac{\rho_i C_i}{K_i} \frac{\partial T_i}{\partial t} &= -\frac{2R_i}{\pi a^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{a^2}\right) \\ &\quad \times \exp(j\omega t) \left| \frac{E_i}{E_0^+}(z) \right|^2, \\ \nabla^2 T_S(r, z, t) - \frac{\rho_S C_S}{K_S} \frac{\partial T_S}{\partial t} &= -\frac{2R_S}{\pi a^2} \exp(j\omega t) \left| \frac{E_S}{E_0^+}(z) \right|^2, \end{aligned} \quad (A1)$$

with

$$R_i = \frac{P_0}{2K_i} \frac{n_i}{n_0} \frac{4\pi k_i}{\lambda}.$$

We consider the radial Fourier transform

$$T_i(r, z) = 2\pi \int_0^{+\infty} \sigma J_0(2\pi\sigma r) \widetilde{T}_i(\sigma, z) d\sigma, \quad (A2)$$

where  $\widetilde{T}_i(\sigma, z)$  is the radial Fourier transform of the temperature. Then system (A1) becomes

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial z^2} \widetilde{T}_0(\sigma, z, t) - \alpha_0^2(\sigma) \widetilde{T}_0(\sigma, z, t) &= 0, \\ \frac{\partial^2}{\partial z^2} \widetilde{T}_i(\sigma, z, t) - \alpha_i^2(\sigma) \widetilde{T}_i(\sigma, z, t) &= -R_i \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{a^2 \sigma^2 \pi^2}{2}\right) \exp(j\omega t) \left| \frac{E_i}{E_0^+}(z) \right|^2, \\ \frac{\partial^2}{\partial z^2} \widetilde{T}_S(\sigma, z, t) - \alpha_S^2(\sigma) \widetilde{T}_S(\sigma, z, t) &= -R_S \\ &\quad \times \exp\left(-\frac{a^2 \sigma^2 \pi^2}{2}\right) \exp(j\omega t) \left| \frac{E_S}{E_0^+}(z) \right|^2 \exp\left(-\frac{4\pi k_S}{\lambda} z\right), \end{aligned} \quad (A3)$$

with

$$\begin{aligned} \mu_i &= \left( \frac{K_i}{\rho_i C_i \pi F} \right)^{1/2}, & \alpha_i^2 &= 4\pi^2 \sigma^2 + \frac{2j}{\mu_i^2}, \\ R_i &= \frac{P_0}{2K_i} \frac{n_i}{n_0} \frac{4\pi k_i}{\lambda}. \end{aligned}$$

Using the limit conditions, we obtain for the transform of the temperature

$$\begin{aligned} \widetilde{T}_0(\sigma, z, t) &= A_0(\sigma) \exp[\alpha_0(\sigma)z] \exp(j\omega t), \\ \widetilde{T}_i(\sigma, z, t) &= \left\{ A_i(\sigma) \exp[\alpha_i(\sigma)z] + \beta_i(\sigma) \exp[-\alpha_i(\sigma)z] \right. \\ &\quad + F_i(\sigma) \left[ E_i^{+2} \exp\left(-\frac{4\pi k_i}{\lambda} z\right) \right. \\ &\quad \left. + E_i^{-2} \exp\left(\frac{4\pi k_i}{\lambda} z\right) \right] + G_i(\sigma) \left[ E_i^+ E_i^{-*} \right. \\ &\quad \left. \times \exp\left(-j \frac{4\pi n_i}{\lambda} z\right) \right. \\ &\quad \left. + E_i^{+*} E_i^- \exp\left(j \frac{4\pi n_i}{\lambda} z\right) \right] \left. \right\} \exp(j\omega t), \\ \widetilde{T}_S(\sigma, z, t) &= \left\{ B_S(\sigma) \exp[-\alpha_2(\sigma)z] + F_S(\sigma) E_S^{+2} \right. \\ &\quad \left. \times \exp\left(-\frac{4\pi k_S}{\lambda} z\right) \right\} \exp(j\omega t), \end{aligned} \quad (A4)$$



2. J. C. Murphy and L. C. Aamodt, "Photothermal spectroscopy using optical beam probing: mirage effect," *J. Appl. Phys.* **51**, 4580–4588 (1980).
3. E. Welsh and D. Ristau, "Photothermal measurements on optical thin films," *Appl. Opt.* **34**, 7339–7253 (1995).
4. M. Commandré and E. Pelletier, "Measurement of absorption losses in TiO<sub>2</sub> films by a collinear photothermal deflection technique," *Appl. Opt.* **29**, 4276–4283 (1990).
5. M. Commandré and P. Roche, "Characterization of optical coatings by photothermal deflection," *Appl. Opt.* **35**, 5021–5034 (1996).
6. Z. Wu, M. Thomsen, P. Kuo, Y. Lu, C. Stolz, and M. Koslowski, "Photothermal characterization of optical thin film coatings," *Opt. Eng.* **36**, 251–262 (1997).
7. V. Loriette and C. Boccara, "Absorption of low-loss optical materials measured at 1064 nm by a position-modulated collinear photothermal detection technique," *Appl. Opt.* **42**, 649–656 (2003).
8. A. During, C. Fossati, and M. Commandré, "Photothermal deflection microscopy for imaging submicronic defects in optical materials," *Opt. Commun.* **230**, 279–286 (2004).
9. W. Mundy, J. Ermshar, P. Hanson, and R. Hughes, "Photothermal deflection microscopy of HR and AR coatings," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1983*, H. E. Bennett, A. H. Guenther, D. Milam, and B. E. Newman, eds., Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ. **688**, 360–371 (1983).
10. A. Papandrew, C. Stolz, Z. Wu, G. Loomis, and S. Falabella, "Laser conditioning characterization and damage threshold prediction of hafnia/silica multilayer mirrors by photothermal microscopy," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2000*, G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M. R. Kozlowski, K. L. Lewis, and M. J. Soileau, eds., Proc. SPIE **4347**, 53–61 (2001).
11. A. During, M. Commandré, C. Fossati, B. Bertussi, J. Y. Natoli, J. L. Rullier, H. Bercegol, and P. Bouchut, "Integrated photothermal microscope and laser damage test facility for *in-situ* investigation of nanodefekt induced damage," *Opt. Express* **11**, 2497–2501 (2003).
12. D. Ristau, X. Dang, and J. Ebert, "Interface and bulk absorption of oxide layers and correlation to damage threshold," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1985*, H. E. Bennett, A. H. Guenther, D. Milam, and B. E. Newman, eds., Natl. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ. **727**, 298–312 (1986).
13. E. Welsh, H. Walther, R. Wolf, D. Schafer, and L. Wiczorek, "Measurement of optical losses and damage threshold of multilayer coatings," *Thin Solid Films* **117**, 87–94 (1984).
14. E. Welsh, H. Walther, D. Schafer, and R. Wolf, "Measurement of optical losses and damage resistance of ZnS–Na<sub>3</sub>AlF<sub>6</sub> and TiO<sub>2</sub>–SiO<sub>2</sub> laser mirrors depending on coating design," *Thin Solid Films* **152**, 433–442 (1987).
15. E. Welsh, H. Walther, D. Schafer, R. Wolf, and H. Muller, "Correlation between morphology, optical losses and laser damage of MgF<sub>2</sub>–SiO<sub>2</sub> multilayers," *Thin Solid Films* **156**, 1–10 (1988).
16. H. Walther, E. Welsh, and J. Opfermann, "Calculation and measurement of the absorption in multilayer films by means of photoacoustics," *Thin Solid Films* **142**, 27–35 (1986).
17. W. Jackson, N. M. Amer, A. C. Boccara, and D. Fournier, "Photothermal deflection spectroscopy and detection," *Appl. Opt.* **20**, 1333–1344 (1981).
18. M. A. Olmstead, N. M. Amer, S. Kohn, D. Fournier, and A. C. Boccara, "Photothermal displacement spectroscopy: an optical probe for solids and surfaces," *Appl. Phys.* **32**, 141–154 (1983).
19. P. Zimmermann and E. Welsch, "Modeling of signal detection by using the photothermal probe beam deflection technique," *Rev. Sci. Instrum.* **65**, 97–101 (1994).
20. G. Rousset, F. Charbonnier, and F. Lepoutre, "Influence of radiative and convective transfers in a photothermal experiment," *J. Appl. Phys.* **56**, 2093–2096 (1984).
21. H. A. Macleod, *Thin-Film Optical Filters* (Adam Hilger, 1986).
22. D. Decker, L. Koshigoe, and E. Ashley, "Thermal properties of optical thin film materials," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1984*, H. E. Bennett, A. H. Guenther, D. Milam, and B. E. Newman, eds., Natl. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ. **727**, 291–297 (1986).
23. D. Ristau and J. Ebert, "Development of a thermographic laser calorimeter," *Appl. Opt.* **25**, 4571–4578 (1986).
24. J. Lambropoulos, M. Jolly, C. Amsden, S. Gilman, M. Siniropi, D. Diakomihalis, and S. Jacobs, "Thermal conductivity of dielectric thin films," *J. Appl. Phys.* **66**, 4230–4242 (1989).
25. S. Lee, D. Cahill, and T. Allen, "Thermal conductivity of sputtered oxide films," *Phys. Rev. B* **52**, 253–257 (1995).
26. E. Drouard, P. Huguet-Chantôme, L. Escoubas, and F. Flory, " $\partial n/\partial T$  measurements performed with guided waves and their application to the temperature sensitivity of wavelength-division multiplexing filters," *Appl. Opt.* **41**, 3192–3136 (2002).
27. L. Gallais, H. Hinsch, M.-L. Lay, and M. Commandré, "Photothermal facility for optical characterization of DUV materials," in *Advances in Optical Thin Films*, C. Amra, N. Kaiser, and H. Angus Macleod, eds. Proc. SPIE **5250**, 597–602 (2004).
28. L. Gallais and M. Commandré, "Simultaneous absorption, scattering, and luminescence mappings for the characterization of optical coatings and surfaces," *Appl. Opt.* (to be published).mc
29. P. Torchio, A. Gatto, M. Alvisi, G. Albrand, N. Kaiser, and C. Amra, "High-reflectivity HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> ultraviolet mirrors," *Appl. Opt.* **41**, 3156–3261 (2002).
30. S. Tisserand, F. Flory, A. Gatto, L. Roux, M. Adamik, and I. Kovacs, "Titanium implantation in bulk and thin film amorphous silica," *J. Appl. Phys.* **83**, 5150–5153 (1998).



# Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing

H. Krol<sup>a,b,\*</sup>, L. Gallais<sup>a</sup>, C. Grèzes-Beset<sup>b</sup>, J.-Y. Natoli<sup>a</sup>, M. Commandré<sup>a</sup>

<sup>a</sup> *Institut Fresnel, UMR CNRS 6133, Ecole Généraliste d'Ingénieurs de Marseille – Université Aix Marseille I – Université Aix Marseille III, 13397 Marseille Cedex 20, France*

<sup>b</sup> *CILAS Marseille, ZI St Mitre, Avenue de la Roche Fourcade, 13400 Aubagne, France*

Received 3 March 2005; received in revised form 3 June 2005; accepted 23 June 2005

## Abstract

A statistical model of nanoprecursors threshold distribution for the interpretation of laser-damage probability curves is investigated. Each kind of precursor is characterized by a Gaussian distribution of threshold. Accurate probability curves of laser-induced damage (1-on-1, 5-ns single shot at 1.064- $\mu\text{m}$ ) are plotted in the bulk and at the surfaces of optical components. Results are then fitted with the model presented. A good agreement is obtained between theory and experiment, which permits to identify different kinds of defects and extract their densities and threshold distribution. The interpretation of these data is then discussed according to their nature and origin (cleaning and polishing). © 2005 Elsevier B.V. All rights reserved.

PACS: 42.79.W; 61.80.B; 79.20.Ds; 81.65.Ps

Keywords: Laser-damage precursors; Threshold distribution; Defect damage model; Optical coatings

## 1. Introduction

Laser-induced damage in optical components is often a problem of defects, located on surfaces and interfaces or in the bulk of coatings and substrates.

Different theoretical and experimental studies have shown that absorbing nanometer-sized particles are responsible for the initiation of the damage process [1–7]. In most cases, they are not identified since they can have nanoscale size and can be distributed at low concentration. One way to obtain information on these defects, also referred as “nanoprecursors”, is to plot laser-damage probability curves. Indeed, different models have been developed [8–12], which permit the interpretation

\* Corresponding author. Tel.: +33491288072; fax: +33491288067.

E-mail address: [helene.krol@fresnel.fr](mailto:helene.krol@fresnel.fr) (H. Krol).

URL: <http://www.fresnel.fr> (H. Krol).

of laser-damage probability curves and involve parameters such as nanoprecursor threshold and densities.

One of these models [8,11] assumes that all defects of a given class fail at the same laser fluence. It leads to a two-parameter damage probability law that provides the damage threshold and the defect density. In some cases, this simple assumption perfectly fits the measurement curve. Nevertheless in numerous cases, improvements in the metrology of laser damage has highlighted some discrepancies between this theory and experiment. Another model [9,10] assumes that defects cause damage according to a power law and leads to a three-parameter damage probability law. It provides information about the shape of the defect ensemble in addition to the damage threshold and the defect density. This second model can often give better fits of measurement curves.

In this paper, we go further in the investigation by considering a Gaussian distribution of nanoprecursor thresholds. Physically, all defects of a given class cannot fail at the same fluence because of a possible size and absorption distribution. Then we propose to use a Gaussian law. Parameters of this distribution (threshold mean value, threshold standard deviation and precursor defect densities) can then be extracted for each kind of observed precursors.

In the first part of the paper, the Gaussian model of threshold distribution is proposed and applied to surface, bulk and thin-film precursors. In the second part, surfaces of different substrates and single layer coatings are analyzed, threshold distribution of defects that are responsible for damage are extracted from measurement curves and commented. In the third part, we discuss the interest of this new model in the understanding of laser-damage probability curves.

## 2. Model

### 2.1. Surface precursors

Consider a collection of isolated surface defects under Gaussian laser beam illumination at normal incidence. Each defect is characterized by its own damage threshold  $T$ , i.e. all defects of a given class

do not fail at the same fluence. The defect population is then specified by the ensemble function  $g(T)$ , which gives the number of defects per unit area that damage at fluence between  $T$  and  $T + dT$ . We propose to consider that the ensemble function  $g(T)$  follows a Gaussian law (Fig. 1 and Eq. (1)). Then the ensemble function  $g(T)$  depends on three parameters: threshold mean value  $T_0$ , threshold standard deviation  $\Delta T$  (full width at  $1/e^2$ ) and defect density  $d$ . The relationship between  $g(T)$  and defect density  $d$  is obtained from normalization condition (Eq. (2)):

$$g(T) = \frac{2d}{\Delta T\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{T - T_0}{\Delta T/2}\right)^2\right], \quad (1)$$

$$\int_0^\infty g(T) dT = d. \quad (2)$$

Consider  $dN$ , the number of defects located under the laser spot area  $S_T(F)$  and whose threshold is between  $T$  and  $T + dT$ . The laser spot area  $S_T(F)$  is the part of the spot size, where energy density  $F$  is greater than the precursor threshold  $T$ :  $S_T(F) = (\pi w^2/2)(\ln(F/T))$ , with  $w$ , the laser spot radius on the surface sample at the laser waist

$$dN = g(T)S_T(F) dT, \quad (3)$$

$N(F)$  is the number of defects, located under the laser spot of fluence  $F$  and whose threshold is lower than  $F$

$$N(F) = \int_0^F g(T)S_T(F) dT. \quad (4)$$

The probability of damage  $P(F)$  is the probability of the presence of a defect that receives more

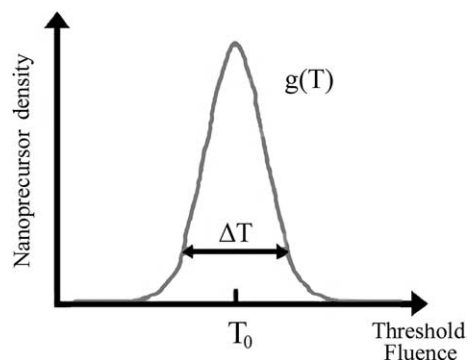


Fig. 1. Gaussian defect distribution.



energy density than its intrinsic threshold. This probability is given by a Poisson law and can be expressed as a function of fluence  $F$  or energy per unit of surface:

$$P(F) = 1 - \exp(-N(F)). \tag{5}$$

The analytical formula for the probability function can be obtained directly with Eqs. (1), (4) and (5)

$$P(F) = 1 - \exp \left[ -\frac{\sqrt{\pi}dw^2}{\Delta T\sqrt{2}} \times \int_0^F \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{T - T_0}{\Delta T/2} \right)^2 \right] \ln \left( \frac{F}{T} \right) dT \right]. \tag{6}$$

As shown by Eq. (6), damage probability depends now on four parameters  $T_0$ ,  $\Delta T$ ,  $d$  and the laser-spot diameter  $w$ . Numerical calculation of  $P(F)$  for different values of  $T_0$ ,  $\Delta T$ ,  $d$  and  $w$  makes it possible to understand the influence of each parameter on the probability curve. Influences of  $T_0$ ,  $d$  and  $w$  are already known [8,10,11] (the higher the density or the spot size, the higher the slope of probability curves). In Fig. 2, we illustrate the influence of threshold standard deviation  $\Delta T$  on the probability curve. We notice that  $\Delta T$  has an influence on the curvature of the low part of the curve.

The absolute threshold is the greatest value of  $F$  that do not lead to a damage, i.e.  $P(F) = 0$ . However,  $P(F)$  is mathematically never equal to zero because of the use of a Gaussian law for the description of the threshold distribution. In fact, the study of several probability curves and their

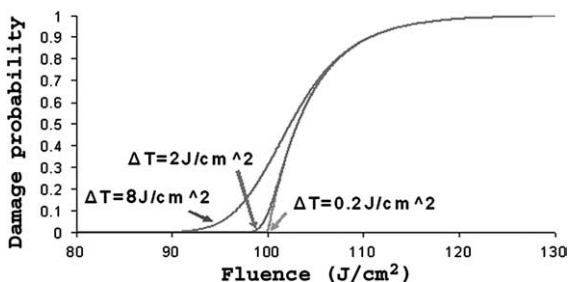


Fig. 2. Influence of threshold standard deviation  $\Delta T$  on the probability curve.  $T_0 = 100 \text{ J/cm}^2$ ,  $d = 7 \times 10^3 \text{ defects/mm}^2$  and  $w = 6 \text{ }\mu\text{m}$ .

associated best-fit curves show that we can define arbitrary the absolute threshold  $T_a$  such as  $P(T_a) = 0.001$ .

### 2.2. Bulk precursors

In case of bulk precursors, we have to consider  $dN$ , the number of isolated bulk defects located in  $V_T(F)$  and whose threshold is between  $T$  and  $T + dT$ .  $V_T(F)$  is the efficient volume, where the energy density  $F$  is greater than the precursor threshold (see Fig. 3).

Provided that the beam is Gaussian, the efficient volume  $V_T(F)$  is given by Natoli [11].  $N(F)$  can be expressed according to Eq. (4) and then  $P(F)$  is obtained with Eq. (5)

$$N(F) = \int_0^F g(T) V_T(F) dT. \tag{7}$$

### 2.3. Thin-film precursors

The case of thin-film precursors includes the defects found in coating layers but also referred to the defects contained in the polishing layer [4,13–16]. For a layer thickness  $e$ , we have to consider

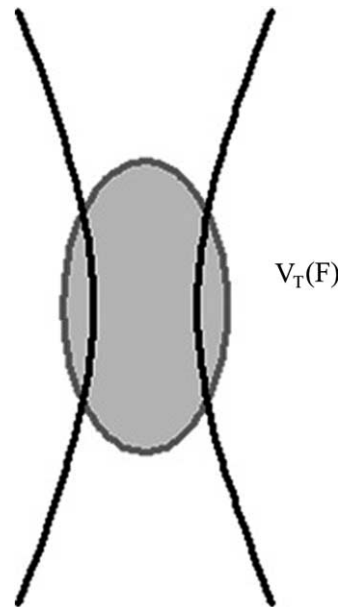


Fig. 3. Laser beam focused in a bulk sample.

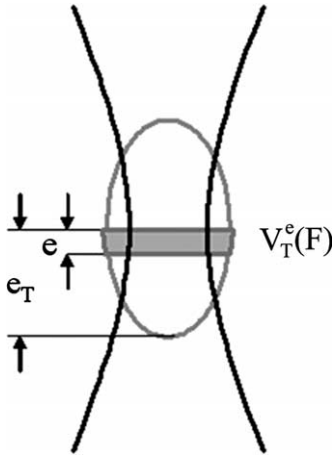


Fig. 4. Laser beam focused on the surface of a thin-film sample.

$dN$ , the number of isolated bulk defects located in  $V_T^e(F)$  and whose threshold is between  $T$  and  $T + dT$ .  $V_T^e(F)$  is the efficient volume in the monolayer, where the energy density  $F$  is greater than the precursor threshold (see Fig. 4).

The efficient volume  $V_T^e(F)$  depends on the thickness  $e$  of the monolayer. If  $e > e_T = Z_R \sqrt{\frac{F}{T} - 1}$  then  $V_T^e(F) = V_T(F)$ . If  $e < e_T = Z_R \sqrt{\frac{F}{T} - 1}$ ,

$$V_T^e(F) = \frac{\pi}{2} \int_0^e w^2(z) \ln \left( \frac{F}{T} \frac{w_0^2}{w^2(z)} \right) dz. \quad (8)$$

If thin-film precursors are uniformly distributed in the efficient volume  $V_T^e(F)$  and if  $e \ll e_T$ , the model with surface precursors can be also applied.

### 3. Application

The test apparatus [17] involves a single-mode YAG laser beam with 1.064- $\mu\text{m}$  wavelength and 5-ns pulse duration. The damage test procedure 1-on-1 [18] is used. By counting the number of damage regions at each fluence  $F$  we estimate the probability curve  $P(F)$ . To have a good accuracy of the measurement [11], each curve  $P(F)$  is plotted with 1000 data points that involve 20 different fluences and 50 tested regions at each fluence, which leads to an absolute accuracy  $\Delta P = 0.07$ .

The Gaussian model that we have discussed above is applied to the case of substrates and coatings. We estimate the accuracy to  $\pm 20\%$  for the defect density  $d$ ,  $\pm 5\%$  for the threshold  $T_0$  and  $\pm 10\%$  for the threshold standard deviation  $\Delta T$ .

Fig. 5 shows the experimental probability curves measured at the front surface of two fused silica substrates. The associated best-fit curves and the defect ensembles extracted from the probability curve are also presented. These two substrates have been polished according to two different processes. We note that the process *A* leads to an absolute threshold ( $T_a$ ) of 60 J/cm<sup>2</sup> and to the existence of two classes of defects. The process *B* leads to an absolute threshold ( $T_a$ ) of 86 J/cm<sup>2</sup> and to the existence of only one class of defects: equivalent to the second class of defects of process *A*.

Fig. 6 shows an example of the experimental probability curve measured at the front surface of an Infrasil substrate coated with a Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> single

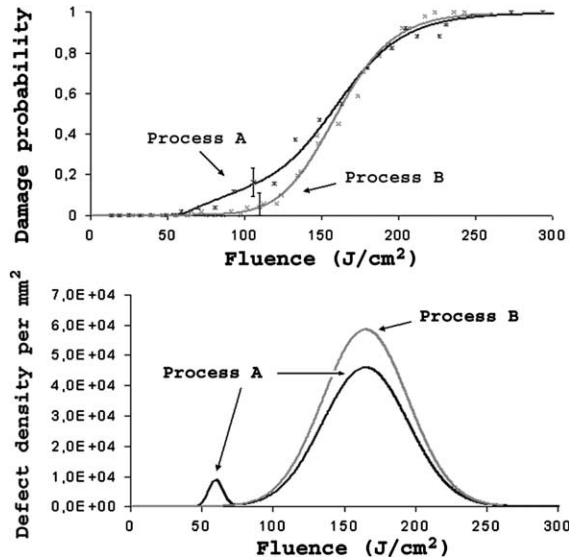


Fig. 5. Probability curves of laser-induced damage measured at the front surface of two fused silica substrates, best-fit curves and Gaussian distribution of precursor thresholds. Process A: two kinds of defects, process B: one kind of defect and improvement of the threshold. Best-fit curves are calculated with the following parameters:  $d_1^A = 1.1 \times 10^3$  defects/mm<sup>2</sup>,  $T_1^A = 60$  J/cm<sup>2</sup>,  $\Delta T_1^A = 10$  J/cm<sup>2</sup>,  $d_2^A = 3.4 \times 10^4$  defects/mm<sup>2</sup>,  $T_2^A = 165$  J/cm<sup>2</sup>,  $\Delta T_2^A = 60$  J/cm<sup>2</sup>,  $d^B = 4.4 \times 10^4$  defects/mm<sup>2</sup>,  $T^B = 165$  J/cm<sup>2</sup>,  $\Delta T^B = 60$  J/cm<sup>2</sup> and  $w = 6$   $\mu\text{m}$ .

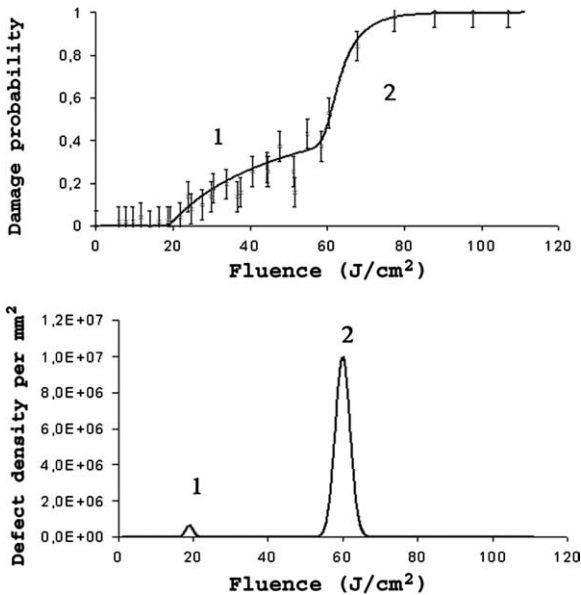


Fig. 6. Probability curves of laser-induced damage measured at the front surface of an Infrasil substrate coated with a  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  single layer (mechanical thickness 1100 nm) deposited by DIBS technique. The best-fit curve and distribution of precursor threshold highlighted two kinds of defects with the following parameters:  $d_1 = 16 \times 10^3$  defects/mm<sup>3</sup>,  $T_1 = 19$  J/cm<sup>2</sup>,  $\Delta T_1 = 2$  J/cm<sup>2</sup>,  $d_2 = 5 \times 10^5$  defects/mm<sup>3</sup>,  $T_2 = 60$  J/cm<sup>2</sup>,  $\Delta T_2 = 4$  J/cm<sup>2</sup> and  $w = 6$   $\mu\text{m}$ .

layer (mechanical thickness 1100 nm) deposited by DIBS technique (Dual Ion Beam Sputtering). The associated best-fit curve and the defect ensemble are also plotted. We note the existence of two classes of defects and an absolute threshold  $T_a = 17$  J/cm<sup>2</sup>, whereas the absolute threshold of Infrasil substrate without coating is 40 J/cm<sup>2</sup>.

This result shows the apparition of defects during the deposition of  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  single layer. These defects can be found in the coating layer but also at the interface between the substrate and the coating. Further studies are needed to understand the role of coating layers and interfaces: influence of mechanical thickness of the single layer and influence of substrate cleaning before deposition.

#### 4. Discussion

The use of a tree-parameter damage probability law (Gaussian model) can often give better fits of

measurement curves than a two-parameter law (degenerated model [8,11]). Indeed, in numerous cases, the degenerated model does not fit the measurement curve (Fig. 7). Furthermore, it is not realistic to consider that all defects, precursors of laser-induced damage, have the same damage thresholds. For example, in the case of absorbing precursors, any variation of size, absorption, contact with the host materials can be assumed responsible for variations of damage threshold.

The introduction of a new variable  $\Delta T$  gives a more precise and realistic information about defects. The results obtained with this refined statistical model could be combined with model predicting the laser-damage initiation threshold [12,19] as a function of inclusion parameters (size and material).

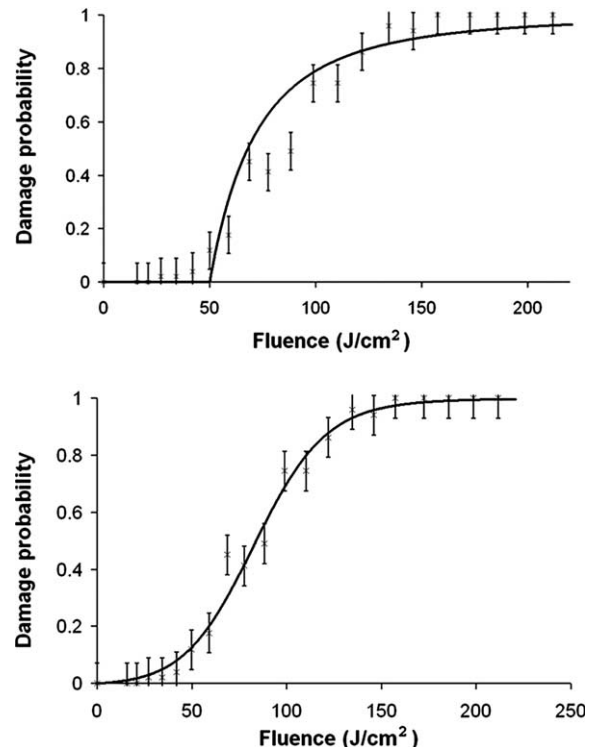


Fig. 7. Probability curve of laser-induced damage measured at the front surface of a BK7 substrate. The curve is fitted with the degenerated model (top) and the Gaussian model (bottom).

## 5. Conclusion

We have presented a new approach for improving the interpretation of laser-damage probability curves. Indeed laser-induced damage in optical material is often a problem of defects, and our aim was to characterize them as well as possible. Then we have proposed to consider that in a given class of defects, each defect has its own threshold, i.e. thresholds of the defect population are distributed. In this paper, a Gaussian distribution of thresholds has been considered. Other models can be used, but they require a preliminary knowledge of these defects (especially size and absorption). To illustrate our investigation, we have shown experimental results obtained on substrates polished according to different techniques. Results achieved on a Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> single layer are also shown, which establish a good agreement between theory and experiment. This model is of interest for the study of polishing and cleaning processes since it improves the knowledge on laser-damage precursors.

## References

- [1] N. Bloembergen, *Applied Optics* 12 (4) (1973) 661.
- [2] M.R. Kozlowski, R. Chow, *Proceedings of the SPIE* 2114 (1993) 640.
- [3] J. Dijon, T. Poiroux, C. Desrumaux, *Proceedings of the SPIE* 2966 (1997) 315.
- [4] A.M. Rubenchik, M.D. Feit, *Proceedings of the SPIE* 4679 (2002) 79.
- [5] S. Papernov, A.W. Schmid, *Journal of Applied Physics* 92 (2002) 5720.
- [6] 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. Bergegol, L. Lamaignere, M. Loiseau, J.T. Donohue, *Applied Physics B: Lasers and Optics* B75 (8) (2002) 803.
- [7] J.Y. Natoli, L. Gallais, B. Bertussi, A. During, M. Commandre, *Optics Express* 11 (7) (2003) 824.
- [8] S.R. Foltyn, *Proceedings of the SPIE* 669 (1984) 368.
- [9] J.O. Porteus, S.C. Seitel, *Applied Optics* 23 (21) (1984) 3796.
- [10] R.M. O'Connell, *Applied Optics* 31 (21) (1992) 4143.
- [11] J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, C. Amra, *Applied Optics* 41 (16) (2002) 3156.
- [12] M.D. Feit, A.M. Rubenchik, *Proceedings of the SPIE* 5273 (1) (2004) 74.
- [13] P. Paul-Hed, D.F. Edwards, *Applied Optics* 26 (21) (1987) 4677.
- [14] J. Neauport, D. Valla, J. Duchesne, P. Bouchut, L. Lamaignere, J. Bigarre, N. Daurios, *Proceedings of the SPIE* 5252 (1) (2004) 131.
- [15] B. Bertussi, J.Y. Natoli, M. Commandre, *Optics Communications* 242 (2004) 227.
- [16] J.A. Randi, J.C. Lambropoulos, S.D. Jacobs, *Applied Optics* 44 (12) (2005) 2241.
- [17] L. Gallais, J.Y. Natoli, *Applied Optics* 42 (6) (2003) 960.
- [18] Iso 11254-1, *Determination of Laser-damage Threshold of Optical Surfaces – part 1: 1-on-1 test*, 2000.
- [19] L. Gallais, P. Voarino, C. Amra, *Journal of the Optical Society of America B: Optical Physics* 21 (5) (2004) 1073.

# Métrologie de l'endommagement laser

par **Laurent GALLAIS**

*Ingénieur de l'École nationale supérieure de physique de Marseille, docteur 3<sup>e</sup> cycle  
Maître de conférences à l'École centrale Marseille – Institut Fresnel*

<b>1. Généralités : définitions et notions liées au domaine.....</b>	<b>R 6 738 – 2</b>
1.1 Endommagement laser .....	– 2
1.2 Paramètres d'irradiation laser .....	– 2
1.3 Seuil d'endommagement laser.....	– 3
<b>2. Origine de l'endommagement laser .....</b>	<b>– 3</b>
2.1 Effets électromagnétiques .....	– 4
2.1.1 Claquage diélectrique.....	– 4
2.1.2 Exaltation du champ électrique .....	– 4
2.1.3 Autofocalisation .....	– 4
2.2 Effets thermiques .....	– 4
2.2.1 Absorption volumique .....	– 5
2.2.2 Absorption de surface .....	– 5
2.2.3 Absorption localisée .....	– 5
2.2.4 Effets thermomécaniques.....	– 5
2.2.5 Effets thermochimiques.....	– 6
2.2.6 Autofocalisation thermique.....	– 6
2.3 Autres effets .....	– 6
2.3.1 Effet Brillouin .....	– 6
2.3.2 Effets cumulatifs .....	– 6
2.3.3 Croissance des dommages .....	– 6
<b>3. Métrologie de la tenue au flux laser .....</b>	<b>– 6</b>
3.1 Dispositif de mesure de tenue au flux laser .....	– 7
3.2 Paramètres d'irradiation laser .....	– 7
3.2.1 Durée effective .....	– 7
3.2.2 Surface effective .....	– 7
3.2.3 Densité d'énergie ou de puissance .....	– 8
3.3 Mesures de probabilités d'endommagement .....	– 8
3.3.1 Méthode de test 1-on-1 .....	– 8
3.3.2 Méthode de test S-on-1 .....	– 8
3.3.3 Méthode de test R-on-1 .....	– 9
3.4 Mesures de densités de dommages .....	– 9
<b>4. Influence des paramètres d'irradiation sur la tenue au flux laser, lois d'échelle .....</b>	<b>– 9</b>
4.1 Longueur d'onde .....	– 10
4.2 Durée d'irradiation .....	– 10
4.3 Dimension du faisceau laser.....	– 10
4.4 Nombre de tirs, taux de répétition .....	– 10
4.5 Polarisation .....	– 10
4.6 Considérations environnementales .....	– 11
<b>5. Composants optiques adaptés aux forts flux laser .....</b>	<b>– 11</b>
5.1 Matériaux massifs .....	– 11
5.2 Polissage des surfaces .....	– 11
5.3 Nettoyage des surfaces.....	– 11
5.4 Couches minces diélectriques .....	– 11
5.5 Conditionnement des matériaux .....	– 12
5.6 « Réparation » des dommages .....	– 12
5.7 Fibres optiques .....	– 12
<b>6. Conclusion.....</b>	<b>– 12</b>
<b>Pour en savoir plus.....</b>	<b>Doc. R 6 738</b>

**L**es lasers de puissance sont utilisés dans un grand nombre d'applications, que ce soit dans le domaine industriel, scientifique, médical ou de la défense. Un des verrous technologiques à l'essor des sources lasers à haute puissance ou haute énergie est l'endommagement sous irradiation des composants optiques. En effet, lorsqu'un fort flux laser traverse un composant optique ou est réfléchi sur un miroir, des effets réversibles peuvent être observés comme des effets non linéaires ou des échauffements qui peuvent provoquer des contraintes, des déformations. Si l'on augmente la quantité de lumière (soit en augmentant l'intensité, soit en confinant le faisceau), il peut se produire alors des effets irréversibles : fusion, vaporisation, craquelures, brisures, éclats, cratères, décollements... altérant la fonction optique du composant, voire le rendant inutilisable. Ces modifications permanentes du matériau sont définies comme des « endommagements laser ». Ce phénomène a par conséquent l'inconvénient d'affecter la durée de vie des composants optiques ainsi que le coût de maintenance des chaînes laser. Il peut également être à l'origine de graves problèmes de sécurité. La connaissance des phénomènes physiques mis en jeu en fonction des paramètres laser et la mesure de ces effets est donc d'une importance majeure pour la conception d'un système laser et son utilisation dans des conditions optimales de fiabilité, de sécurité et de rentabilité.

La problématique de la tenue au flux est étudiée depuis l'invention du laser et il existe une base de données impressionnante sur le sujet [1]. Nous proposons dans cet article une approche synthétique de cette thématique, forcément limitée, mais qui permettra à l'ingénieur ou au chercheur confronté au problème de se familiariser avec les notions liées au domaine, les phénomènes physiques mis en jeu et la façon dont ces effets peuvent être quantifiés et les mesures rapportées à son application.

Nous expliciterons dans un premier temps les différents mécanismes physiques pouvant aboutir à la destruction d'un composant optique soumis à un flux laser, étape nécessaire à la compréhension et à l'interprétation des mesures. Puis nous décrirons les méthodes de mesure de la tenue au flux laser et discuterons de leur interprétation et de l'influence des paramètres laser sur l'endommagement. Enfin nous présenterons rapidement les matériaux et procédés de fabrication spécifiques aux composants résistants au flux laser.

## 1. Généralités : définitions et notions liées au domaine

### 1.1 Endommagement laser

L'endommagement laser est le résultat d'une interaction laser-matière qui se traduit par une dégradation matérielle des optiques, entraînant une détérioration de leur(s) fonction(s) optique(s). On définit généralement par « endommagement laser » toute modification irréversible du composant induite de façon non intentionnelle (figure 1).

Les mécanismes et les valeurs énergétiques pouvant conduire à ces effets sont intimement liés aux paramètres d'irradiation.

### 1.2 Paramètres d'irradiation laser

Les paramètres principaux à prendre compte pour connaître les effets potentiels d'une irradiation laser sur un composant optique sont la longueur d'onde, la durée d'irradiation, la taille du faisceau et les caractéristiques énergétiques du faisceau. Dans le cas d'un laser continu cette dernière caractéristique est la puissance

moyenne. Dans le cas d'un laser impulsionnel ou à blocage de modes, plusieurs paramètres doivent être pris en compte. Nous avons représenté de façon schématisée sur la figure 2 les caractéristiques d'un tel laser.

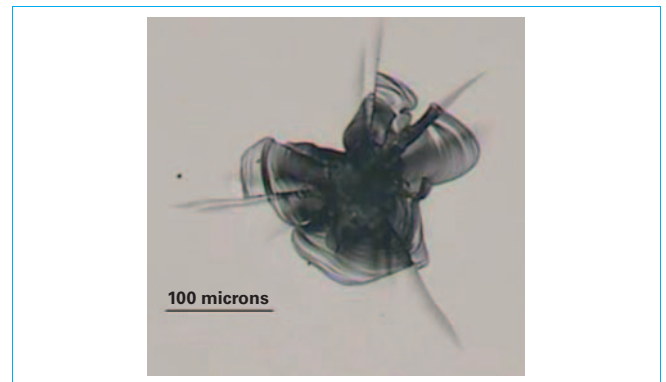
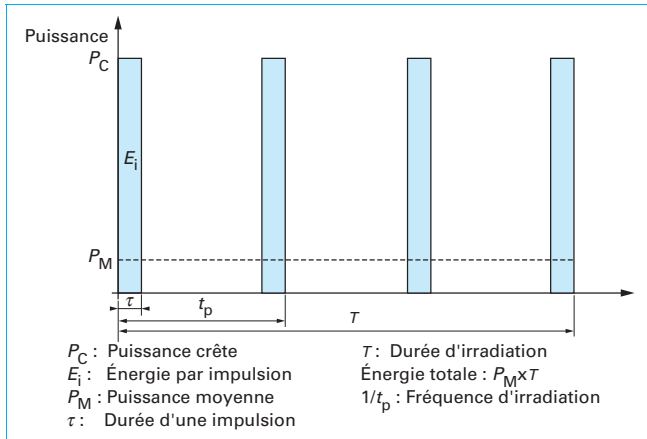
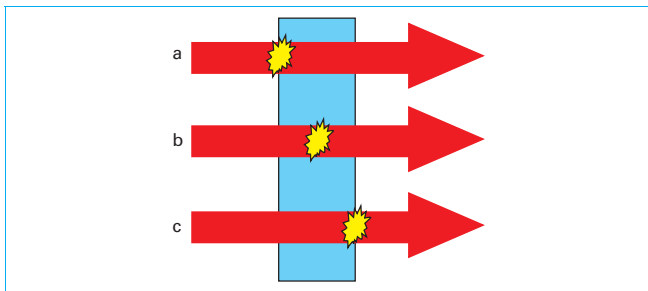


Figure 1 – Endommagement laser observé à la surface d'un verre de silice. Le composant a été irradié avec un laser Nd:YAG 1 064 nm, 6 ns



**Figure 2 – Caractéristiques énergétiques d'une irradiation par un laser impulsif ou à blocage de modes**



**Figure 3 – L'endommagement laser d'un composant peut se produire sur la surface (face avant ou face arrière par rapport au sens de propagation du faisceau) ou dans le volume du matériau**

#### Exemple

Un laser Nd:YAG doublé (532 nm) émet des impulsions de 10 ns à 10 Hz avec une puissance moyenne de 1 W.  
 L'énergie par impulsion est alors :  $E_i = P_M / F = 1 \text{ W} / 10 \text{ Hz} = 100 \text{ mJ}$ .  
 La puissance crête est  $P_C = E_i / \tau = 10^{-1} \text{ J} / 10^{-8} \text{ s} = 10 \text{ MW}$ .

Suivant les valeurs de ces paramètres, la grandeur critique concernant l'endommagement pourra être la puissance crête, l'énergie par impulsion ou la puissance moyenne.

La durée d'irradiation, le nombre de tirs cumulés et la fréquence rentrent également en jeu bien souvent, puisque des effets de fatigue des matériaux peuvent se produire, comme nous le verrons dans la partie 2.

Le sens de propagation de la lumière dans le composant est également à prendre en compte dans certains cas. On désigne alors par **face avant**, la face d'entrée du faisceau laser dans l'échantillon et par **face arrière** la face de sortie (figure 3). Il est important de discriminer ces deux faces, même pour un composant symétrique, car leur résistance et leur comportement vis-à-vis du flux laser peuvent être différents. Ceci est notamment le cas lorsqu'un plasma absorbant est formé lors de l'irradiation laser : le plasma se propagera dans l'air dans le cas de la face avant, et dans le matériau dans le cas de la face arrière.

### 1.3 Seuil d'endommagement laser

Le **seuil d'endommagement** (LIDT : *Laser Induced Damage Threshold*) désigne la valeur limite à partir de laquelle le composant optique est dégradé.

Le critère d'endommagement est subjectif, car il dépend de l'utilisateur et de ses moyens d'observation. On peut distinguer des critères fonctionnels qui laissent une certaine tolérance à la dégradation (par exemple un miroir avec une réflexion spécifiée à 99,9 % pourrait être déclaré endommagé lorsque cette réflexion se verrait baisser à 98 %) et des critères physiques : toute modification irréversible détectable par l'expérimentateur. Ce dernier critère dépend alors des conditions d'observations et n'est pas universel. La norme ISO 11254 définit comme technique de détection des dommages la microscopie Nomarski, avec un grossissement supérieur à  $\times 100$ .

L'unité pertinente à utiliser pour la valeur du seuil dépend des mécanismes d'endommagement mis en jeu. Ce peut être des  $\text{J/cm}^2$  (densité d'énergie ou exposition ou fluence), des  $\text{W/cm}^2$  (densité de puissance ou éclairement), ou des  $\text{W/cm}$  (puissance linéique). Les caractéristiques temporelles du laser permettent de dégager trois domaines où les effets et les unités utilisées sont très différents :

- **laser continu ou très longues durées d'impulsion (ms)** : l'endommagement est causé par des effets thermiques dans la majorité des cas. C'est alors la puissance moyenne du laser qui est la grandeur pertinente. Cependant, l'unité utilisée va dépendre des caractéristiques dimensionnelles et temporelles de l'irradiation. En effet, il faut considérer, comme nous le verrons dans la partie 2, la dimension du faisceau laser par rapport à la longueur de diffusion thermique (distance sur laquelle la chaleur a le temps de se propager pendant la durée d'irradiation). Si le faisceau est large par rapport à cette distance, on considérera que la chaleur est confinée et on utilisera des  $\text{J/cm}^2$  puisque c'est l'énergie totale fournie qui doit être prise en compte. Dans le cas contraire (correspondant généralement à des irradiations continues), on utilisera des  $\text{W/cm}$  ;
- **laser à impulsions longues (ns – μs)** : pour ce type de laser, les effets d'endommagement sont principalement liés à des défauts à la surface ou dans le volume des composants. C'est alors la quantité d'énergie déposée sur ces défauts qui gouverne le mécanisme. Les seuils d'endommagement sont alors couramment donnés en  $\text{J/cm}^2$  ;
- **laser à impulsions courtes (fs – ps)** : les caractéristiques de ce type de laser sont les puissances crêtes très élevées, qui peuvent conduire à l'ionisation du matériau. Dans ce cas, l'unité pertinente est le  $\text{MW/cm}^2$ . Cependant les taux de répétition de ces lasers peuvent être très élevés (10 – 100 MHz), et dans le cas de matériaux absorbants, la chaleur n'a pas le temps de diffuser entre chaque tir. Ce régime quasi continu peut conduire à des endommagements de type thermique, correspondant au 1<sup>er</sup> point.

Dans tous les cas, les conditions sous lesquelles est donné ce seuil (longueur d'onde, durée d'impulsion, taille de faisceau laser...) doivent être spécifiées.

#### Exemple

À titre d'illustration, on notera l'importance des paramètres d'irradiation sur cet exemple d'un verre de silice (*UV fused silica*) :

- $60 \text{ J/cm}^2$ , 6 ns, 1 064 nm, 1-on-1, diamètre faisceau  $12 \mu\text{m}$  [11] ;
- $20 \text{ J/cm}^2$ , 6 ns, 1 064 nm, 10000-on-1, diamètre faisceau  $12 \mu\text{m}$  [15] ;
- $20 \text{ J/cm}^2$ , 6 ns, 355 nm, 1-on-1, diamètre faisceau  $3 \mu\text{m}$  [15] ;
- $10 \text{ J/cm}^2$ , 2,5 ns, 355 nm, Raster Scan, diamètre faisceau  $600 \mu\text{m}$  [2] ;
- $2 \text{ J/cm}^2$ , 300 fs, 1 053 nm, 1-on-1, diamètre faisceau  $300 \mu\text{m}$  [3].

On se reportera à la partie 3 pour la définition des procédures de test.

## 2. Origine de l'endommagement laser

L'endommagement laser résulte du couplage et du transfert de l'énergie laser dans le matériau. On peut distinguer, de façon schématique, deux grands types de mécanismes :

- les effets électromagnétiques, lorsque le champ électrique est suffisamment intense pour ioniser le matériau et induire des effets d'avalanche électronique ;
- les effets thermiques, du fait de l'absorption de l'énergie laser par le matériau ou par des défauts dans le matériau.

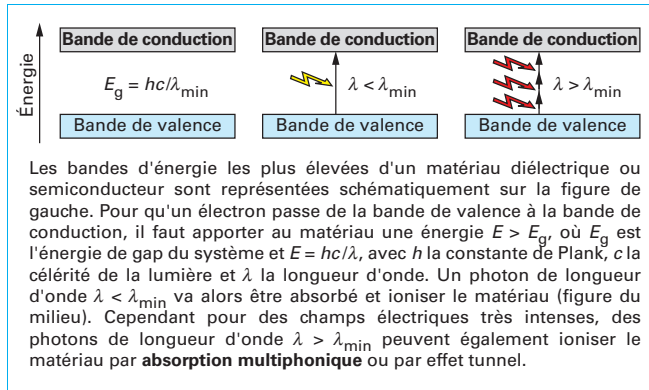


Figure 4 – Ionisation d'un matériau diélectrique ou semiconducteur

## 2.1 Effets électromagnétiques

### 2.1.1 Claquage diélectrique

Dans un matériau diélectrique ou semiconducteur irradié par un laser, si le champ électrique est suffisamment intense, il peut ioniser des atomes par différents mécanismes (figure 4). Des porteurs libres sont alors générés. Sous l'effet du champ électrique ils sont accélérés et peuvent ioniser d'autres atomes par collision qui vont générer d'autres porteurs libres... Cet effet d'**avalanche électronique** peut conduire à un claquage diélectrique du matériau.

Ce type de mécanisme se rencontre principalement dans le cas de très courtes durées d'impulsions (**régime femtoseconde à picoseconde**), où des processus d'ionisation multiphotoniques peuvent générer des porteurs libres. Le seuil d'endommagement observé correspond alors à une valeur limite dépendant des propriétés intrinsèques du matériau (largeur de bande). L'endommagement se produit sur le composant dans les zones où l'intensité est suffisante pour provoquer l'ionisation du matériau. Cette caractéristique détermine le seuil d'endommagement en régime femtoseconde est d'ailleurs mise à profit dans de nombreuses applications où l'on enlève ou modifie la matière avec une précision submicronique : micro-usinage, chirurgie ophtalmique, stockage de données...

Dans le cas de durées d'impulsions plus longues, les processus multiphotoniques sont moins importants et l'endommagement ne peut se produire que si des porteurs libres sont déjà présents dans le matériau. L'endommagement s'initie alors sur des défauts du matériau, et le seuil n'est plus déterministe.

### 2.1.2 Exaltation du champ électrique

La configuration du composant (empilement multicouche par exemple), ou la présence d'irrégularités (défauts, rayures cf. figure 5), peut être responsable de surintensifications locales du champ électrique (par effet de diffraction ou d'interférence). Ces surintensifications du champ permettent de favoriser les mécanismes d'avalanche électronique et d'initier le claquage diélectrique du matériau dans la zone concernée, pour des valeurs plus faibles que dans le cas d'un matériau exempt de défauts.

### 2.1.3 Autofocalisation

Des surintensifications du champ électrique peuvent également être engendrées par **autofocalisation**. Ce phénomène est lié à une réduction du diamètre du faisceau au cours de sa propagation, en raison d'une élévation de l'indice de réfraction du matériau irradié. Cet effet peut être dû soit à l'élévation de température (effet de lentille thermique) que nous traiterons plus loin, soit à un effet du champ électrique intense (effet Kerr non linéaire) que nous allons traiter ici.

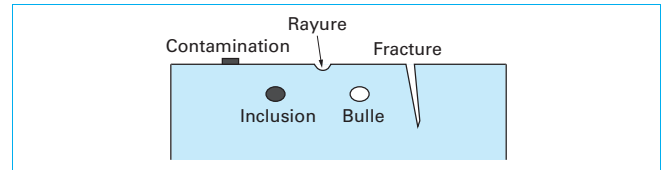


Figure 5 – Représentation schématique de différents types de défauts pouvant induire une surintensification du champ électrique près de la surface d'une optique (d'après [4])

Dans un milieu diélectrique, l'indice de réfraction présente une faible dépendance à l'intensité de la lumière transmise :

$$n = n_0 + \gamma I \quad (1)$$

où  $n_0$  est l'indice de réfraction du premier ordre, indépendant de l'intensité, et  $\gamma$  est l'indice non linéaire, exprimé en  $W/m^2$  qui dépend de différents phénomènes physiques : distorsion électronique, vibration moléculaire, électrostriction... [6].

Si un matériau diélectrique est soumis à une répartition d'intensité non uniforme suffisamment élevée, l'indice de réfraction  $n$  du matériau n'est plus uniformément égal à l'indice de réfraction linéaire  $n_0$  mais dépend de l'intensité locale. Dans le cas général, la répartition d'indice non uniforme engendrée par un faisceau laser intense dans un matériau perturbe la propagation du faisceau, provoquant une autofocalisation du faisceau (ou parfois une défocalisation).

Pour une répartition d'intensité gaussienne, par exemple, et pour un matériau d'indice non linéaire positif, un gradient d'indice va être créé tendant à focaliser le faisceau. L'augmentation locale de la densité de puissance qui s'ensuit va accentuer le phénomène au cours de la propagation du faisceau jusqu'à la rupture du matériau. Les ordres de grandeurs d'apparition d'autofocalisation peuvent être calculés. Ceci va bien entendu dépendre de la répartition spatiale d'intensité du faisceau.

Dans le cas d'un faisceau gaussien, la **puissance critique** nécessaire à l'apparition d'autofocalisation (puissance nécessaire pour compenser les effets de diffraction) s'exprime ainsi :

$$P_{cr} = 0,273 \times \pi (1,22\lambda)^2 / 8n_0\gamma \quad (2)$$

Au-delà de cette puissance, un faisceau gaussien collimaté peut s'autofocaliser de façon critique si la longueur de matériau traversée est suffisante.

**Exemple** : dans la silice, où l'indice de réfraction non linéaire est de l'ordre de  $5 \times 10^{-20} m^2/W$  [13] [14], la puissance critique est de l'ordre de 200 à 500 MW pour des longueurs d'onde du visible et du proche infrarouge.

Les endommagements créés dans le volume des matériaux par ce type de mécanismes ont la forme de filaments (successions d'endommagements sur l'axe d'autofocalisation). On parle également de **filamentation**.

## 2.2 Effets thermiques

Lorsqu'un composant optique est soumis à une irradiation laser, une partie de l'énergie incidente est absorbée par le matériau et restituée sous forme de chaleur. Cette interaction dépend à la fois des paramètres du faisceau laser (durée d'impulsion, taux de répétition, taille du faisceau...) et du matériau.

L'absorption de l'énergie du laser va provoquer une augmentation de la température dans le milieu absorbant et, par transfert de chaleur, dans les autres milieux. Cette augmentation de la température s'arrête lorsque les pertes (conduction, rayonnement) compensent l'apport énergétique. L'augmentation de la température va donner lieu à de nombreux effets : expansion thermique,



contraintes, biréfringence, effets non linéaires, emballement thermique (augmentation de l'absorption avec la température), fissuration, fusion, vaporisation... La destruction du composant intervient alors du fait d'un ou plusieurs de ces effets.

### 2.2.1 Absorption volumique

Cette absorption peut être intrinsèque (absorption vibrationnelle ou électronique) ou extrinsèque du fait, par exemple, d'impuretés, de défauts répartis dans le volume. La caractéristique à prendre en compte pour étudier l'absorption volumique est le **coefficient d'absorption  $\alpha$** , donné généralement en  $\text{cm}^{-1}$ . La loi de Beer Lambert lie l'intensité en fonction de la distance traversée dans le milieu au coefficient d'absorption :

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha z} \quad (3)$$

avec  $I_0$  intensité incidente,  
 $z$  distance parcourue en cm.

En fonction de la puissance du laser et de ce coefficient d'absorption, la dégradation du composant peut intervenir par fusion du matériau ou par rupture mécanique du fait des contraintes thermiques engendrées. Dans certains matériaux (semiconducteurs), l'absorption augmente de façon non linéaire avec la température, ce qui peut entraîner un effet d'emballement thermique conduisant irrémédiablement à la destruction ( $T = 600^\circ\text{C}$  pour ZnSe, ou  $350^\circ\text{C}$  pour Ge par exemple).

Ce type de mécanisme est généralement rencontré dans le cas de laser continu ou à fort taux de répétition. Les matériaux pour l'infrarouge de type semiconducteurs (Ge, ZnSe, ZnS, GaAs, CdTe...) sont particulièrement concernés car ils présentent une absorption significative aux longueurs d'onde d'utilisation, associée à des potentialités d'emballement thermique.

Pour ce type de mécanisme, une attention particulière doit être apportée au couple durée d'irradiation/dimension du faisceau laser.

Lorsque la durée d'irradiation est courte par rapport au temps de diffusion de la chaleur dans la zone irradiée (diffusivité  $< r^2/\tau$  où  $r$  est le diamètre du faisceau et  $\tau$  la durée d'irradiation), les pertes (conduction, convection) sont négligeables. Le seuil d'endommagement du matériau dépend alors de la quantité d'énergie fournie par unité de surface et s'exprime donc en  $\text{J}/\text{cm}^2$ .

Une approximation de la température atteinte par le matériau peut s'écrire de la façon suivante [5] :

$$\Delta T = \alpha E / \rho C \pi r^2 \quad (4)$$

avec  $E$  énergie (J),  
 $\rho$  densité ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ),  
 $\alpha$  coefficient d'absorption ( $\text{cm}^{-1}$ ),  
 $C$  capacité calorifique ( $\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})$ ),  
 $r$  diamètre du faisceau (cm).

Par contre pour des irradiations plus longues, c'est-à-dire pendant lesquelles la chaleur a le temps de diffuser (diffusivité  $\gg r^2/\tau$ , où  $r$  est le diamètre du faisceau et  $\tau$  la durée d'irradiation), le seuil d'endommagement dépend du diamètre du faisceau d'irradiation. En première approximation, la température atteinte est proportionnelle à la densité de puissance ( $\text{W}/\text{cm}$ ) et s'exprime de la façon suivante [5] :

$$\Delta T = P \alpha / 2 \rho C \pi D \quad (5)$$

où  $P$  est la puissance (W),  $\alpha$  le coefficient d'absorption ( $\text{cm}^{-1}$ ),  $\rho$  la densité ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ),  $C$  la capacité calorifique ( $\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})$ ),  $r$  le rayon du faisceau (cm) et  $D$  la diffusivité ( $\text{cm}^2/\text{s}$ ).

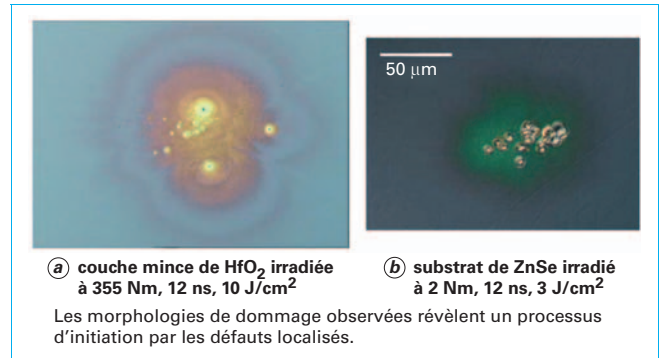


Figure 6 – Observation au microscope de dommages laser sur des surfaces

Dans ce cas, c'est la **puissance linéique ( $\text{W}/\text{cm}$ )** qui détermine le seuil d'endommagement.

#### Exemple

Considérons une optique en ZnSe irradiée par un laser  $\text{CO}_2$  ( $10,6 \mu\text{m}$ ) de diamètre 10 mm. Le coefficient d'absorption du ZnSe vaut  $0,5 \times 10^{-4}$ , la conductivité thermique  $18 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ , la densité  $5,3 \text{ g}/\text{cm}^3$ , la capacité calorifique  $0,34 \text{ J}/(\text{g}\cdot\text{K})$  et la diffusivité  $1 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ .

On a  $r^2/D = 2,5 \text{ s}$ , donc d'après ce qui précède on considérera « courtes » par rapport au temps d'irradiation les durées d'impulsions inférieures à la seconde et « longues » celles supérieures à quelques secondes.

Dans le cas d'une irradiation de 10 s par exemple avec ce laser, l'élévation de température (d'après l'équation (5)) sera d'environ  $9^\circ\text{C}$  pour une puissance de 10 W et de  $900^\circ\text{C}$  pour une puissance de 1 kW (endommagement certain dans ce cas).

Par contre pour une irradiation de 1 kW pendant 100 ms (équation (6)), l'élévation de température sera de  $30^\circ\text{C}$ .

### 2.2.2 Absorption de surface

Les surfaces sont souvent le point faible des optiques en ce qui concerne l'endommagement. En effet les surfaces présentent de nombreuses irrégularités, défauts, et souvent une absorption élevée par rapport au volume. L'origine de cette absorption peut être :

- la présence d'une fine couche absorbante : eau adsorbée, oxydation de la surface (dans ce cas l'environnement a une importance particulière) ;
- la présence de contaminants de type poussière, débris (dans ce cas l'environnement ou les procédés de nettoyage peuvent être en cause) ;
- la présence de défauts absorbants dus à des résidus de polissage inclus sous la surface ;
- les couches minces optiques dont le coefficient d'absorption est généralement beaucoup plus élevé que celui du matériau massif.

### 2.2.3 Absorption localisée

Des inclusions absorbantes peuvent également être présentes dans le matériau, à la surface ou dans le volume. Ces défauts vont alors provoquer une augmentation locale de température et peuvent être initiateurs d'endommagement. C'est particulièrement le cas dans les matériaux diélectriques irradiés en régime nanoseconde (figure 6) [11] [12].

### 2.2.4 Effets thermomécaniques

Les échauffements induits dans les composants optiques soumis à des forts flux lasers peuvent entraîner une dégradation par sollicitation mécanique.

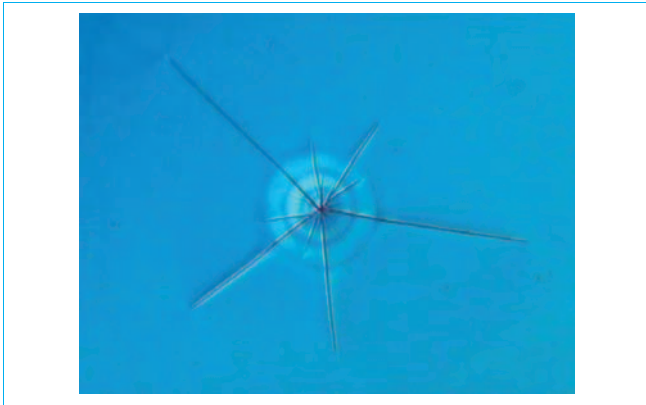


Figure 7 – Fracturation d'un verre irradié par laser

En effet, l'échauffement va d'une part créer des gradients de température liés par exemple à la forme du faisceau sur l'optique, à la distribution non uniforme de l'absorption (géométrie, inclusions absorbantes...), ce qui va engendrer des contraintes pouvant aboutir à la fracturation du matériau (figure 7).

D'autre part dans les composants constitués de matériaux de natures différentes (empilements multicouches, miroirs, fibres optiques...), les coefficients de dilatation différents vont entraîner des contraintes différentielles aux interfaces. Si l'énergie mécanique emmagasinée est supérieure à l'énergie d'adhérence entre les matériaux, l'optique va s'endommager.

### 2.2.5 Effets thermochimiques

Lors de l'irradiation laser, le composant optique peut chauffer sans toutefois atteindre des températures suffisamment importantes pour provoquer un endommagement catastrophique. Cependant ceci peut activer des processus chimiques lents entraînant une dégradation de la qualité de surface : par exemple la formation d'oxyde de cuivre sur des miroirs de cuivre. Ces processus peuvent conduire à une augmentation de l'absorption du composant, et à un emballement de la température (les réactions s'accroissant avec la température) pouvant aboutir à une dégradation catastrophique du composant. La « thermochimie » est donc envisageable pour les optiques soumises à des irradiations continues ou des irradiations répétées. Ces mécanismes dépendent évidemment fortement de l'environnement d'utilisation.

### 2.2.6 Autofocalisation thermique

Un mécanisme à prendre en compte dans le cas de matériaux transparents soumis à un échauffement par laser est l'**autofocalisation thermique** (*thermal lensing*). En effet, dans le cas d'une optique utilisée en transmission et irradiée avec un faisceau dont l'intensité est plus importante au centre que sur les bords, le gradient radial de température provoque un effet de lentille thermique du fait de la dépendance de l'indice de réfraction à la température. Cet effet est également présent dans le cas de fenêtres éclairées par un faisceau uniforme et dotées d'un système d'évacuation de la chaleur sur les bords (refroidissement par eau par exemple).

Cet effet dépend à la fois de la puissance incidente et de la durée de l'irradiation. Dans le cas d'un matériau épais (par rapport à la longueur de Rayleigh), la puissance critique d'apparition de cet effet peut s'exprimer de la façon suivante [5] :

$$P_{CT} = (1,22\lambda)^2 n_T / 32n_T \quad (6)$$

avec  $\tau$  durée d'irradiation,  
 $n_T$  coefficient de variation thermique de l'indice optique.

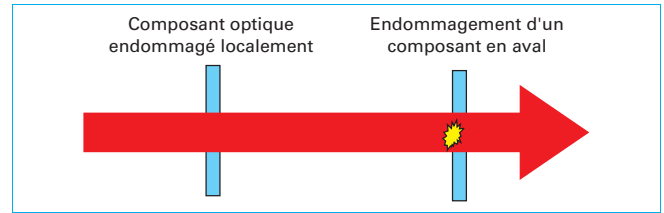


Figure 8 – Une modification locale d'un composant (endommagement) peut entraîner par effet de diffraction une surintensification locale sur un autre composant du système laser, et induire un endommagement (par exemple un écrantage circulaire du faisceau peut créer une tache d'Airy)

#### Exemple

Dans le cas d'un laser à 1,06  $\mu\text{m}$  et avec de la silice ( $n = 1,5$  ;  $n_T = 10^{-9}$ ), on trouve :

- pour  $\tau = 1 \mu\text{s}$  :  $P_C = 2 \text{ MW}$  ;
- pour  $\tau = 1 \text{ ms}$  :  $P_C = 2 \text{ kW}$ .

Des variations d'indice peuvent également être engendrées par des effets thermo-mécaniques (contraintes). Cependant dans la plupart des matériaux la variation d'indice avec la température est plus importante que la variation d'indice induite par les contraintes.

## 2.3 Autres effets

### 2.3.1 Effet Brillouin

La propagation d'un faisceau laser intense dans un milieu peut produire des vibrations acoustiques dans le milieu par effet d'électrostriction. Les contraintes engendrées par ces ondes acoustiques peuvent entraîner l'endommagement mécanique du composant. Ceci concerne particulièrement les matériaux épais (fibres par exemple).

### 2.3.2 Effets cumulatifs

Les irradiations laser répétitives peuvent détériorer les composants à des niveaux d'irradiations inférieurs à ceux mesurés pour des tirs uniques. On parle alors d'**effet de fatigue** [7]. Les phénomènes physiques impliqués sont nombreux, ce peut être : l'augmentation de la température, l'accumulation de contraintes, la création de défauts...

### 2.3.3 Croissance des dommages

Si un endommagement survient sur une optique lors d'un tir laser, il est possible, et souvent courant, que le phénomène s'aggrave lors des tirs ultérieurs. En effet de nombreux facteurs vont contribuer à rendre le site endommagé plus sensible à l'irradiation laser : contraintes fragilisant le matériau, débris, fractures engendrant des surintensifications du champ, création de défauts, augmentation de l'absorption du matériau... Cet effet de croissance peut rendre rapidement le composant inutilisable.

L'altération de la fonction optique d'un composant peut également induire des endommagements sur d'autres pièces optiques de la chaîne laser, par propagation optique (figure 8), car des effets de diffraction peuvent entraîner des surintensités locales.

## 3. Métrologie de la tenue au flux laser

La mesure de la tenue au flux est un problème délicat. En effet, pour étudier les phénomènes physiques ou pour qualifier des composants, les laboratoires ou industriels ont souvent leur propre définition de l'endommagement laser (qui dépend par exemple de

la façon dont il est détecté ou de l'application visée) et des conditions de test particulières (taille de faisceau, durée d'impulsion...). De plus les seuils d'endommagement ne sont pas propres à un matériau, et dépendent fortement de ses conditions de fabrication, stockage, nettoyage... Ainsi, l'intercomparaison des résultats est souvent complexe, voire impossible, et est source de confusion et de nombreux désaccords dans la littérature.

Pour pouvoir caractériser un composant, une mesure statistique est généralement nécessaire, du fait de l'inhomogénéité des matériaux. Le principe général des mesures de la tenue au flux laser des composants optiques consiste à irradier le matériau à différents niveaux d'énergie ou de puissance, puis à détecter dans chaque zone de tir s'il y a présence ou non d'endommagement. On peut ensuite tracer la probabilité d'endommagement, ou la densité de dommages sur l'optique en fonction de la densité d'énergie ou de puissance. Pour effectuer ces tests, différentes procédures existent, dont les principales sont définies par des normes 11254-1 et 11254-2. Deux types principaux de tests de tenue au flux peuvent être distingués : la tenue à un tir laser et la tenue à une série de tirs laser, puisqu'une des spécificités du problème est l'évolution lors d'irradiations répétées.

Nous allons décrire ci-dessous les différents modes opératoires existants.

### 3.1 Dispositif de mesure de tenue au flux laser

Le principe d'un banc de mesure de tenue au flux laser est représenté sur la figure 9.

Le faisceau laser, dont le niveau d'énergie ou de puissance peut être contrôlé par un atténuateur (lame demi-onde et polariseur par exemple), est focalisé sur l'échantillon à tester. Différentes zones de l'échantillon sont alors exposées au laser, suivant des procédures que nous allons décrire. Pour la détection des dommages, les techniques adaptées les plus couramment utilisées sont la microscopie, la diffusion et la détection photoacoustique ou photothermique. Différents diagnostics sont nécessaires pour analyser le faisceau laser et déterminer avec précision les paramètres de chaque tir laser : mesure d'énergie ou de puissance (pyromètre, calorimètre), mesure du profil temporel (détecteur ayant une bande passante adaptée à la durée de l'impulsion), mesure du profil spatial dans le plan de l'échantillon ou dans un plan équivalent (avec une résolution du capteur adaptée à la taille du faisceau).

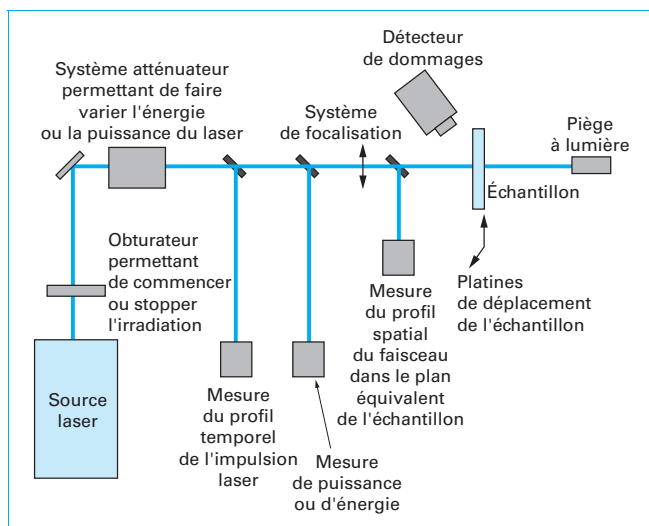


Figure 9 – Principe d'un banc de mesure de tenue au flux laser

## 3.2 Paramètres d'irradiation laser

Les seuils d'endommagement laser dépendent étroitement des conditions d'irradiation, il est donc important de bien les définir et d'utiliser des valeurs normalisées pour effectuer des comparaisons ou des mises à l'échelle. Le cas de la longueur d'onde, de la fréquence de répétition, ou de la durée d'irradiation dans le cas d'un laser continu ne pose pas de problème. En revanche des ambiguïtés peuvent apparaître pour la définition de la durée d'une impulsion laser ou de la surface d'irradiation, particulièrement lorsque l'on s'éloigne d'un faisceau idéal (gaussien ou *Top-Hat* par exemple). Pour éviter ces ambiguïtés il est recommandé d'utiliser les valeurs effectives définies par la norme ISO et décrites ci-dessous.

### 3.2.1 Durée effective

La durée effective d'une impulsion laser est définie comme le rapport de l'énergie totale de l'impulsion sur la puissance crête de l'impulsion :

$$t_{\text{eff}} = \frac{E}{P_c} = \frac{\int_0^{\infty} P(t) dt}{P_c} \quad (7)$$

De façon pratique, cette valeur se calcule à partir d'une mesure de l'impulsion comme présenté sur la figure 10 : la durée effective est égale à l'aire sous la courbe divisée par la valeur maximale (ce qui correspond à la largeur à mi-hauteur pour une impulsion triangulaire, à la largeur à  $1/e$  pour une impulsion gaussienne).

### 3.2.2 Surface effective

De la même façon, on définit la surface effective comme le rapport de l'énergie des impulsions à la densité d'énergie maximale (ou le rapport de la puissance à la densité de puissance maximale dans le cas d'un laser continu) :

$$S_{\text{eff}} = \frac{E}{F_{\text{max}}} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} F(x, y) dx dy}{F_{\text{max}}} \quad (8)$$

De façon pratique cette valeur s'obtient à partir de l'analyse d'une image du faisceau prise au niveau de l'échantillon. Dans le cas où le détecteur a une réponse linéaire, la valeur de chaque

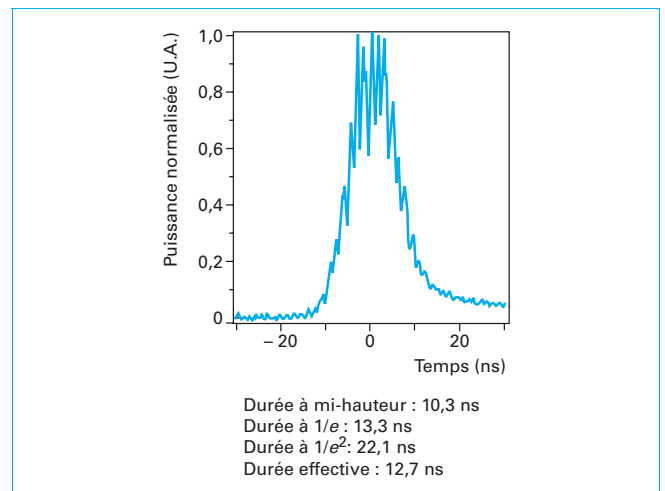


Figure 10 – Profil temporel d'une impulsion issue d'un laser Nd:YAG triplé (355 nm) et mesure de la durée de cette impulsion. On pourra noter l'importance de la résolution temporelle du détecteur pour mettre en évidence d'éventuels pics de puissance (il s'agit ici d'un laser multimode transverse)

pixel est proportionnelle à l'énergie reçue. L'énergie totale est alors proportionnelle à la somme de la valeur de tous les pixels. La densité d'énergie maximale est quand elle proportionnelle à la valeur de pixel maximale divisée par la surface d'un pixel du capteur. Le rapport de ces deux valeurs (énergie et densité d'énergie maximale) est égal à la surface effective. Il faut toutefois être attentif, lors de ce calcul, à la linéarité au niveau de bruit du détecteur pour obtenir une mesure fiable. Un exemple d'une telle analyse est présenté figure 11.

On peut alors également définir le diamètre (ou le rayon) effectif du faisceau comme :

$$d_{\text{eff}} = 2\sqrt{\frac{S_{\text{eff}}}{\pi}} \tag{9}$$

Dans le cas d'un faisceau *Top-Hat*, le diamètre effectif est le diamètre total du faisceau. Dans le cas d'un faisceau gaussien idéal, le diamètre effectif est celui pris à  $1/e$  (l'utilisation du rayon à  $1/e^2$  pour calculer la surface entraîne une **sous-estimation de la fluence** vue par le matériau d'un facteur 2 puisque  $d_{1/e^2} = \sqrt{2}d_{1/e}$ ).

### 3.2.3 Densité d'énergie ou de puissance

La densité d'énergie maximale au niveau de l'échantillon est donnée par :

$$F_{\text{max}} = \frac{E}{S_{\text{eff}}} \tag{10}$$

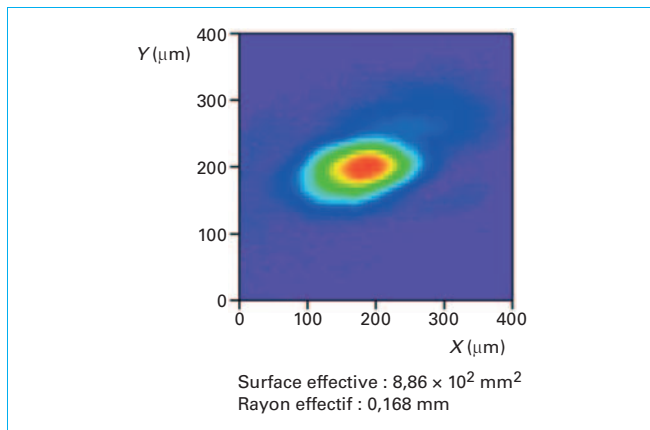


Figure 11 – Profil 2D d'un faisceau issu d'un laser Nd:YAG à 355 nm, focalisé par une lentille de focale 1 m

La densité de puissance crête maximale est donnée par :

$$E_{\text{max}} = \frac{F_{\text{max}}}{t_{\text{eff}}} \tag{11}$$

La densité de puissance maximale est donnée par :

$$E_{\text{max}} = \frac{P}{S_{\text{eff}}} \tag{12}$$

## 3.3 Mesures de probabilités d'endommagement

### 3.3.1 Méthode de test 1-on-1

La procédure de test '1-on-1' est décrite par la norme 11254-1. L'échantillon est irradié en  $N$  sites distincts pour chacune des  $i$  différentes densités d'énergie (figure 12). Pour chaque densité d'énergie, la **probabilité d'endommagement** évaluée est  $n/N$ , où  $n$  est le nombre de sites où l'endommagement a eu lieu. Dans le cas d'une irradiation en régime continu, la durée d'irradiation doit être spécifiée. Le nombre de sites testés et de densités d'énergie appliquées peut varier en fonction de la précision de mesure souhaitée, du diamètre du spot laser choisi et de la surface disponible pour le test.

Le **seuil d'endommagement** est défini comme la plus grande densité d'énergie pour laquelle la probabilité d'endommagement est nulle. Des exemples de résultats de ce type de test sont donnés figure 13. Une distribution des probabilités est significative d'inhomogénéités (présence de défauts initiateurs). Un caractère déterministe est observé dans le cas soit de matériaux absorbants intrinsèquement ou dans le cas des régimes ultracourts.

### 3.3.2 Méthode de test S-on-1

Dans le cas de la procédure S-on-1 (norme ISO 11254-2), chaque site testé est irradié plusieurs fois jusqu'à apparition d'un endommagement ou dépassement d'un nombre de tirs limite. Cette procédure permet d'évaluer la **fatigue du composant sous tirs multiples**, conditions de fonctionnement généralement rencontrées dans les systèmes lasers.

À partir des données recueillies grâce à ce test, il est possible d'extraire pour chaque densité d'énergie ou de puissance la probabilité d'endommagement après  $X$  tirs. On peut alors représenter d'une façon similaire au cas précédent les courbes de probabilités d'endommagement à 1 tir, 10 tirs, 100 tirs... L'analyse de ces courbes permet d'extraire les seuils d'endommagement à 1 tir, 10 tirs, 100 tirs... et de connaître ainsi la résistance de l'optique à des tirs cumulés [11] (cf. figure 14).

Des méthodes d'extrapolation de ces données (présentées dans la partie 4) permettent d'estimer la résistance des optiques à un très grand nombre de tirs ( $> 10^9$ ) pour lesquels des tests réalistes sont difficilement envisageables.

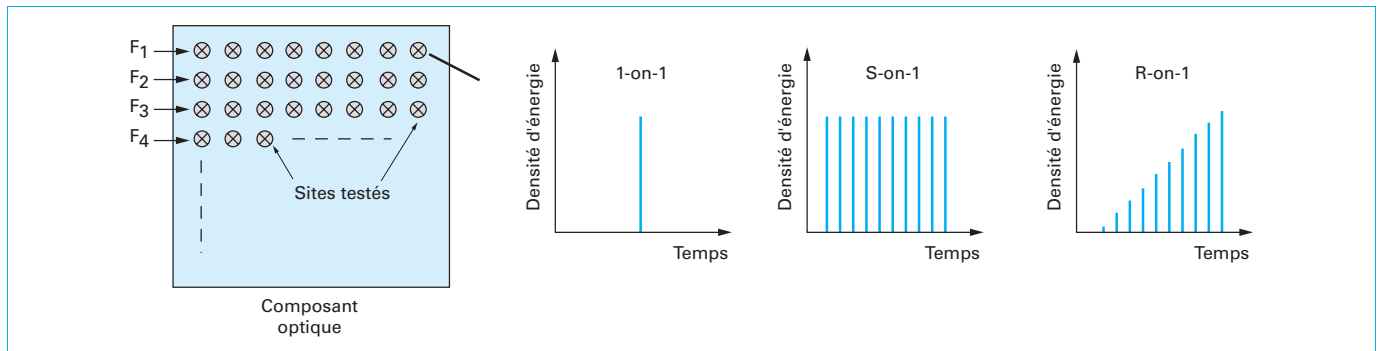


Figure 12 – Description de l'échantillonnage effectué pour la mesure des probabilités d'endommagement et de la densité d'énergie vue par un site dans les différents cas

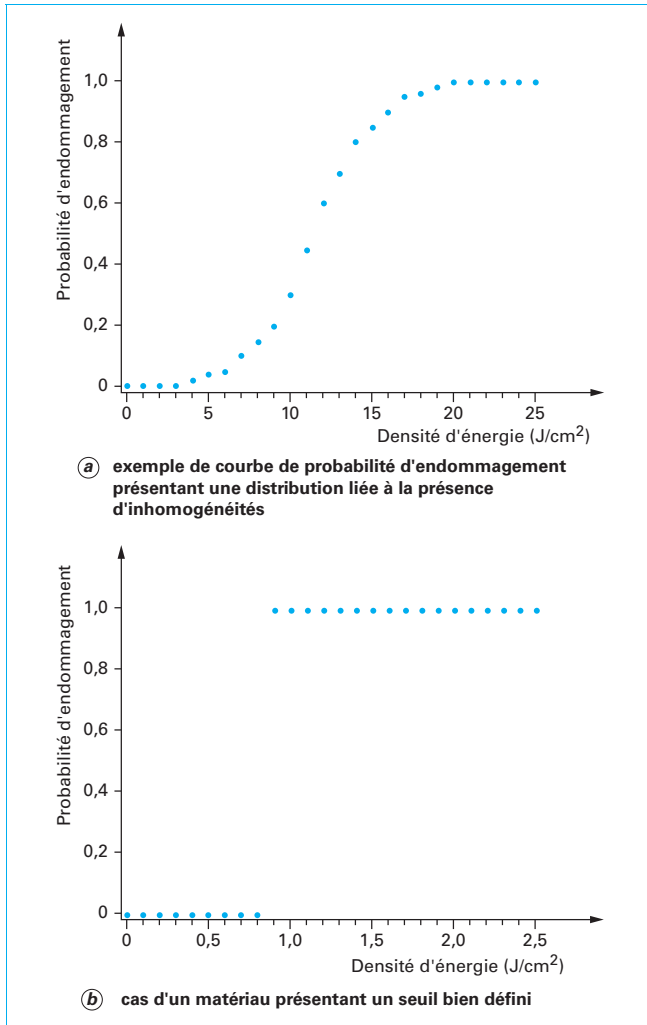


Figure 13 – Exemples de courbes de probabilité d'endommagement obtenues en utilisant la méthode de test 1-on-1

### 3.3.3 Méthode de test R-on-1

Dans le cas de la procédure R-on-1, chaque site de l'échantillon est irradié avec une rampe d'énergie jusqu'à atteindre l'endommagement (figure 12). Ce test à l'avantage de limiter le nombre de zones irradiées puisque chaque site testé fournit des informations sur l'ensemble de la gamme d'énergie testée. Ceci présente donc un intérêt si la surface de test disponible est limitée. Néanmoins beaucoup de paramètres différents sont mis en jeu lors des tests (énergie de départ, pas entre deux énergies, pente de la rampe d'énergie...), ce qui rend l'interprétation des résultats difficile et l'intercomparaison entre installations très difficile.

### 3.4 Mesures de densités de dommages

Une autre approche consiste à irradier la totalité du composant à une densité d'énergie donnée et à compter le nombre de dommages créés. On obtient ainsi la densité de dommages (i.e. de défauts) sur l'optique à la fluence de spécification. Dans le cas d'optiques de grandes dimensions devant la dimension du laser de test, il n'est pas possible d'irradier simultanément la totalité de la surface de façon uniforme. Pour remédier à cela, une procédure dite de « raster scan » a été développée [2]. Elle consiste à irradier de façon quasi

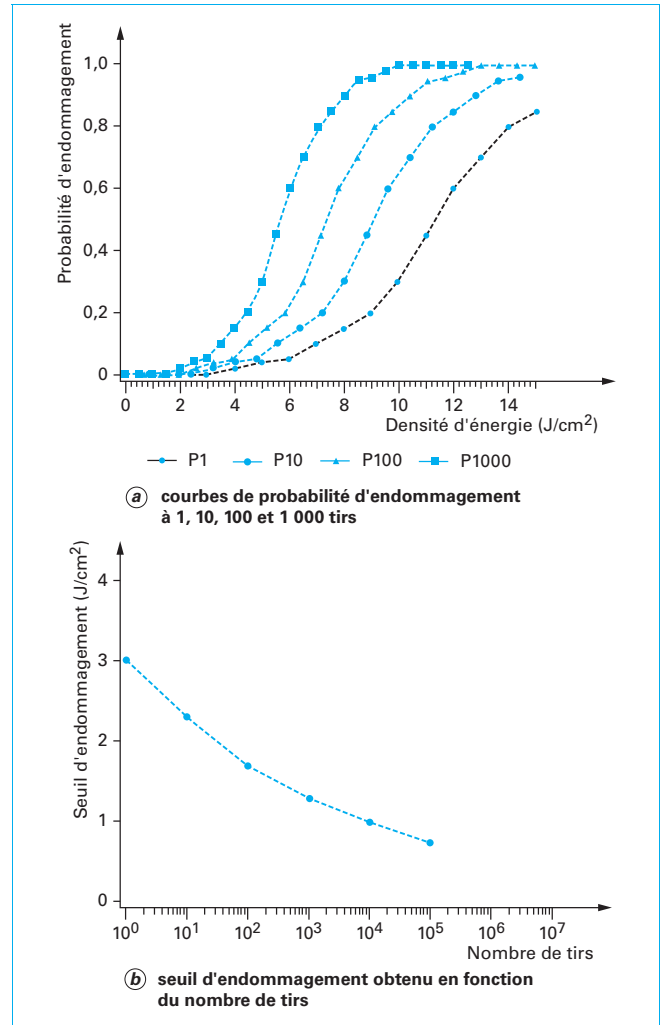


Figure 14 – Exemples de courbes de probabilité d'endommagement obtenues en utilisant la méthode de test S-on-1

uniforme par recouvrement de faisceau une grande surface optique à l'aide d'un faisceau laser de petite taille par rapport à celle-ci (figures 15 et 16).

## 4. Influence des paramètres d'irradiation sur la tenue au flux laser, lois d'échelle

Les conditions d'utilisation, notamment les paramètres d'irradiation du laser, peuvent être différentes de celles des conditions de la spécification en tenue au flux de l'optique. C'est le cas généralement d'un composant acheté chez un fournisseur, pour lequel une valeur de tenue au flux est donnée. Il est alors indispensable dans ce cas de connaître l'influence des paramètres d'irradiation sur la tenue au flux laser et les différentes lois d'échelles existantes pour rapporter la valeur donnée aux conditions réelles d'utilisation.

Les méthodes que nous présentons permettent de trouver des conditions de fonctionnement en prenant une marge de sécurité, mais l'état actuel de la recherche ne permet pas de déterminer

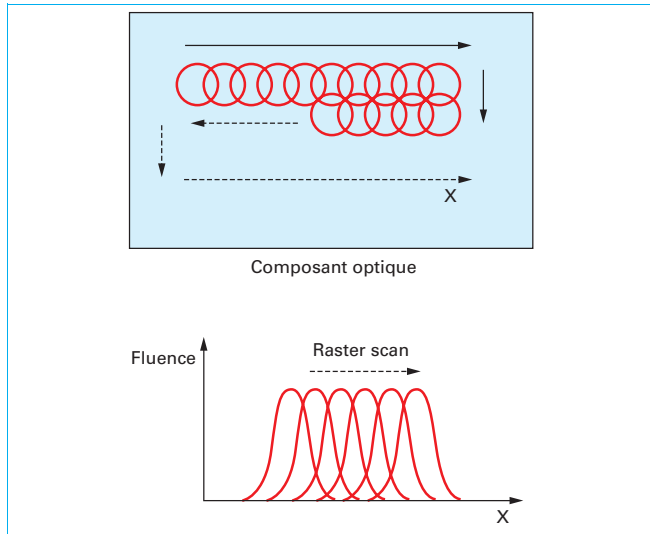


Figure 15 – Schéma de principe d'une mesure de tenue au flux laser en mode raster scan à l'aide d'un faisceau d'irradiation à profil spatial gaussien

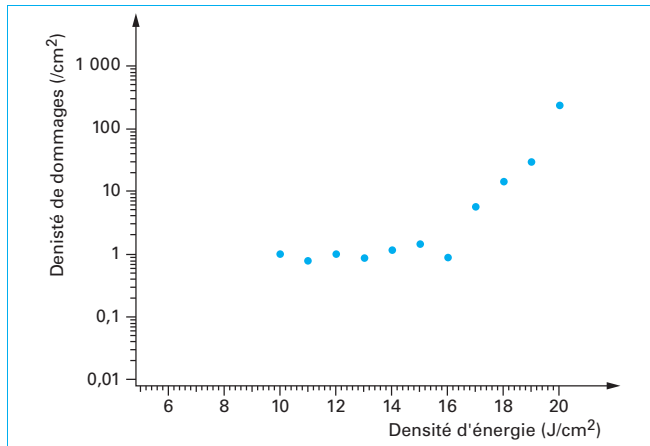


Figure 16 – Exemple de résultat obtenu par la méthode de comptage de dommages. Le seuil d'endommagement correspond ici à la densité d'énergie en dessous de laquelle aucun dommage n'est repéré

avec exactitude les seuils d'endommagement et la durée de vie des composants optiques lorsque les paramètres de fonctionnement s'éloignent des conditions d'essais.

### 4.1 Longueur d'onde

Les mécanismes d'endommagement dépendent fortement de la longueur d'onde. Rapporter des valeurs mesurées à une longueur d'onde à une autre est difficile, il est indispensable que les mécanismes mis en jeu soient similaires.

Dans le cas d'un matériau absorbant à la longueur d'irradiation, le seuil d'endommagement est lié à la température de destruction du composant et est directement proportionnel au facteur d'absorption. La valeur de seuil théorique peut alors être extrapolée à partir des données d'absorption en fonction de la longueur d'onde.

### 4.2 Durée d'irradiation

En ce qui concerne les matériaux absorbants, nous avons présenté dans la partie 2.2.1 la relation entre élévation de température

et durée d'irradiation. Les équations (5) et (6) peuvent donc permettre de prendre en compte la durée d'irradiation pour obtenir des ordres de grandeurs de seuils d'endommagement.

Dans le cas de mécanismes d'endommagement initiés par des défauts absorbants, les seuils d'endommagement dépendent également de la température atteinte par ces défauts, mais celle-ci est, en première approximation, proportionnelle à  $Ex\tau^p$ , avec  $p$  proche de 0,5. Ainsi, le seuil d'endommagement (en  $J/cm^2$ ) tend à suivre une loi proche de  $\tau^{-1/2}$  dans beaucoup de cas : le seuil d'endommagement obtenu avec une durée d'impulsion de 20 ns est 1,44 fois plus grand que celui obtenu avec une durée d'impulsion de 10 ns.

Cette dépendance a été démontrée pour des impulsions supérieures à 10 ps jusqu'en régime nanoseconde et vérifiée expérimentalement pour des matériaux tels que  $SiO_2$  et  $CaF_2$  [3].

#### Exemple

Supposons un composant dont le seuil d'endommagement laser spécifié est  $2 J/cm^2$  pour une durée de 10 ns. Ce composant pourra être utilisé avec un laser d'une durée d'impulsion de  $1 \mu s$  jusqu'à  $20 J/cm^2$  ( $LIDT_{1\mu s} = LIDT_{10ns} (1.10^{-6}/10.10^{-9})^{1/2}$ ).

Dans le cas de très courtes durées d'irradiation (régime femtoseconde) où le seuil d'endommagement est lié à la puissance crête de l'impulsion, le seuil exprimé en  $MW/cm^2$  est peu dépendant de la durée d'impulsion.

### 4.3 Dimension du faisceau laser

Comme nous l'avons vu, les valeurs de tenue au flux peuvent être données en  $W/cm^2$ ,  $J/cm^2$  ou  $W/cm$ . Cependant les seuils d'endommagement sont généralement obtenus en utilisant une taille de faisceau fixe, et beaucoup de précautions doivent alors être prises pour rapporter ces valeurs à son application.

Le cas où l'endommagement est lié à des défauts initiateurs (régime nanoseconde par exemple) est le plus délicat. Les résultats doivent être obtenus en testant une surface suffisamment représentative (grand nombre de tirs ou faisceau de grande dimension), sinon des défauts limitant en faible densité peuvent ne pas être détectés. L'utilisation de la méthode de raster scan est dans ce cas intéressante puisque toute l'optique est testée.

Dans le cas des régimes ultracourts, le seuil est intrinsèque au matériau, il est donc indépendant de la taille du faisceau.

### 4.4 Nombre de tirs, taux de répétition

Sous irradiation laser en tirs répétés, un effet de fatigue du composant peut avoir lieu. Cet effet dépend du matériau irradié, de la longueur d'onde, de la durée d'impulsion et de la fréquence des tirs.

Il est difficile de déterminer quantitativement la résistance à un très grand nombre de tirs ( $10^9$  à  $10^{11}$  impulsions) comme on le rencontre dans beaucoup d'applications industrielles ou scientifiques. Il est possible cependant d'effectuer une extrapolation à partir de données obtenues en mode S-on-1. Des lois logarithmiques par exemple [11] peuvent être employées :

$$\text{Seuil}(N) = X \ln(N) + Y \tag{13}$$

avec  $N$  nombre de tirs,  
 $X$  et  $Y$  constantes obtenues par l'ajustement des points expérimentaux S-on-1.

### 4.5 Polarisation

Dans le cas d'empilements multicouches diélectriques éclairés sous incidence, la répartition du champ électrique diffère en fonction de la polarisation (TE ou TM). Dans ce cas, le seuil d'endommagement peut dépendre fortement de la polarisation puisque les valeurs de champ électrique vu par les différents matériaux et interfaces constituant le composant diffèrent. La même remarque peut être faite pour un composant diffractif (réseau par exemple).

Outre cet aspect répartition du champ électrique, certains matériaux peuvent avoir une réponse différente suivant la polarisation. Les matériaux anisotropes peuvent présenter des différences de tenue au flux importantes suivant l'état de polarisation incident [19].

## 4.6 Considérations environnementales

Une pollution de la surface des optiques peut intervenir lors de l'utilisation d'un système laser (particules métalliques et fortement absorbantes provenant de la mécanique, débris d'un matériau cible, pollution organique...). Ces contaminants de natures très différentes peuvent conduire à l'endommagement sur la surface du composant [17]. Les conditions de nettoyage, de montage et l'historique du composant sont ainsi à prendre en compte.

Dans le cas où l'endommagement est lié à des effets thermiques (irradiation continue de miroirs métalliques par exemple), la température affecte le seuil de tenue au flux : une diminution du seuil peut être observée lorsque la température augmente.

Les conditions hygrométriques peuvent également affecter la tenue au flux, particulièrement dans l'infrarouge où beaucoup de matériaux sont sensibles à l'humidité.

## 5. Composants optiques adaptés aux forts flux laser

### 5.1 Matériaux massifs

Les matériaux transparents utilisés pour les applications de haute puissance doivent présenter une absorption la plus faible possible à la longueur d'onde d'intérêt, et très peu d'impuretés. Il existe un grand nombre de données dans la littérature, mais comme nous l'avons vu il peut être, d'une part, difficile de comparer les résultats obtenus par différents laboratoires et, d'autre part, les procédés de fabrication ont une importance majeure sur la tenue au flux. Nous ne donnerons donc pas de valeurs absolues de seuils, mais nous signalons les matériaux connus pour leur résistance au flux laser.

- La silice ( $\text{SiO}_2$ ) de type synthétique (*UV grade fused silica*) est un matériau de prédilection car il présente une très bonne tenue au flux du DUV ( $> 1 \text{ J/cm}^2$ , 10 ns, à 193 nm) au PIR ( $> 20 \text{ J/cm}^2$ , 10 ns, 1 064 nm).
- Dans le domaine de l'UV et du DUV, des matériaux tels que  $\text{MgF}_2$  et  $\text{CaF}_2$  présentent également de bonnes résistances au flux laser.
- Pour les applications infrarouge à 10,6  $\mu\text{m}$ , le  $\text{ZnSe}$  est le matériau le plus couramment utilisé pour les lasers de puissance, du fait de son faible coefficient d'absorption ( $< 0,00005 \text{ cm}^{-1}$ ) comparé aux autres matériaux (Ge, Si, ZnS...).
- Pour des bandes intermédiaires comme l'infrarouge entre 2 et 5  $\mu\text{m}$ , les matériaux tels que le saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et les fluorures ( $\text{CaF}_2$ ,  $\text{BaF}_2$ ,  $\text{MgF}_2$ ) présentent les meilleures tenues au flux [16].

En ce qui concerne les métaux, particulièrement pour les applications à 10,6  $\mu\text{m}$  où les miroirs métalliques sont couramment utilisés, le matériau présentant les meilleures caractéristiques (absorption, température de fusion, paramètres thermiques) est le **cuivre**. Le **molybdène** et l'**or** ont également des caractéristiques intéressantes. Notons que le seuil d'endommagement théorique peut être fortement augmenté en évacuant la chaleur par l'arrière du miroir (circuit d'eau).

### 5.2 Polissage des surfaces

Le polissage est une étape critique pour la tenue au flux laser des composants. Le procédé classiquement utilisé consiste en une action abrasive de la surface. Cette abrasion est réalisée grâce à l'utilisation de différents produits de polissage, permettant de

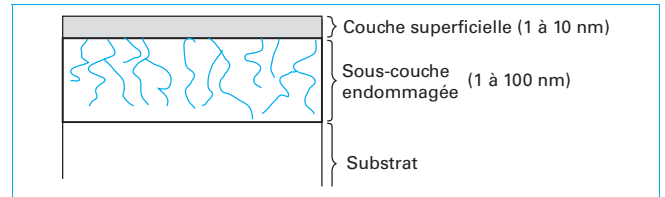


Figure 17 – Représentation schématique d'une coupe de la surface d'un verre après polissage [16]

travailler sur une couche hydratée en surface du verre, combinée à l'utilisation d'éléments d'abrasifs ( $\text{CeO}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ). Cette action abrasive entraîne, dès les premières étapes du polissage, la formation sous la surface de microcraquelures qui forment une sous-couche endommagée que l'on nomme SSD (*SubSurface Damage*). Des contaminants provenant des liquides de polissage peuvent rentrer plus ou moins profondément à l'intérieur des microcraquelures et constituer en surface une couche superficielle. La figure 17 représente schématiquement la surface d'un verre après polissage.

Les efforts pour améliorer la tenue au flux des verres se concentrent donc sur deux axes : réduire autant que possible la SSD et éliminer l'influence de la couche superficielle sur la tenue au flux à la longueur d'onde d'intérêt.

### 5.3 Nettoyage des surfaces

Un nettoyage approprié des substrats après polissage peut permettre d'enlever au mieux la couche superficielle contenant les résidus de polissage et ainsi réduire le nombre de centres précurseurs de l'endommagement pour augmenter la tenue au flux du composant.

Le nettoyage peut être réalisé de manière manuelle avec un chiffon imbibé d'alcool, d'alcool-éther, d'acétone ou de savon. Cependant, cette technique bien adaptée pour le nettoyage de quelques pièces, peut s'avérer très longue pour de grandes quantités et nécessite surtout une certaine dextérité de l'opérateur afin d'avoir une bonne reproductibilité du nettoyage. Des techniques de nettoyage automatiques existent, elles permettent de gagner du temps et assurent une parfaite reproductibilité et un suivi des nettoyages réalisés. Ces techniques de nettoyage utilisent principalement l'effet des ultrasons dans des bains lessiviels.

### 5.4 Couches minces diélectriques

Les couches minces optiques sont présentes sur la majorité des composants optiques utilisés dans les systèmes lasers. Suivant l'application, elles peuvent être utilisées pour minimiser la réflexion (antireflet), servir de miroir comme alternative aux miroirs métalliques, bloquer ou transmettre certaines longueurs d'onde ou gammes de longueurs d'onde, agir sur la polarisation... Ces traitements multicouches sont souvent le point faible en ce qui concerne la tenue au flux dans une chaîne laser. En effet les matériaux déposés sont généralement de moins bonne qualité que le matériau sous forme massive (présence d'inhomogénéités, d'absorption, de défauts, de lacunes...). Le choix des matériaux et les paramètres de dépôt sont donc essentiels pour maximiser la tenue au flux laser [6] [11].

Différentes techniques de dépôt peuvent être utilisées. Les techniques d'évaporation telles que **Electron Beam Deposition** ou **Sol Gel** permettent d'obtenir des couches avec de très bonnes tenues au flux, si des précautions sont prises pour éviter la présence de défauts : éjection de défauts du creuset vers l'échantillon par exemple. L'intérêt de ces couches est leur porosité, qui permet de relaxer les contraintes engendrées lors de l'initiation d'un endommagement, et d'éjecter les défauts qui sont peu liés à la couche, ce qui permet de minimiser le caractère catastrophique des endommagements. Cependant la qualité optique de ces couches et leur réaction à l'environnement est bien moindre, que celle des couches dites « denses » (obtenues par des **techniques assistées : par plasma**,

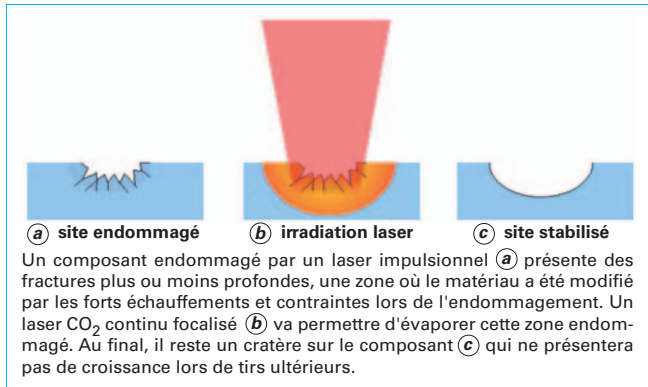


Figure 18 – Description du procédé de stabilisation sur un verre de silice

faisceau d'ion). Il a été observé dans de nombreuses études une moins bonne tenue au flux de ce type de couches par rapport aux couches poreuses. En effet, les endommagements présentent alors directement un caractère catastrophique : défauts très liés à la couche, forte contraintes lors de l'endommagement aboutissant à des ruptures mécaniques...

Cependant ces dernières années, beaucoup de progrès ont été faits dans le domaine des couches minces, notamment pour réduire les défauts limitants et certaines couches denses présentent de très bonnes tenues au flux [18].

Ces faits ne sont pas une généralité, la tenue au flux des couches dépend essentiellement de la maîtrise du fabricant, de ses conditions de dépôt, de la qualité du polissage et du nettoyage des substrats.

Les matériaux rencontrés sont les suivants :

- les oxydes (HfO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>) pour les longueurs d'onde UV à PIR ;
- les fluorures (MgF<sub>2</sub>, ThF<sub>4</sub>, CaF<sub>2</sub>) dans le domaine UV et infrarouge ;
- les sulfures dans le MIR et FIR (ZnSe, ZnS).

La structure de l'empilement est également importante pour la tenue au flux. Les structures déposées sont souvent des alternances de deux matériaux d'épaisseur optique  $\lambda/4$ . L'un des deux matériaux est généralement limitant dans ce type de structure. Un moyen efficace d'augmenter la tenue au flux d'une telle structure est de concevoir un empilement ayant la même fonction optique mais en utilisant des couches non quart d'onde dans le but de minimiser le champ électrique dans le matériau limitant et au niveau des interfaces souvent plus fragiles.

Certaines techniques de dépôt par coévaporation (*rugate filters*) permettent de concevoir des structures à gradient d'indice, et éviter la présence de discontinuités et d'interfaces. Ce type de composants a montré de très bonnes tenues au flux dans des études récentes et semble une voie très prometteuse.

## 5.5 Conditionnement des matériaux

Les procédés « mécano-chimiques » (polissage, nettoyage) peuvent être complétés par un procédé « optique » pour améliorer la tenue au flux des composants. On appelle cette opération le **conditionnement laser**. Il s'agit d'améliorer la résistance des composants grâce à une succession de pré-irradiations lasers, d'énergie croissante. L'efficacité de tels procédés a été démontrée sur des matériaux tels que des couches minces diélectriques, ou des cristaux de KDP... (brevet n° 5472748, cf. « Pour en savoir plus »). L'origine physique de ce phénomène est liée à plusieurs effets dépendant de la nature du matériau et des conditions d'utilisation : recuit du

matériau, éjection de défauts, désorption de contaminants. Dans un système laser, il peut être ainsi avantageux d'**augmenter progressivement la puissance** pour améliorer la résistance des optiques.

## 5.6 « Réparation » des dommages

Lorsqu'un dommage s'initie sur une optique lors d'une irradiation laser, du fait d'un défaut localisé, nous avons vu que le dommage peut croître lors d'irradiations ultérieures, rendant le composant inutilisable. Même si des procédés de fabrication très performants existent, aucun ne permet à ce jour l'éradication complète des défauts initiateurs d'endommagement laser, notamment dans le cas d'optiques de grandes dimensions. Dans le cas où les endommagements créés sur ces défauts présentent de la croissance, il peut être intéressant de « réparer » ces points faibles de l'optique. Pour cela il existe des procédés permettant d'éviter la croissance de ces dommages lors de tirs ultérieurs (on parle alors de **stabilisation**) : fusion/évaporation locale par laser (figure 18), repolissage local, attaque chimique, plasma, ou autre... Le principe commun de ces méthodes est d'enlever de la surface la partie endommagée et fragile (présentant des fractures, de l'absorption, des contraintes...). Dans le cas de la silice, les procédés de fusion/évaporation par laser CO<sub>2</sub> ont démontré leur efficacité (brevets n° FR 2896794 et n° FR 0956443 cf. « Pour en savoir plus »).

## 5.7 Fibres optiques

Des problèmes d'endommagement peuvent se produire dans les fibres optiques utilisées dans les systèmes laser, que ces fibres soient utilisées comme milieu amplificateur ou pour transporter le faisceau.

Les effets à considérer lors de l'utilisation de fibres optiques dans les systèmes laser sont les suivants :

- des problèmes d'endommagement sur les **faces d'entrée/sortie** des fibres (pollution, résidus de polissage, rayures...). Les considérations sont alors les mêmes que pour les surfaces des composants massifs, que nous avons traité plus haut : polissage, nettoyage adapté aux surfaces des fibres ;
- dans le **volume de la fibre**, on peut noter : des problèmes de défauts absorbants résiduels, des contraintes importantes au niveau de courbures ou de fixations qui peuvent fragiliser localement la fibre.

D'autres effets sont particulièrement importants dans les fibres : effet Brillouin, Raman et autofocalisation du fait de la grande longueur de matériau traversé.

Dans tous les cas, on a intérêt à **réduire la densité de puissance en augmentant le diamètre du cœur**. Une alternative intéressante existe pour le transport de faisceau : outre les fibres en silice, l'utilisation de **fibres à cristaux photoniques** (à cœur creux) peut également être envisagée.

## 6. Conclusion

Nous savons que l'endommagement laser est un phénomène complexe qui dépend de nombreux paramètres physiques et opérationnels. La mesure de la tenue au flux des matériaux est un problème délicat nécessitant de bien maîtriser et connaître les conditions de test.

L'amélioration de la tenue au flux des matériaux et la compréhension des effets physiques font toujours l'objet de recherche très actives, particulièrement dans le régime des impulsions ultracourtes où de nombreux développements sont en cours.



# Méetrologie de l'endommagement laser

par **Laurent GALLAIS**

Ingénieur de l'École nationale supérieure de physique de Marseille, docteur 3<sup>e</sup> cycle  
Maître de conférences à l'École centrale Marseille – Institut Fresnel

## Sources bibliographiques

- [1] Recueils de la conférence annuelle « Boulder Laser Damage Symposium » : SPIE (1968-2008).
- [2] LAMAINIERE (L.), BOUILLET (S.), COURCHINOUX (R.), DONVAL (T.), JOSSE (M.), PONCETTA (J.C.) et BERCEGOL (H.). – *An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials*. Review of Scientific Instruments, vol. 78, p. 103-105 (2007).
- [3] STUART (B.C.), FEIT (M.D.), RUBENCHIK (A.M.), SHORE (B.W.) et PERRY (M.D.). – *Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses*. Physical Review Letters, vol. 74, p. 2248 (1995).
- [4] BLOEMBERGEN (N.). – *Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surface of transparent dielectrics*. Applied Optics, vol. 12, p. 661-664 (1973).
- [5] WOOD (R.M.). – *Laser-induced damage of optical materials*. Institute of Physics Publishing (2003).
- [6] BLOEMBERGEN (N.). – *Nonlinear Optics*. World Scientific (1996).
- [7] CHMEL (A.E.). – *Fatigue laser-induced damage in transparent materials*. Materials Science and Engineering B, vol. 49, p. 175-190 (1997).
- [8] STOLZ (C.J.) et GENIN (F.Y.). – *Laser resistant coatings*. Optical Interference Coatings, N. Kaiser and H.K. Pulker eds, p. 309-333 (2003).
- Thèses**
- [9] VOLTO (P.). – *Étude de l'endommagement laser dans les couches minces optiques*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (1998).
- [10] POULINGUE (M.). – *Le rôle des nodules dans l'endommagement laser des miroirs à 1.06 µm*. Thèse doctorat, Institut national polytechnique de Grenoble (1999).
- [11] GALLAIS (L.). – *Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2002).
- [12] DURING (A.). – *Microscopie photothermique et endommagement laser*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2002).
- [13] OLIVIER (T.). – *Contribution à la métrologie de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaire dans le régime nanoseconde : amélioration de la méthode de Z-scan et simulations numériques*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2004).
- [14] BILLARD (F.). – *Méetrologie de l'indice non linéaire dans les verres en régime nanoseconde, picoseconde et sub-picoseconde*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2005).
- [15] BERTUSSI (B.). – *Étude des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser dans les composants optiques : vers une amélioration de la tenue au flux*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2005).
- [16] KROL (H.). – *Étude de l'endommagement laser dans les composants optiques pour le domaine de l'infrarouge*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2006).
- [17] PALMIER (S.). – *Étude de la pollution particulière d'une chaîne laser de puissance*. Thèse de doctorat, université Bordeaux I (2007).
- [18] CAPOULADE (J.). – *Étude multi-échelle de l'initiation de l'endommagement laser en surface et dans le volume de matériaux optiques*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2008).
- [19] HILDENBRAND (A.). – *Étude de l'endommagement laser dans les cristaux non linéaires en régime nanoseconde*. Thèse de doctorat, université Aix-Marseille (2008).

## À lire également dans nos bases

LA POINTE (S.), SAGAUT (J.) et SUBRAN (C.). – *Lasers : principes, applications et mesures énergétiques*. [R 6 280] Base Mesures (2009).

## Normes et standards

ISO 11254-1 2000 Determination of laser induced threshold on optical surfaces – part 1 : 1-on-1.

ISO 11254-2 2000 Determination of laser induced threshold on optical surfaces – part 2 : S-on-1.

## Brevets

C. R. Wolfe, M. R. Kozlowski, J. H. Campbell, M. Staggs et F. Rainer, « Permanent laser conditioning of thin film optical materials », U.S. Patent, n° 5472748, 1990.

P. Bouchut, J.G. Coutard, A. During, « Procédé et dispositif de traitement préventif d'une surface optique exposée à un flux laser », Brevet n° FR2896794, 2007.

P. Cormont, L. Gallais et J.-L. Rullier, « Procédé de traitement correctif d'un défaut sur la surface d'un composant optique pour laser de puissance », Brevet n° 0956443. France, 18 sept. 2009.