



**HAL**  
open science

# Développement de traitements multidiélectriques pour les lasers de haute puissance à impulsions femtosecondes

Adrien Hervy

► **To cite this version:**

Adrien Hervy. Développement de traitements multidiélectriques pour les lasers de haute puissance à impulsions femtosecondes. Optique [physics.optics]. Ecole polytechnique, Palaiseau, France, 2015. Français. NNT: . tel-01396052

**HAL Id: tel-01396052**

**<https://theses.hal.science/tel-01396052>**

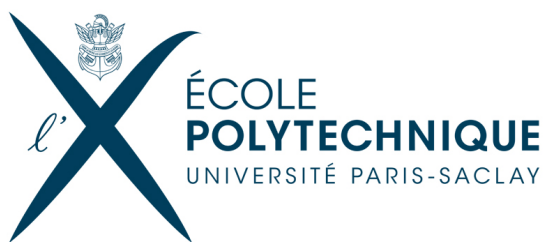
Submitted on 13 Nov 2016

**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.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License



## THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

**École doctorale de l'École Polytechnique**

**Spécialité doctorale "Physique"**

*présentée et soutenue publiquement par*

**Adrien HERVY**

le 11 Décembre 2015

# **Développement de traitements multidiélectriques pour les lasers de haute puissance à impulsions femtosecondes**

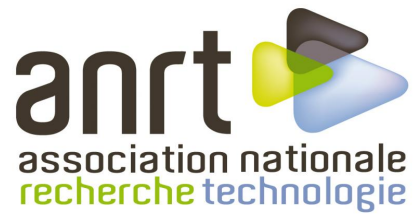
Directeurs de thèse : **Gilles CHÉRIAUX & Laurent GALLAIS**

Co-encadrant de thèse : **Daniel MOURICAUD**

### **Jury**

<b>Jérôme NÉAUPORT</b> ,	Ingénieur de Recherche	Rapporteur
<b>Olivier UTÉZA</b> ,	Directeur de Recherche	Rapporteur
<b>Patrick AUDEBERT</b> ,	Directeur de Recherche	Examineur
<b>Bernard DRÉVILLON</b> ,	Directeur de Recherche émérite	Examineur





Association Nationale de la Recherche et de la Technologie  
41 Boulevard des Capucines, 75002 Paris, France



SAFRAN Reosc  
Avenue de la Tour Maury, 91280 Saint-Pierre-du-Perray, France



Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA, École Polytechnique, CNRS UMR 7639  
91761 Palaiseau cedex, France



Aix Marseille Université, CNRS, Centrale Marseille, Institut Fresnel, UMR 7249  
13397 Marseille, France



# Table des matières

<b>Introduction générale</b>	<b>9</b>
<b>1 Contexte et état de l'art</b>	<b>11</b>
1.1 Infrastructures laser de haute puissance	12
1.1.1 Sites et applications	12
1.1.2 Architecture d'un laser multi-petawatt	15
1.1.3 Challenges	15
1.2 Interactions laser/matière	18
1.2.1 Généralités sur l'interaction lumière/matière	18
1.2.2 Propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu diélectrique	19
1.2.3 Mécanismes de l'endommagement laser en régime femtoseconde	20
1.3 Tenue au flux laser des matériaux couches-minces	22
1.3.1 Matériaux métalliques	22
1.3.2 Matériaux diélectriques	23
1.3.3 Miroirs haute-réflexivité	23
<b>2 Mesure de l'endommagement laser</b>	<b>27</b>
2.1 Métrologie	28
2.1.1 Le banc optique	29
2.1.2 L'échantillon	32
2.1.3 Procédure de test	34
2.1.4 Le seuil d'endommagement	36
2.2 Plateformes de tests	41
2.2.1 500fs-1030nm	41
2.2.2 40fs-800nm	48
2.2.3 10fs-800nm	51
<b>3 Couches Minces Optiques</b>	<b>55</b>
3.1 Conception de fonctions optiques	56
3.1.1 Généralité	56
3.1.2 Calcul du champ électrique	57
3.2 Fabrication	64
3.2.1 Préparation du substrat	64
3.2.2 Dépôt de couches minces optiques	65
3.3 Caractérisations	70
3.3.1 Propriétés physiques	70
3.3.2 Propriétés optiques	71
3.3.3 Propriétés mécaniques	73
<b>4 Tenue au flux laser de matériaux couches minces en régime femtoseconde</b>	<b>77</b>
4.1 Études de matériaux diélectriques	78
4.1.1 Le dioxyde d'hafnium	78
4.1.2 Le dioxyde de silicium	84
4.1.3 Autres matériaux diélectriques	88

---

4.1.4	Bilan	97
4.2	Comportement des matériaux dans un empilement réfléchissant	99
4.2.1	Design	99
4.2.2	Fabrication	100
4.2.3	Caractérisations	100
4.2.4	Tenue au flux laser	101
<b>5</b>	<b>Fabrication de composants pour lasers multipetawatt</b>	<b>105</b>
5.1	Optiques réfléchissantes et semi-réfléchissantes	108
5.1.1	Traitements MLD et MMLD	108
5.1.2	Différentes formes de miroirs	112
5.1.3	Lames séparatrices et miroirs de diagnostics	114
5.2	Réseaux de diffraction	116
5.2.1	Conception	116
5.2.2	Fabrication	117
5.2.3	Caractérisations de l'empilement non structuré	119
5.2.4	Caractérisations du réseau	121
	<b>Conclusion générale</b>	<b>125</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>127</b>



# Remerciements

Ce travail ne serait rien sans la contribution de tous ceux qui y ont été impliqués de près ou de loin. Merci à tous pour votre aide. Merci de m'avoir appris, guidé et soutenu du début à la fin.

Je tiens particulièrement à exprimer toute ma reconnaissance à mes trois directeurs de thèse Gilles CHÉRIAUX, Laurent GALLAIS et Daniel MOURICAUD. Merci d'avoir pris le temps, chaque jour, de me guider de toute votre expertise. Merci de la confiance que vous m'avez accordée. Merci pour votre précieux soutien et vos nombreux encouragements. C'est un privilège de travailler avec vous et d'avoir appris de vous.

Je remercie vivement les membres du jury, Patrick AUDEBERT, Bernard DRÉVILLON, Olivier UTÉZA et Jérôme NÉAUPORT, qui ont accepté d'évaluer ce travail. Merci pour le temps que vous y avez consacré et surtout merci pour vos questions, remarques et conseils à l'issue de la lecture du manuscrit et de la soutenance.

Je souhaite également exprimer toute ma gratitude à messieurs Michel PÉALAT et Thierry BATUT pour avoir rendu possible cette thèse. J'ai été très sensible à la confiance et au soutien que vous m'avez toujours accordé. A travers vous je remercie le groupe SAFRAN et la division optronique et défense de SAGEM de nous avoir donnés les moyens nécessaire à la réalisation de ces travaux.

Je veux aussi remercier l'ensemble des mes collègues de Reosc, en particulier Bernard et Hervé. J'admire vos connaissances, votre travail, votre carrière. Vous êtes des exemples que je m'efforce de suivre. Merci pour vos nombreux conseils et encouragements.

Et bien évidemment je remercie mes collègues et amis du service Couches Minces : Jérôme, Fabien, Remi, Medhi, Karell, Patrick, Jean-Claude, André, Fred, Fred, Christel, Damien, Nicolas, Raph, Fabrice, Mathieu, MaNo, Nadine, Manu, Régis, Michael. Merci pour votre courage, votre volonté et votre bonne humeur qui nous pousse à nous surpasser chaque jour.

Enfin merci Slimane pour les rencontres que j'ai pu faire partout dans le monde grâce à toi et pour l'incroyable énergie que tu consacres à valoriser mon travail.

Merci à Antoine ROUSSE et Stéphane ENOCH de m'avoir permis d'apprendre et d'évoluer dans leur laboratoire respectif, le Laboratoire d'Optique Appliquée et l'Institut Fresnel. Merci à tous ceux avec qui j'ai eu la chance de pouvoir échanger au cours de mes passages successifs à Palaiseau et Marseille.

Je remercie également Arnaud COTEL, Frederic DESSUERE, Catherine LE BLANC, François MATHIEU, Nicolas BONOD, Jean-Paul CHAMBARET et Mathieu SOMECK pour toutes ces discussions techniques très constructives, notamment dans le cadre du projet REMED.

Je remercie vivement chacun des doctorants et stagiaires que j'ai eu la chance et le plaisir de côtoyer : Joinel, Antonio, Mehdi, Ayman, Marie, Dam-be, Alexandre, David, et Thomas et Romain. Merci pour tous les bons moments passés ensemble : déjeuners (je ne parle pas de la saveur des repas du RU), pause-café, footing, JDD etc. Je vous souhaite à tous de réussir une belle carrière. Un merci particulier à Marc pour son humour, sa gentillesse et son amitié de chaque instant.

Je veux profiter de cette page pour remercier quelques uns de mes professeurs, sans qui je ne serai jamais arrivé là. Mme GAUVREAU, M. TARA, M. DESBORDES, et Caroline VIGREUX. J'ai adoré apprendre en vous écoutant.

Gilles, Julien, Cyril, Julien, Sandy, David, Pierre, Stéphane, Joffrey et Gilles, nous avons fait ensemble un bout de chemin, plus ou moins long, sur les banc de l'école et en dehors. Vous portez votre part de responsabilité dans le plaisir que j'ai à entreprendre chaque jour. Merci à tous!

Christophe, Esther, Marie, Julie, Papi Henri, Mamie Anne-Marie, Pépère Clément, Mémère Odile, Tontons, Tatas, Cousins et Cousines (je suis désolé pour le raccourci facile mais vous êtes trop nombreux pour être cités individuellement) vous avez, toutes et tous, ma gratitude pour le bonheur familial partagé.

Enfin, Elli, merci pour ta patience, tes précieux encouragements et ton soutien. A ton tour maintenant...

# Introduction générale

Depuis la description, par Einstein en 1917, du principe de l'émission stimulée, puis la première démonstration de l'effet laser, par Maiman en 1960, et les différentes évolutions de leur technologie, les lasers sont devenus indispensables dans notre quotidien (lecteur de code barre, lecteur CD, ...), dans l'industrie (découpe, soudage, ...), celui de la médecine (chirurgie réfractive, ...) et dans la recherche scientifique (caractérisations des matériaux, physique fondamentale, ...).

La principale évolution des lasers se situe dans la puissance lumineuse qu'ils génèrent. Aujourd'hui le principal challenge des scientifiques est d'atteindre des puissances de plusieurs Petawatts ( $10^{15}$ W). Pour cela, une énergie d'une centaine de joules (100J) est concentrée dans un temps extrêmement court d'une dizaine de femtosecondes ( $10^{-14}$ s).

Pour générer et utiliser ces impulsions laser ultra-courtes et de très haute puissance, des infrastructures laser s'érigent petit à petit (Apollon 10P, Extrême Light Infrastructure, ...). Or dans ces installations, le faisceau laser nécessite d'être distribué et transporté vers des chambres d'expériences. Pour cela on utilise des substrats sur lesquels on vient déposer un traitement couches minces de matériaux diélectriques afin de réaliser les fonctions optiques requises (réflectivité, transmission, etc.). Les travaux décrits dans cette thèse concernent l'étude de ces traitements pour répondre aux spécifications particulières du transport de faisceaux multi-petawatt.

Pour mener cette étude, une collaboration a été mise en place au travers de cette thèse, entre Reosc, l'Institut Fresnel et le Laboratoire d'Optique Appliquée.

Reosc est une société du groupe SAFRAN, filiale de Sagem Défense Sécurité, située à 35km au sud de Paris. Avec son effectif de près de 150 employés, dont 80% d'ingénieurs et de techniciens, Reosc dispose d'un panel de compétences lui permettant de concevoir, fabriquer, mesurer et intégrer des systèmes opto-mécaniques avancés à haute valeur ajoutée pour des applications spatiales, astronomiques, énergétiques et industrielles. Depuis les premiers développements dans les années 80 (laser Octal, Phebus, ...) les traitements laser haute performance constituent une activité majeure du pôle *Couches Minces Optiques* de la société à la fois en recherche, développement et production.

L'Institut Fresnel, situé sur le campus Saint Jérôme à Marseille, est un laboratoire sous la tutelle de l'Université d'Aix-Marseille, du CNRS et de l'École Centrale Marseille. Les thématiques de recherches y sont la photonique, l'électromagnétisme et le traitement du signal et des images. Au sein du laboratoire, les recherches de l'équipe ILM (*Interaction Laser Matière*) portent sur la physique et les applications des phénomènes d'interactions laser/matière sous fort flux lumineux, principalement à travers l'étude de l'endommagement laser des matériaux et composants optiques. Les recherches menées traitent d'une part la compréhension des phénomènes fondamentaux de l'interaction laser/matière par le développement d'expériences et de modèles, et d'autre part la mise en œuvre de ces phénomènes pour des applications spécifiques.

Le Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA), situé sur le plateau de Saclay à Palaiseau, est sous la tutelle de l'ENSTA, du CNRS et de l'École Polytechnique. Ses activités de recherche couvrent un

large spectre scientifique centré sur le développement et les applications de sources lasers ultra-brefs, la physique de l'interaction laser/matière et des plasmas, ainsi que la production de sources compactes de rayonnements et de particules énergétiques. Parmi les équipes de recherche, le groupe LHP (*Lasers Haute Puissance*) a pour mission le développement et la mise à disposition de sources laser haute intensité et/ou haute cadence innovantes.

Cette synergie autour de la fabrication, des caractérisations et de l'utilisation de composants laser constitue un environnement idéal pour la réalisation de ces travaux.

Ce projet d'étude présente des intérêts à la fois scientifiques et technologiques. En effet, les mécanismes fondamentaux de l'interaction laser/matière, dans le cas particulier des lasers à impulsions femtosecondes et des matériaux en couches minces, offrent des perspectives intéressantes de résultats scientifiques. Ensuite, le développement des procédés de production de composants pour les lasers à impulsions femtosecondes représente un challenge majeur et conduit à l'amélioration des outils de production, profitable à d'autres projets connexes. Enfin, ces travaux sont aussi une vitrine pour montrer, aux constructeurs de lasers intenses, les dernières avancées dans la fabrication de composants optiques pour laser multi-petawatt .

Après avoir donné un aperçu du contexte économique, technologique et scientifique, nous évoquerons, dans le chapitre premier, les mécanismes d'interaction laser/matière et les principaux résultats de tenue au flux laser des couches minces optiques extraits de la littérature.

Nous verrons que malgré l'existence de la norme ISO 21254 pour la réalisation des tests de tenue au flux laser, la comparaison des résultats des tests menés sur des couches minces optiques partout à travers monde reste délicate. En effet, la variété des paramètres et leur interprétation est si grande qu'il est n'est possible d'utiliser les données que si les conditions de tests sont décrites avec la précision et l'exhaustivité nécessaire. L'objet du deuxième chapitre est la description et l'interprétation des tests d'endommagement laser ainsi que la présentation des plateformes de tests développées dans le cadre de ces travaux.

Dans la réalisation d'un miroir de transport d'un faisceau ultra-intense, la résistance au flux des matériaux en couches minces ne constitue pas l'essentiel des paramètres. En effet, le choix de la technologie de dépôt, la maîtrise du procédé d'évaporation et la capacité de caractérisation sont essentiels pour atteindre l'ensemble des spécifications requises. Nous consacrons le troisième chapitre aux spécificités de la conception de fonctions optiques par dépôt de couches minces : design, fabrication et caractérisations. Nous présentons les outils et moyens mis en œuvre pour mener ces travaux.

Beaucoup de travaux récents évoquent la tenue au flux des matériaux couches minces en régime femtoseconde mais la plupart concernent des études menées sur des matériaux déposés utilisant des technologies très énergétiques comme l'IBS (Ion-Beam Sputtering). Or, l'ambition de Reosc est d'utiliser son savoir-faire dans la mise en œuvre des procédés EBD (Electron Beam Depositon) et IAD (Ion-Assisted Deposition) sur des optiques de dimensions métriques. C'est pourquoi dans l'avant dernier chapitre nous présentons les résultats des tests de résistance au flux laser de plusieurs matériaux diélectriques déposés en couches minces dans des conditions de traitement compatibles avec la réalisation de composants de grandes dimensions.

Enfin, dans un système laser ultra-intense, de la chambre de compression au transport du faisceau vers les chambres d'expériences de nombreux composants, majoritairement des réflecteurs, sont nécessaires. Nous présentons, dans l'ultime partie, les choix de designs et de procédés vers lesquels les travaux menés nous ont permis de converger ainsi que les résultats obtenus. L'ensemble des composants y sont présentés, du miroir plan au réseau de diffraction en passant par les lames séparatrices et les paraboles hors d'axes à 90°.

# Chapitre 1

## Contexte et état de l'art

*« Ainsi en était-il depuis toujours. Plus les hommes accumulaient des connaissances, plus ils prenaient la mesure de leur ignorance. »*

---

Dan Brown

### Sommaire

---

<b>1.1 Infrastructures laser de haute puissance</b> . . . . .	<b>12</b>
1.1.1 Sites et applications . . . . .	12
1.1.2 Architecture d'un laser multi-petawatt . . . . .	15
1.1.3 Challenges . . . . .	15
<b>1.2 Interactions laser/matière</b> . . . . .	<b>18</b>
1.2.1 Généralités sur l'interaction lumière/matière . . . . .	18
1.2.2 Propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu diélectrique . . . . .	19
1.2.3 Mécanismes de l'endommagement laser en régime femtoseconde . . . . .	20
<b>1.3 Tenue au flux laser des matériaux couches-minces</b> . . . . .	<b>22</b>
1.3.1 Matériaux métalliques . . . . .	22
1.3.2 Matériaux diélectriques . . . . .	23
1.3.3 Miroirs haute-réflexivité . . . . .	23

---



## 1.1 Infrastructures laser de haute puissance

*L'objet de cette partie est d'introduire le contexte dans lequel se sont déroulés ces travaux et d'en justifier leur intérêt. Les éléments cités sont largement extraits de communications des équipes des projets ELI et Apollon 10P. Nous invitons le lecteur à consulter directement ces documents s'il souhaite obtenir plus de détails sur ces infrastructures lasers.*

### 1.1.1 Sites et applications

C'est sous la forme de lumière que le cosmos libère son énergie. Dans le soleil en particulier, la température (15 000 000°C) et la densité de matière (150g/cm<sup>3</sup>) sont si élevées que les atomes d'hydrogène peuvent fusionner en un atome d'Hélium libérant ainsi l'énergie qui permet la vie sur terre. Alors que l'un des enjeux majeurs aujourd'hui pour notre société est justement de satisfaire notre besoin grandissant en énergie à travers une solution durable et responsable, les scientifiques du monde entier cherchent à démontrer les principes physiques de la fusion nucléaire, c'est à dire à reproduire artificiellement et de manière contrôlée, en laboratoire, les mécanismes de génération d'énergie naturelle du soleil. Cette démonstration a été réalisée par confinement magnétique et des progrès considérables sont attendus grâce au projet ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor). [32] Cependant, étant donné la nature des enjeux, une autre approche est étudiée au sein de différentes installations à travers le monde (table 1.1) : le confinement inertiel par laser. La physique de la fusion est également étudiée grâce aux installations du NIF [71] et du LMJ (Laser Mégajoule), [48] et la démonstration des principes physiques de la fusion nucléaire par utilisation de la technologie laser devrait être faite prochainement.

Ameriques	Asie/Australie	Europe
NIF, OMEGA, Nova, Nike, Shiva, Argus, Cyclops, Janus, Long path	SG-I, SG-II, SG-III, SG-IV, GEKKO XII	HiPER, Asterix IV (PALS), LMJ, LULI2000, ISKRA, Vulcan

TABLEAU 1.1 – Infrastructures laser, dédiées à l'étude de la fusion nucléaire par confinement inertiel [102]

Les recherches sur le confinement inertiel par laser, menées majoritairement dans le cadre de financements par les départements de la défense, ont fortement contribué à l'évolution technologique des lasers depuis la première démonstration de l'effet laser en 1960 au Hughes Aircraft Laboratory. Petit à petit, les chercheurs ont pu disposer d'outils pour explorer la matière dans des régimes de plus en plus extrêmes (figure 1.1). Aujourd'hui l'Europe ambitionne à travers le financement du projet ELI (Extreme light Infrastructure) [63] de construire des infrastructures laser de grande envergure pour mettre à la disposition de la communauté scientifique mondiale les plus hautes puissances crêtes et intensités focalisées jamais créées.

ELI est la première installation dédiée à l'étude fondamentale de l'interaction laser/matière en régime ultra-relativiste ( $I > 10^{24}$  W/cm<sup>2</sup>) avec l'objectif ultime de disposer d'un faisceau laser de 200PW. Afin de libérer l'ensemble des verrous technologiques, trois premières installations (table 1.2), appelées aussi "piliers", sont construites dans trois pays différents avec des applications complémentaires aussi bien au niveau de l'architecture laser que des expériences. D'autres projets d'infrastructures laser de classe PW grandissent un peu partout dans le monde. Parmi elles on peut citer Bella aux Etat-Unis qui est le premier laser au monde ayant générée une impulsion de 1PW et le laser Apollon 10PW, inauguré le 29 septembre 2015, dont l'infrastructure sert de prototype aux lignes 10PW des piliers de ELI.

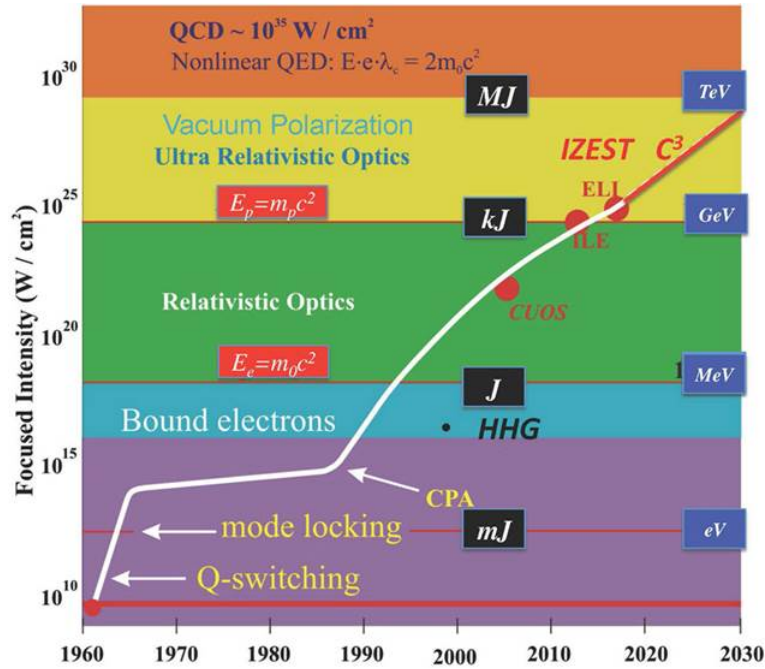


FIGURE 1.1 – Évolution de l'intensité depuis la première démonstration de l'effet laser en 1960, avec les différents régimes optiques et électrodynamiques. La partie rouge de la courbe correspond au régime adressé par IZEST (International center for Zetta- and Exawatt Science and Technology). Les **carrés noirs** indiquent les énergies laser typiques (joules). Les **carrés bleus** indiquent l'énergie typique des particules (Électron-Volt). **QCD** : chromodynamique quantique. **QED** : Électrodynamique quantique. **E** : Champ Électrique. **e** : Charge de l'électron.  $\lambda_c$  : Longueur d'onde de Compton.  $m_0$  : Masse de l'électron. **c** : Vitesse de la lumière.  $E_p$  : Energie du proton.  $m_p$  : Masse du proton.  $E_e$  : Energie de l'électron.  $C^3$  : Compression de conversion en cascade. **ELI** : Extreme Light Infrastructure. **ILE** : Institut de la Lumière Extrême. **CUOS** : Center for Ultrafast Optical Science. **HHG** : Génération d'harmoniques d'ordre élevé. **CPA** : amplification par dérive fréquence. [62]

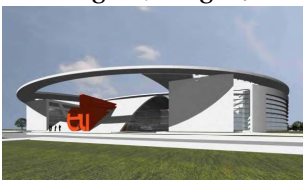

Pilier	Application
<p style="text-align: center;"><b>ELI-ALPS</b> Attosecond Light Pulse Source <i>Szeged (Hongrie)</i></p> 	<ul style="list-style-type: none"> <li>— Recherches fondamentales et appliquées en physique, chimie, matériaux et biomédecine,</li> <li>— Délivrer une large gamme de sources lumineuses ultra-rapides (impulsions attoseconde de radiation cohérente XUV et rayons-X) pour permettre les recherches sur la dynamique des électrons dans les atomes, molécules, plasmas et solides aux échelles femto- et atto-seconde.</li> <li>— Contribution au développement scientifique et technologique pour la génération d'impulsions de 200PW.</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>ELI-Beamlines</b> <i>Dolní Břežany</i> <i>(République-Tchèque)</i></p> 	<ul style="list-style-type: none"> <li>— Délivrer à haute fréquence des impulsions ultra-courtes avec plus de 50J d'énergie,</li> <li>— Contribuer au développement des systèmes de haute intensité,</li> <li>— Développer et tester les technologies choisies (OPCPA et/ou Ti:Saphire),</li> <li>— Mettre à disposition pour applications des sources compétitives d'impulsions extrêmement courtes de rayons-X, d'électrons ou de protons.</li> </ul>
<p style="text-align: center;"><b>ELI-NP</b> Nuclear Physics <i>Magurele (Roumanie)</i></p> 	<ul style="list-style-type: none"> <li>— Diagnostic précis de l'interaction par méthodes et techniques nucléaires,</li> <li>— Réactions photo-nucléaires pour l'étude des structures nucléaires et applications nucléaires,</li> <li>— Physique nucléaire exotique et astrophysique,</li> <li>— Frontière de la physique fondamentale à partir de laser haute intensité et faisceaux <math>\gamma</math> très brillants.</li> </ul>

TABLEAU 1.2 – Les trois premiers piliers du projet européen ELI.[63]

### 1.1.2 Architecture d'un laser multi-petawatt

Le laser Apollon 10P a pour ambition de mettre à disposition à la communauté scientifique une intensité supérieure à  $2 \times 10^{22}$  W/cm<sup>2</sup>, grâce à un faisceau laser de 10PW de puissance crête obtenue à partir d'une énergie de 150J comprimée dans une impulsion de 15fs. Ce qui fait la spécificité du laser Apollon 10PW est la durée d'impulsion visée qui est plus courte que celle des autres infrastructures laser multi-petawatts (20-40fs) et qui nécessite donc une maîtrise toute particulière du spectre de l'impulsion.

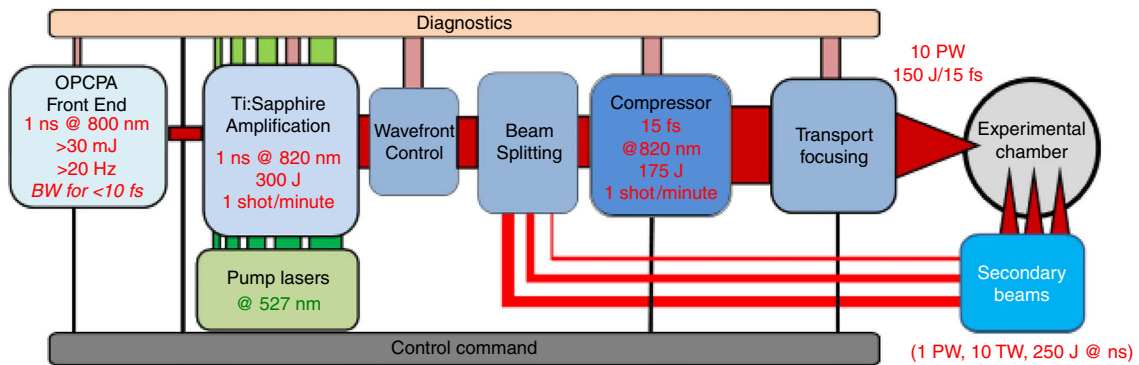


FIGURE 1.2 – Schéma du laser Apollon 10P. [105]

L'architecture du laser Apollon 10P est schématisée sur la figure 1.2. Le front-end, développé à l'Institut d'Optique, [31] génère des impulsions de 30mJ d'une durée inférieure à 10fs (étirées à 1ns) avec un contraste temporel meilleur que  $10^{-12}$  à une fréquence de 10-100Hz. L'impulsion est générée à partir d'un oscillateur Ti:Saphir. Elle est alors injectée d'une part dans l'amplificateur Ti:Saphir dans lequel le spectre autour de 800nm est élargi et le contraste temporel est amélioré (gain  $\times 1000$ ) et d'autre part dans les amplificateurs pompés diode (cristaux d'Ytterbium dopés) pour générer un faisceau pompe à 515nm par génération de la seconde harmonique du spectre à 1030nm. L'impulsion large bande est ensuite amplifiée dans deux étages NOPCPA (Non-collinear Optical Parametric Chirped Pulse Amplification) à travers des cristaux BBO ( $\beta$ -borate de baryum) pompés par le faisceau à 515nm (gain  $\times 50 - \times 100$ ).

Le faisceau de 6mm de diamètre passe ensuite par la section amplificatrice, développée au Laboratoire d'Optique Appliquée. [44] Elle est constituée de 5 étages dans lesquels des cristaux de Ti:Saphir jusqu'à 140mm de diamètre sont pompés par 2 modules lasers de 400J chacun pour finalement obtenir un faisceau de 300J dans un diamètre de 140mm à une fréquence de 1 tir/min.

Après distribution du faisceau amplifié à travers une combinaison de séparatrices, le faisceau principal, expansé à un diamètre de 400mm, est comprimé grâce à 4 réseaux Or (seule technologie présentant une efficacité de diffraction totale supérieure à 70% sur l'ensemble du spectre) de dimension  $910 \times 455\text{mm}^2$  gravés avec une densité de traits de 1480l/mm. La compression s'effectue dans une chambre à vide ( $10^{-7}$ mbar) de  $60\text{m}^3$ . Le faisceau est ensuite transporté, sous vide, vers les chambres expérimentales.

Tout au long de la mise en forme du faisceau des diagnostics sont mis en place pour contrôler le spectre, l'énergie, le profil spatial et la durée des impulsions. Des miroirs à fuite sont utilisés pour extraire des photons du faisceau principal et des boucles adaptatives utilisant des miroirs déformables sont utilisées pour corriger le front d'onde.

### 1.1.3 Challenges

Dans la construction d'un système multi-petawatt de type Apollon 10P, le diagnostic, la distribution et le transport de faisceaux de puissances crêtes élevées représentent de nombreux

challenges. En effet, chaque élément requiert un niveau de développement à la pointe de la technologie actuelle, voir au delà. La mise au point de lasers de pompe aux niveaux d'énergie requis (400J) est un challenge considérable tout comme la fabrication de cristaux Ti:Saphir de taille multi-centimétrique. En tant que fabricant d'optiques de hautes performances et de grandes dimensions Reosc s'intéresse particulièrement dans ce cadre aux challenges de la conception, de la fabrication et de la mesure de larges optiques avec en premier lieu les miroirs de transport mais également les miroirs à fuite de diagnostic, les séparatrices et les miroirs déformables ou encore les réseaux de diffraction et les paraboles extrêmes de focalisation.

La production de composants optiques laser de grande dimension a connu des progrès considérables avec la construction des lasers haute énergie comme la LIL, le LMJ ou le NIF, mais les différences entre ces lasers et les lasers ultra-intenses comme Apollon 10P (cf. Tableau 1.3) amènent leurs lots de nouvelles perspectives de développement.

Critère	LMJ	Apollon 10P
<b>Puissance</b>	600 TW	<b>10 PW</b>
<b>Durée de l'impulsion</b>	3 ns	15 fs
<b>Énergie</b>	<b>1.6 MJ</b>	150 J
<b>Taille du faisceau</b>	45 cm×45 cm	φ40 cm
<b>Nombre de faisceaux</b>	240	1
<b>Fluence par faisceau</b>	25 J/cm <sup>2</sup>	120 mJ/cm <sup>2</sup>
<b>Spectre</b>	λ=1064 nm	λ=720-920 nm

TABLEAU 1.3 – Mise en parallèle des principales caractéristiques des lasers LMJ et Apollon 10P

En effet, les challenges associés à la construction d'un système laser du niveau de complexité et de performances du système Apollon 10P résident en grande partie dans la tenue au flux laser des optiques à des durées d'impulsions ultra-courtes. En effet, comme nous le verrons par la suite, les mécanismes d'interactions laser/matière en régime d'impulsions femtosecondes diffèrent des mécanismes maintenant bien connus du régime d'impulsions nanosecondes. De plus, on notera que les spécifications en terme de tenue au flux laser sont bien plus élevées que le besoin théorique afin de sécuriser d'une part l'écart entre la résistance au flux laser mesurée sur une plateforme de tests et la résistance au flux laser dans les conditions réelles d'utilisation et d'autre part les éventuelles fluctuations d'intensité générales ou localisées du faisceau laser. Ensuite, de part les propriétés de la transformée de Fourier, la génération d'impulsions de plus en plus courtes nécessite des spectres de plus en plus étendus. Les performances optiques des composants (par exemple la réflectivité) doivent être atteintes sur des larges gammes spectrales. Cette particularité des régimes impulsions ultra-courts nécessite également une maîtrise de la dispersion de vitesse de groupe (GDD) qui apporte une contrainte supplémentaire importante au design des traitements. Enfin, sur une installation de la taille d'Apollon 10P, le nombre important de composants ne laisse que peu, voire pas de place à un relâchement des performances de chacun. Bien sûr les acquis des développements des composants pour les lasers "nanosecondes" au niveau des procédés de fabrication constituent une solide base pour atteindre les objectifs fixés.

Le tableau 1.4 synthétise les principales spécifications impactant le choix du design et du procédé de fabrication du traitement couches minces des miroirs du faisceau principal du laser Apollon 10P. On remarquera que chaque élément pris individuellement ne présente pas de difficulté technologique particulière. D'ailleurs, pour chaque critère, on trouve assez et parfois depuis longtemps en catalogue des optiques répondant largement au besoin. Par contre c'est bien dans la combinaison de l'ensemble de ces spécifications que réside le challenge de ces travaux.

Environnement	Vide ( $10^{-7}$ )	Diamètre	>400 mm
Spectre	720 – 920 nm	Réfectivité	>99.5%
Durée d'impulsion	15 fs	Dispersion (GDD)	<50 fs <sup>2</sup>
Fréquence	1 tir/min	Tenue au flux laser	1 J/cm <sup>2</sup>
Incidence	45°	Front d'onde	$\lambda/4$
Polarisation	S ou P	Cosmétique	S/D 20/10

TABLEAU 1.4 – Spécifications majeures liées au traitement des miroirs de transport du faisceau principal du laser Apollon 10PW

Pour atteindre simultanément tous ces objectifs, de nouvelles solutions de conception d'empilements couches-minces doivent être imaginées. De nouvelles associations de matériaux doivent être développées afin de répondre aux spécifications de tenue au flux laser et de large bande spectrale de haute réflectivité et de faible dispersion. Des moyens spécifiques de métrologie doivent être utilisés pour caractériser les empilements de matériaux en couches-minces. Aussi, les développements doivent se porter sur des dimensions importantes pour réduire la densité d'énergie. Enfin, le comportement intrinsèque des matériaux et des empilements soumis à des impulsions laser ultra-courtes doit être mieux compris. C'est le cœur du travail de recherche présenté dans ce manuscrit.

## 1.2 Interactions laser/matière

L'interaction laser/matière dépend fortement de la densité d'énergie ou de puissance à laquelle la matière est soumise (figure 1.1). De part leur spécificité, les mécanismes d'interaction aux faibles énergies sont utilisés dans de nombreux moyens de caractérisation de la matière (fluorescence, spectroscopie Raman, etc.) ou pour des expériences de physique à des niveaux d'intensité extrêmement élevés. Dans le cadre de cette étude, nous nous intéressons aux mécanismes qui interviennent lorsque la matière est soumise à des champs électriques d'intensité intermédiaire.

### 1.2.1 Généralités sur l'interaction lumière/matière

Dans un matériau la cohésion des atomes est assurée par la mise en commun d'électrons dans des liaisons plus ou moins directionnelles. Un électron parfaitement libre peut avoir n'importe quel niveau positif d'énergie. Dans un atome isolé, les électrons ont des valeurs d'énergie correspondant à des niveaux discrets. Dans un matériau solide, les électrons peuvent avoir des valeurs énergétiques continues dans des intervalles discrets. Les bandes permises et interdites d'un matériau sont définies selon les fonctions de Bloch, solutions de l'équation de Schrödinger. Selon le remplissage des bandes par les électrons, le matériau ne présente pas le même comportement électrique. En effet, s'il existe une bande non remplie intégralement alors le matériau se comporte en conducteur. Si aucune bande n'est partiellement remplie alors le matériau est isolant.

Le niveau de Fermi correspond à l'énergie la plus haute d'un électron dans l'état fondamental (c'est à dire une température de 0K). Cet état permet de classer les matériaux selon leurs propriétés électroniques (figure 1.3). Les matériaux métalliques ont un niveau de Fermi dans une bande permise ce qui donne aux électrons une grande liberté, qui permet la conduction électrique, grâce aux états accessibles directement. Dans le cas où le niveau de Fermi se situe dans une bande interdite, dite "bandgap" alors le matériau est dit diélectrique. La bande remplie la plus élevée en dessous du niveau de Fermi est appelée bande de valence et la bande vide au dessus est appelée bande de conduction. Le cas où la bande interdite du matériau diélectrique est faiblement énergétique ( $<3\text{eV}$ ) définit le matériau semi-conducteur.

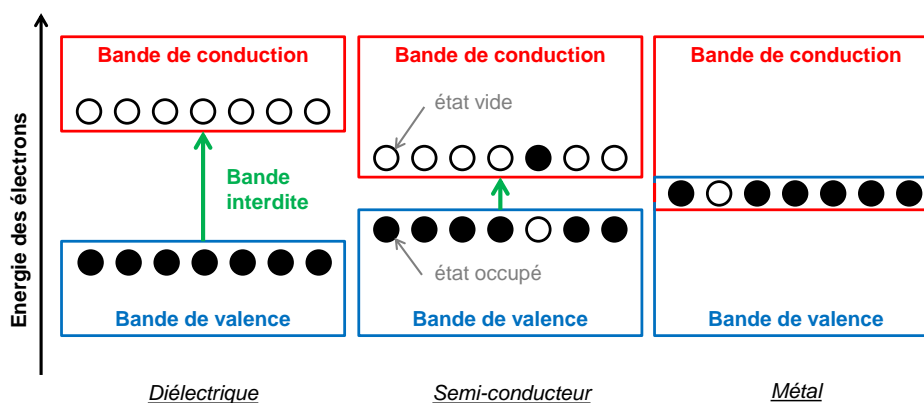


FIGURE 1.3 – Représentation des bandes d'énergie des électrons permises dans les matériaux métalliques, semi-conducteurs et diélectriques.

La lumière est un phénomène énergétique décrit à la fois par la théorie ondulatoire (onde électromagnétique) et la théorie corpusculaire (photon). L'interaction lumière/matière se traduit par un transfert d'énergie entre les photons et la matière. De ce transfert d'énergie peut résulter une émission de lumière (ré-émission de photons), de chaleur (agitation des particules par



l'énergie cinétique), de phonons (agitation du réseau cristallin) ou de plasmons (oscillation collective des électrons).

Les mécanismes d'interaction lumière/matière sont fréquemment utilisés, à faible intensité, pour caractériser les matériaux. En effet, comme chaque atome, chaque molécule, chaque réseau cristallin va réagir de manière spécifique à une stimulation photonique donnée, il est possible de caractériser la matière en l'irradiant spécifiquement puis en analysant les particules réémises. Par exemple en spectroscopie on va s'intéresser à la quantité de photons transmis, réfléchis, absorbés ou diffusés par le matériau. En fluorescence, ce sont les émissions lumineuses résultantes des recombinaisons d'électrons suite à une excitation photo-induite qui vont être interprétées.

Dans le domaine de la recherche en physique des particules, les matériaux sont soumis à une intensité laser focalisé suffisamment grande ( $3.5 \times 10^{16} \text{W/cm}^2$ ) pour permettre de créer des conditions de température et de pression favorable à la rupture de certaines barrières énergétiques qui lient les particules constitutives de la matière pour les extraire de manière contrôlée. Ensuite ces particules sont caractérisées (lorsqu'on cherche à les étudier ou à montrer leur présence) ou sont utilisées dans des expériences spécifiques pour leurs propriétés remarquables.

Dans le système laser, et particulièrement au niveau des miroirs de transport, on s'intéresse à des niveaux d'intensité intermédiaires ( $10^{13} \text{W/cm}^2$ ) suffisamment élevés pour arracher des électrons de valence aux matériaux diélectriques.

### 1.2.2 Propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu diélectrique

Un matériau diélectrique ne contient pas de charge électrique libre de se mouvoir macroscopiquement. La circulation d'un courant électrique y est donc impossible, c'est un isolant. L'air, les verres, les céramiques et la majorité des plastiques sont autant de matériaux diélectriques largement utilisés dans les applications électroniques [49] et optiques [47] pour leurs propriétés remarquables. Bien qu'ils ne permettent pas la circulation d'un courant, les matériaux diélectriques restent sensibles à l'action d'un champ électrique extérieur.

En effet, à un instant  $t$ , le champ électrique  $\mathbf{E}$ , défini spatialement par le vecteur position  $\vec{r}$ , génère dans le matériau diélectrique un état de polarisation  $\mathbf{P}$  [39] qui s'exprime, dans un milieu linéaire, selon l'équation 1.1, dans laquelle  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide et  $\chi^{(1)}$  est le tenseur de susceptibilité diélectrique du matériau.

$$\mathbf{P}(r, t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(\vec{r}, t) \quad (1.1)$$

D'après les équations de Maxwell [8] qui gouvernent la propagation d'une onde électromagnétique, l'équation de propagation du champ électrique peut donc se développer de la manière suivante (équation 1.2), où  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\vec{r}, t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(\vec{r}, t) \quad (1.2)$$

Dans le cas d'un milieu isotrope ( $\chi^{(1)}$  scalaire), l'équation 1.2 se simplifie ainsi (équation 1.3) :

$$\Delta \mathbf{E}(\vec{r}, t) - \frac{n_0^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E}(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.3)$$

Où  $n_0$ , l'indice de réfraction du matériau s'exprime, en fonction de la permittivité diélectrique relative du matériau  $\epsilon_r$ , selon l'équation 1.4 :

$$n_0^2 = 1 + \chi^{(1)} = \epsilon_r \quad (1.4)$$



### 1.2.3 Mécanismes de l'endommagement laser en régime femtoseconde

On dit qu'une impulsion est longue lorsque sa durée est supérieure au temps de relaxation du matériau irradié, c'est à dire le temps de transfert de l'énergie des électrons vers le cristal. Dans ce cas, l'équilibre thermodynamique est réalisé tout au long de l'impulsion, un dommage apparaît alors lorsque l'énergie apportée par l'impulsion laser dépasse par exemple la température fusion ou de sublimation du matériau.[5] Par opposition, une impulsion est dite courte si sa durée ne dépasse pas le temps de transfert de l'énergie entre les électrons et les ions. Dans le cas des matériaux diélectriques ce temps est de quelques picosecondes. Dans le cas des impulsions femtosecondes (impulsions courtes) il y a un découplage temporel entre l'excitation et la relaxation (figure 1.4), provoquant la formation d'un plasma. Il est d'usage, en première approche de considérer que le dommage intervient lorsque la fréquence du plasma d'électrons atteint la fréquence d'excitation du laser.

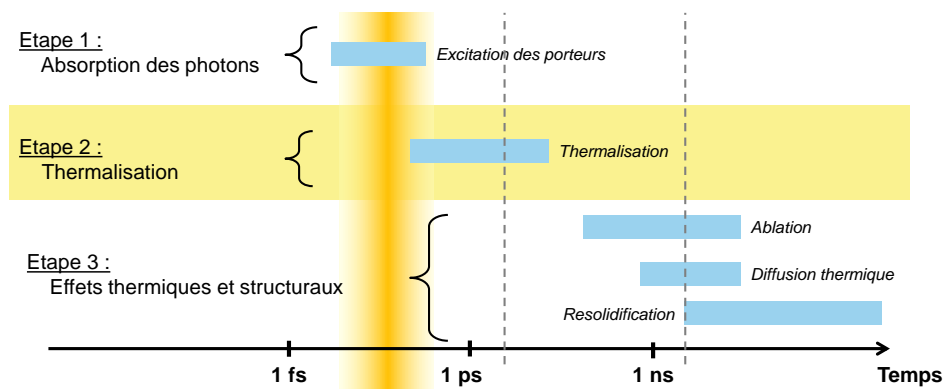


FIGURE 1.4 – Les différents mécanismes intervenant dans le phénomène d'endommagement laser au cours du temps

Pour les matériaux à bandgap élevé, la photo-ionisation linéaire n'est pas possible car le photon n'est pas assez énergétique pour exciter directement le matériau. Cependant, lorsque le matériau est soumis à une intensité élevée, des processus non-linéaires permettent son excitation en provoquant le transfert des électrons depuis la bande de valence vers la bande de conduction (figure 1.5).

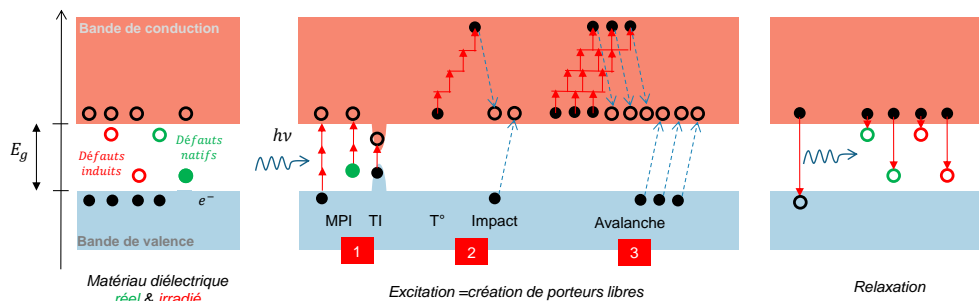


FIGURE 1.5 – Schématisation des processus électroniques intervenant au cours de l'irradiation laser

Le matériau diélectrique idéal ne possède aucun état entre sa bande de valence et sa bande de conduction. Ainsi, lorsqu'il est soumis à un champ électrique intense les électrons de sa bande de valence sont transférés vers sa bande de conduction par les phénomènes d'ionisation par

absorption multi photonique (MPI) ou d'effet tunnel (TI). L'absorption multi-photonique se produit lorsque l'énergie de plusieurs photons est transmise à un électron. Dans le cas de l'effet tunnel, l'intensité du champ électrique déforme les bandes de valence ce qui permet l'ionisation. Les électrons dans la bande de conduction continuent de gagner en énergie (thermalisation) jusqu'à exciter un électron de la bande de valence par impact. Ce mécanisme peut alors s'autoalimenter, c'est le phénomène d'avalanche électronique. Ensuite la relaxation a lieu soit par la recombinaison d'une paire électron-trou avec émission d'un photon (relaxation radiative), soit par transfert électron-phonon. Dans ce cas, l'énergie des électrons est transférée au réseau d'ions. Or ces phénomènes de relaxation peuvent parfois générer des défauts dans la maille du réseau, ce qui se traduit par la présence d'états possibles dans la bande interdite du matériau. On comprend alors que le matériau réel, et le matériau irradié d'avantage, présentent des défauts de structure et de stœchiométrie qui peuplent leur bande interdite et diminuent l'énergie nécessaire à leur ionisation. Il sont donc plus vulnérables à l'irradiation laser.

### 1.3 Tenue au flux laser des matériaux couches-minces

Lorsque l'on parle d'endommagement laser pour les matériaux couches-minces, il s'agit de phénomènes surfaciques. L'endommagement d'un matériau est défini comme sa modification irréversible sur une échelle de temps donnée et détectable par un moyen de caractérisation donné. Nous verrons dans le chapitre 2 qu'un grand nombre de paramètres, aussi bien au niveau des conditions d'irradiation qu'au niveau des caractéristiques de l'échantillon, viennent influencer la mesure de la valeur du seuil d'endommagement. Il est d'ailleurs souvent délicat de s'aventurer dans la comparaison de seuils de tenue au flux laser publiés par les différents groupes. Cependant cela donne un aperçu des ordres de grandeurs des valeurs que l'on cherche à mesurer et sensibilise aussi à la rigueur nécessaire pour réaliser les tests. Nous reportons ici des résultats de caractérisations de la résistance au flux laser de matériaux couches-minces en couches élémentaires ou bien dans des empilements.

#### 1.3.1 Matériaux métalliques

Les interactions laser/métal sont très étudiées et bien connues grâce aux travaux sur l'ablation laser. D'ailleurs, le modèle deux-températures (TTM) est fréquemment utilisé pour décrire les phénomènes d'ablation laser. Cependant la résistance au flux laser des métaux en couches minces reste très peu étudiée expérimentalement. Les quelques données expérimentales extraites de la littérature donnés dans le tableau 1.5 ne permettent pas de statuer sur une valeur de résistance au flux laser de ces métaux. On pourra simplement relever l'ordre de grandeur de quelques centaines de millijoules.

Matériau	Substrat	Épaisseur (nm)	$\lambda_{test}$ (nm)	$\tau_{test}$ (fs)	TFL (J/cm <sup>2</sup> )	Réf.
Or	Fused Silica	300	400	200	0.058	[101]
Or	-	-	800	110	0.3	[30]
Or	Fused Silica	120	890	30	0.22	[2]
Or	BK7	300	793	28	2.11	[42]
Argent	-	-	1030	500	0.094	[20]
Argent	Borosilicate	200	800	120	≈ 0.9	[11]
Argent	Fused Silica	120	890	30	0.25	[2]
Aluminium	-	-	400	100	0.10-0.12	[33]
Platine	-	-	1030	500	0.0015	[20]

TABLEAU 1.5 – Résistance au flux laser de quelques métaux en régime femtoseconde ( $\lambda_{test}$  et  $\tau_{test}$  sont respectivement la longueur d'onde et la durée d'impulsion du laser utilisé pour faire la mesure. TFL = Tenue au Flux Laser)

Les simulations numériques de WANG et GALLAIS [100] et de ITINA et al. [33] montrent que la tenue au flux laser des métaux augmente avec leur épaisseur jusqu'à une épaisseur caractéristique liée à la force de couplage électron-phonon ainsi qu'aux paramètres thermiques. Par exemple, les épaisseurs caractéristiques calculées pour le cuivre, l'argent et l'or sont respectivement 200nm, 400nm et 300nm. De plus, ces simulations ne montrent pas de dépendance de la tenue au flux laser avec la durée d'impulsion entre 50fs et 500fs.

### 1.3.2 Matériaux diélectriques

De nombreux travaux traitent de l'étude de la tenue au flux des matériaux diélectriques en couches minces. Cependant il est toujours hasardeux de comparer les différentes sources de données du fait de la grande dispersion des conditions de fabrication des échantillons et des conditions de tests. A titre indicatif et pour donner au lecteur quelques ordres de grandeur, nous avons reporté dans le tableau 1.6 les principaux résultats de la littérature. On notera le grand nombre de travaux portant sur les dépôts de matériaux couches minces réalisés par IBS et l'absence de résultats sur les couches minces de fluorures.

Matériau	Épaisseur	Techno.	$\lambda_{test}$ (nm)	$\tau_{test}$ (fs)	TFL (J/cm <sup>2</sup> )	Réf.
SiO <sub>2</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	500	4.75	[61]
SiO <sub>2</sub>	-	IBS	1030	500	4.28*	[55]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	500	3	[61]
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2λ/4 à 1064nm	IBS	1030	500	3.1*	[56]
HfO <sub>2</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	500	2.25	[61]
HfO <sub>2</sub>	-	DIBS	1030	500	1.31*	[22]
HfO <sub>2</sub>	-	RLVIP	1030	500	1.74*	[22]
HfO <sub>2</sub>	-	EBD	1030	500	1.89-2.02*	[22]
HfO <sub>2</sub>	-	EBD-IAD	1030	500	1.80*	[21]
HfO <sub>2</sub>	λ/4 à 800nm	DIBS	800	300	1	[69]
HfO <sub>2</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	50	1	[61]
HfO <sub>2</sub>	λ/4 à 800nm	EBD	800	50	1.5	[104]
HfO <sub>2</sub>	λ/4 à 800nm	DIBS	800	50	0.5	[69]
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	500	1.5	[61]
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	MS	1030	500	0.74*	[21]
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	DIBS	1030	500	1-1.05*	[21]
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	λ/4 à 800nm	IBS	800	50	0.7	[35]
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	50	0.6	[61]
Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	IBS	1030	500	0.77*	[55]
TiO <sub>2</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	500	1	[61]
TiO <sub>2</sub>	440nm	IBS	800	130	0.4	[55]
TiO <sub>2</sub>	6λ/4 à 800nm	IBS	800	100	0.5	[61]

TABLEAU 1.6 – Résistance au flux laser de quelques oxydes en régime femtoseconde ( $\lambda_{test}$  et  $\tau_{test}$  sont respectivement la longueur d'onde et la durée d'impulsion du laser utilisé pour faire la mesure. TFL = Tenue au Flux Laser. \* Seuil interne)

### 1.3.3 Miroirs haute-réflexivité

La compétition annuelle organisée à l'occasion du *Laser Damage Symposium* à Boulder portait, en 2009, sur la résistance au flux laser à 200fs d'empilements haute réflectivité.[90] Les résultats de cette compétition permettent d'annoncer une tendance sur les mécanismes d'endommagement de ce type de composants en régime femtoseconde et sur les paramètres de fabrication critiques. Ils révèlent, à travers la faible dispersion des seuils de tenue au flux laser (variation d'un facteur 5 entre la valeur la plus basse et la valeur la plus haute contre un facteur 100 observé pour des impulsions de 5ns nanosecondes sur une population d'échantillons équivalente), le comportement intrinsèque des mécanismes d'endommagement. De plus on

observe une indépendance de la tenue au flux laser vis à vis de la technologie de dépôt utilisée, de la présence d'une couche de protection (optiquement absente), du nombre de couches et de la réflectivité. Par contre il est mis en évidence que le choix du matériau haut indice et la réduction du champ électrique dans les couches de matériau haut indice sont primordiales (voir figure 1.6).

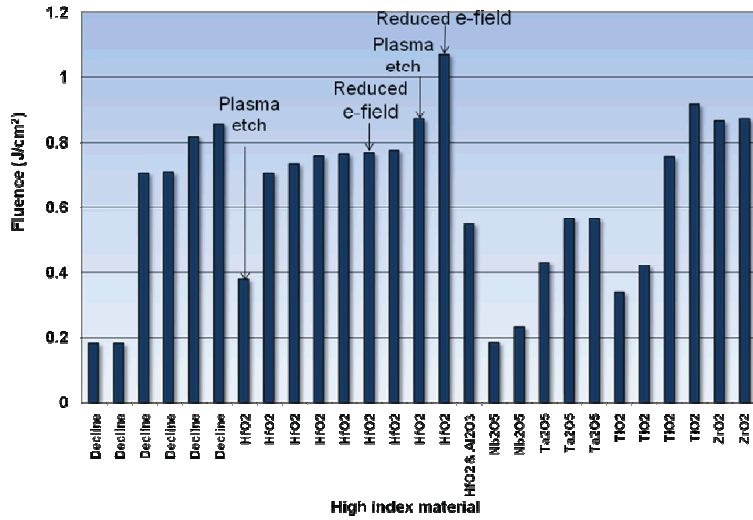


FIGURE 1.6 – Distribution de la tenue au flux laser, à 200fs, en fonction du matériau haut indice utilisé pour la conception du réflecteur.[90]

Abromavicius et al. montrent clairement l'importance de la répartition du champ électrique dans les empilements réfléchissants multi-diélectriques et notamment sa sensibilité lors de la fabrication.[1]. Dans leurs travaux, Jasapara et al. modélisent l'évolution des seuils de résistance au flux avec la durée d'impulsion en utilisant un paramètre de correction de l'intensité pour tenir compte des effets d'interférence. Ainsi, ils montrent que le seuil d'endommagement diminue lorsque l'intensité du champ électrique augmente. [35]. Et bien que Starke et al.[89] aient montré que sur des empilements TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> le seul paramètre de la répartition du champ électrique dans l'empilement ne pouvait expliquer le seuil de tenue au flux laser, un certain nombre de travaux montrent que la formule d'un empilement a une influence primordiale sur le seuil de tenue au flux laser. [1, 64, 88, 89]

L'influence de la répartition du champ électrique implique à fortiori, sous incidence, une dépendance de la tenue au flux laser vis-à-vis de la polarisation. Cependant aucune étude n'est portée à ce jour sur l'influence de la polarisation sur la tenue au flux des couches minces optiques, et les études portant sur les matériaux massifs [15, 36] n'apportent guère de réponses claires. On soulignera tout de même l'existence des travaux de Gontier et al [26] montrant une plus grande capacité d'ionisation de la polarisation linéaire par rapport à la polarisation circulaire, ainsi que la publication de Gamaly et al [25] qui met en relation la polarisation et le potentiel d'ionisation.

On ne trouve pas d'étude de l'influence de la largeur spectrale des empilements réfléchissants en régime femtoseconde. On notera donc qu'en régime nanoseconde, on observe une chute considérable de la tenue au flux laser avec l'augmentation de la largeur spectrale qui s'explique simplement par l'utilisation de matériaux de plus haut indice et donc de bandgap plus faible [19]. Cependant, toujours en régime nanoseconde, Meng et al. présentent une solution de design utilisant plusieurs matériaux de haut indice pour associer une haute tenue au flux laser avec une large bande spectrale.[57] Pour le régime femtoseconde, OLIVER et al. [73] font part de la dépendance de la tenue au flux laser avec la position des pics de surintensité du champ électrique dans des designs d'empilements compatibles avec des applications lasers ultra-brefs en terme de réflectivité et de dispersion.

Dans des travaux sur des mixtures de Ti<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>O<sub>2</sub>, Jupe et son équipe, ont montré l'efficacité

de leur principe de design d'optique à haute tenue au flux laser en régime femtoseconde (figure 1.7). D'ailleurs une augmentation de la tenue au flux laser (à 140fs et 800nm) de  $0.25\text{J}/\text{cm}^2$  pour un empilement standard quart d'onde à  $0.65\text{J}/\text{cm}^2$  pour un empilement optimisé selon le concept RISED<sup>1</sup>, au détriment de la largeur de la gamme spectrale à haute réflectivité.[37]

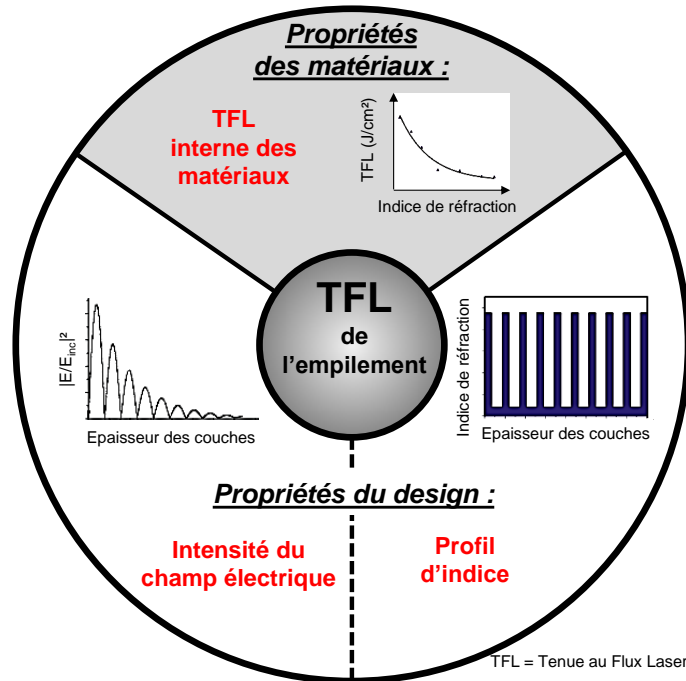


FIGURE 1.7 – Principe de conception d'optiques à haute tenue au flux laser en régime femtoseconde (adapté de [37])

1. Refractive Index StEps Down



## Chapitre 2

# Mesure de l'endommagement laser

*« Il délire, mais sa folie ne manque pas de méthode. »*

---

William Shakespeare

### Sommaire

---

<b>2.1 Métrologie</b> . . . . .	<b>28</b>
2.1.1 Le banc optique . . . . .	29
2.1.2 L'échantillon . . . . .	32
2.1.3 Procédure de test . . . . .	34
2.1.4 Le seuil d'endommagement . . . . .	36
<b>2.2 Plateformes de tests</b> . . . . .	<b>41</b>
2.2.1 500fs-1030nm . . . . .	41
2.2.2 40fs-800nm . . . . .	48
2.2.3 10fs-800nm . . . . .	51

---



## Introduction

La mesure de l'endommagement laser consiste à mettre en œuvre un dispositif (figure 2.1) permettant de déterminer avec rigueur et précision le niveau de résistance au flux laser d'un échantillon solide (composant optique, matériau massif, matériau en couches minces, etc.) dans un environnement donné. Il s'agit, d'irradier méthodiquement, à différents niveaux d'énergie (un atténuateur fixe permet de choisir la gamme de test, tandis que l'atténuateur variable permet de la balayer finement), la surface de l'échantillon avec un faisceau laser focalisé issu d'une source stable et rigoureusement calibrée. Tir après tir, un diagnostic des propriétés du faisceau est réalisé et la zone irradiée est analysée.

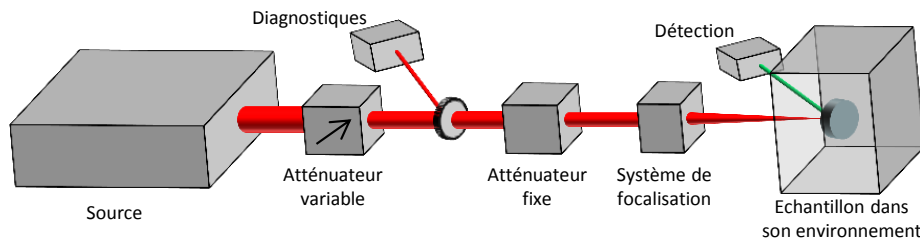


FIGURE 2.1 – Schéma général d'un dispositif de mesure de résistance au flux laser

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'inventaire des paramètres expérimentaux importants dans la caractérisation de la résistance au flux laser d'un échantillon. La norme ISO 21254 [65–68], à laquelle il sera régulièrement fait référence, décrit largement la procédure et les paramètres de tests. C'est pourquoi dans ce chapitre, l'accent sera mis sur les dispositifs de mesure dans le cas particulier des tests surfaciques d'échantillons plans dans des régimes impulsifs sub-picosecondes.

La seconde partie de ce chapitre décrit les différents dispositifs de tests développés et/ou utilisés pour obtenir les résultats présentés dans les chapitres 4 et 5, ainsi que les mesures de calibration effectuées au moment des tests.

## 2.1 Métrologie

*La grande variabilité des seuils d'endommagement laser que l'on trouve dans la littérature est due aux choix des procédés de fabrication d'une part et aux conditions de mesures d'autre part. En régime femtoseconde, les seuils de tenue au flux laser sont très faibles c'est pourquoi une très grande précision des mesures est requise. Lors d'une mesure de seuil d'endommagement laser, de nombreux paramètres interviennent. Bien que la connaissance de tous ces paramètres ne soit pas indispensable à la détermination du seuil d'endommagement, elle le devient lors de l'interprétation des mesures, comme :*

- *pour analyser les mécanismes fondamentaux de l'endommagement laser dans certaines conditions particulières,*
- *pour anticiper la résistance au flux laser dans des conditions d'applications différentes des conditions de mesures,*
- *pour comparer plusieurs mesures réalisées sur un même échantillon,*
- *pour comparer des résultats de mesures obtenus sur différents échantillons, etc.*

## 2.1.1 Le banc optique

### 2.1.1.1 Caractéristiques générales

**Stabilité de la source** La connaissance des caractéristiques de chaque l'impulsion laser est primordiale dans la réalisation d'un test de tenue au flux laser. C'est pourquoi, hormis si toutes les propriétés du faisceau sont enregistrées à chaque impulsion laser, la stabilité de la source est l'un des paramètres les plus importants dans la mesure de l'endommagement laser. En effet, il est indispensable que l'énergie, le profil spatial, le profil spectral et profil temporel restent stables, impulsion après impulsion, afin de réduire les incertitudes des mesures de diagnostic. D'autre part, l'utilisation d'une source qui reste stable au cours du temps (mois après mois, voire années après années) permet de comparer des mesures réalisées au cours de différentes campagnes de tests espacées dans le temps. Cela est indispensable lorsque l'on souhaite itérer avec la fabrication industrielle dans le cadre de développement de procédés spécifiques, étudier le vieillissement, etc. Il convient de distinguer différentes échelles de stabilité à prendre en compte, ou non, dans les calculs d'incertitude en fonction des éléments que l'on souhaite comparer :

- la vie du laser – *de quelques mois à plusieurs années,*
- la durée d'une campagne de mesure – *de quelques jours à plusieurs mois,*
- le test d'un échantillon – *de quelques minutes à plusieurs jours,*
- l'irradiation d'un site – *de quelques secondes à plusieurs minutes.*

La stabilité d'une source est mesurée en réalisant, à chaque échelle, des acquisitions statistiques des différentes caractéristiques du faisceau laser. La norme [65] précise que pour un dispositif de test utilisant une source à impulsions femtosecondes, la variation mesurée de densité puissance maximale ( $\Delta G$ ) ne doit pas dépasser  $\pm 25\%$ .

**Profil spectral** La distribution spectrale du laser régit la manière dont l'énergie va se déposer sur l'échantillon. En effet, elle définit d'une part l'énergie des photons qui vont interagir avec les matériaux à la surface de l'échantillon (voir 2.1.4.3) et d'autre part la manière dont l'énergie va se répartir dans l'échantillon (voir 3.1.2).

La distribution spectrale du faisceau est mesurée par un spectrophotomètre.

**Profil temporel** La durée et la forme de l'impulsion déterminent les mécanismes fondamentaux qui entrent en jeu dans l'interaction entre le laser et l'échantillon. La norme [65] recommande de faire la mesure avant et après chaque essai. Cependant, la mesure de la durée des impulsions ultra-courtes pouvant s'avérer longue et complexe on pourra se contenter de limiter à une mesure en début et fin de campagne de tests en vérifiant que le laser présente une stabilité suffisante à cette échelle.

Il existe plusieurs méthodes pour déterminer le profil temporel d'une impulsion ultra-courte :

- Tout d'abord, dans le cas particulier d'une impulsion limitée par transformée de Fourier, il est possible de tracer le profil temporel du faisceau en calculant la transformée de Fourier inverse du spectre.
- Dans le cas général, on distinguera les méthodes linéaires (directement sensibles au champ électrique) qui nécessitent une impulsion de référence déjà caractérisée et les méthodes non linéaires auto référencées (autocorrélation, [13, 83] FROG<sup>1</sup>, [95] SPIDER<sup>2</sup> [29]).

1. Frequency Resolved Optical Gating

2. Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstitution

**Fréquence** La fréquence de fonctionnement de la source peut d'une part avoir une influence sur les propriétés du faisceau à cause des effets thermiques qui peuvent intervenir sur les différents composants de la plateforme et d'autre part elle peut avoir une influence sur les mécanismes d'endommagement sous tirs multiples (voir 2.1.4.3) et donc sur les seuils de tenue au flux laser.

**Polarisation** L'importance de la polarisation est liée d'une part à la sensibilité de l'échantillon dans sa configuration de test (voir 3.1.2). D'autre part la polarisation peut influencer la calibration des différents prélèvements pour les diagnostics ou encore la manière d'atténuer finement l'énergie.

### 2.1.1.2 Énergie

**Systèmes d'atténuation** La source délivre une énergie donnée en fonction de son réglage, souvent optimisé en terme de stabilité. L'énergie maximale correspond donc à un état de fonctionnement de la source. Le dispositif de mesure dispose d'un premier système d'atténuation qui permet de balayer de manière quasi-continue la gamme d'énergie la plus large (de l'atténuation nulle à l'atténuation totale). Dans la plupart des cas l'énergie maximale de la source est bien supérieure à l'énergie nécessaire pour endommager l'échantillon. Il est donc intéressant de disposer en aval de l'optique de prélèvement un second système d'atténuation fixe (filtres et/ou densités) permettant de réduire la gamme de test et d'améliorer la résolution de la variation continue.

**Calibration** La calibration du dispositif d'atténuation de l'énergie se fait en deux étapes. La première phase consiste à vérifier que les caractéristiques du faisceau restent inchangées quel que soit le niveau d'atténuation (chaque composant d'atténuation est calibré individuellement et le système d'atténuation continu est calibré sur toute la gamme). La deuxième phase vise à connaître avec le maximum de précision l'énergie (E) qui est appliquée sur l'échantillon au moment du test. Pour cela plusieurs méthodes peuvent être utilisées :

- Mesurer l'énergie sur un nombre d'impulsions représentatif de la stabilité du laser à l'échelle de l'irradiation juste avant celle-ci en plaçant le détecteur devant l'échantillon,
- Calibrer un prélèvement d'énergie ( $E_{pre}$ ) sur toute la gamme de l'atténuation continue ( $A_{cont}(\theta)$ ) sans atténuation fixe ( $A_{fixe}$ ).

L'énergie est mesurée à l'aide d'un détecteur pyro-electrique ou d'une photodiode calibrée.

### 2.1.1.3 Profil spatial

**Système de focalisation** Bien que pour conserver la représentativité des conditions d'utilisation lors des tests de tenue au flux laser la taille du faisceau laser doit être la plus grande possible, afin d'atteindre des densités d'énergie suffisamment importantes pour provoquer l'endommagement laser il est souvent indispensable de focaliser le faisceau laser à la surface de l'échantillon. Comme il est précisé dans la norme [65], il faut que le système de focalisation utilisé soit adapté aux caractéristiques de la source afin de ne pas modifier les propriétés du faisceau.

D'autre part, il faut veiller à ce que le seuil d'auto-focalisation (eq. 2.5) dans l'environnement de test ne soit pas atteint. Ce phénomène peut, en effet, conduire à une surestimation de la fluence seuil. Par conséquent il est nécessaire de déterminer quelle est la puissance laser critique à partir de laquelle peut survenir l'autofocalisation. La capacité d'un faisceau laser à provoquer de l'autofocalisation peut être estimée numériquement grâce à l'intégrale-B (*breakup integral*) donnée par l'équation 2.1.

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^{Z_R} \frac{n_2}{n_0} I(z) dz \quad (2.1)$$

avec

$$Z_R = \pi \frac{\omega_1^2}{\lambda} \quad (2.2)$$

et, pour un faisceau gaussien,

$$I(z) = \frac{2\xi}{\tau\pi\omega(z)} \quad (2.3)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde du laser,  $n_0$  et  $n_2$  sont les indices de réfraction linéaire et non linéaire de propagation dans le milieu,  $Z_R$  est la longueur de Rayleigh,  $I(z)$  est l'intensité à la position  $z$ ,  $\xi$  est l'énergie de l'impulsion,  $\tau$  sa durée,  $\omega(z)$  le rayon du faisceau à la position  $z$  et  $\omega_1$  le rayon du waist. En considérant une intensité constante sur la longueur de Rayleigh alors l'intégrale-B peut se simplifier à l'équation 2.4. La limite d'autofocalisation peut être prise à environs  $B \approx 1$ . [64]

$$B = \frac{4\pi}{\lambda^2} \frac{n_2}{n_0} \frac{\xi}{\tau} \quad (2.4)$$

D'après [86], on peut considérer que le phénomène d'auto-focalisation apparaît à partir du moment où l'on atteint la puissance critique  $P_c$  exprimée selon l'équation 2.5.

$$P_c = \frac{3.77(\lambda)^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (2.5)$$

**Calibration** Lors de la calibration du profil spatial du faisceau, on veillera d'une part à confirmer que les caractéristiques du faisceau ne sont pas dégradées par le système de focalisation. D'autre part on mesurera le profil spatial, dans un plan perpendiculaire à la direction du faisceau, à différentes distances de l'optique de focalisation autour de son plan focal. Enfin on s'assura de la stabilité de la forme du faisceau à proximité du plan focal.

L'acquisition du profil spatial se fait perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau, avec une caméra sur laquelle on vient imager le plan à analyser, en utilisant éventuellement un système optique permettant d'obtenir un grandissement. Pour le calcul de la fluence maximale, on utilise la surface du faisceau à  $1/e$  dans le cas d'un faisceau parfaitement Gaussien. La norme [65] préconise une méthode qui permet de s'affranchir de la forme du faisceau à partir d'une analyse d'image en considérant une surface efficace  $S_{eff}$  définie selon l'équation 2.6.  $S_{pixel}$  représente la surface d'un pixel,  $I_{totale}$  est la somme de l'intensité de l'ensemble des pixels et  $I_{max}$  est l'intensité maximale relevée sur l'un des pixels. Il convient, pour que le calcul donne des résultats cohérents, que la taille d'un pixel soit suffisamment petite devant la taille du faisceau et que le bruit de mesure soit corrigé lors du traitement de l'image.

$$S_{eff} = \frac{S_{pixel}}{I_{max}} \times I_{totale} \quad (2.6)$$

Lorsque l'on fait un test sous incidence, il y a deux façons d'exprimer le profil spatial d'un faisceau laser sur un composant (figure 2.2). En général le lasériste, dont la référence est le faisceau laser, utilise le plan normal au faisceau que l'on appelle section droite. Le fabricant d'optique préfère se placer dans le référentiel du composant et utilise la coupe dans le plan tangent à la surface de l'optique que l'on appelle section surfacique.

Pour un angle d'incidence  $\alpha$ , la relation entre la surface efficace en section surfacique  $S_\alpha$  et la surface efficace en section droite  $S_{eff}$  est donnée par l'équation 2.7.

$$S_\alpha = \frac{S_{eff}}{\cos(\alpha)} \quad (2.7)$$

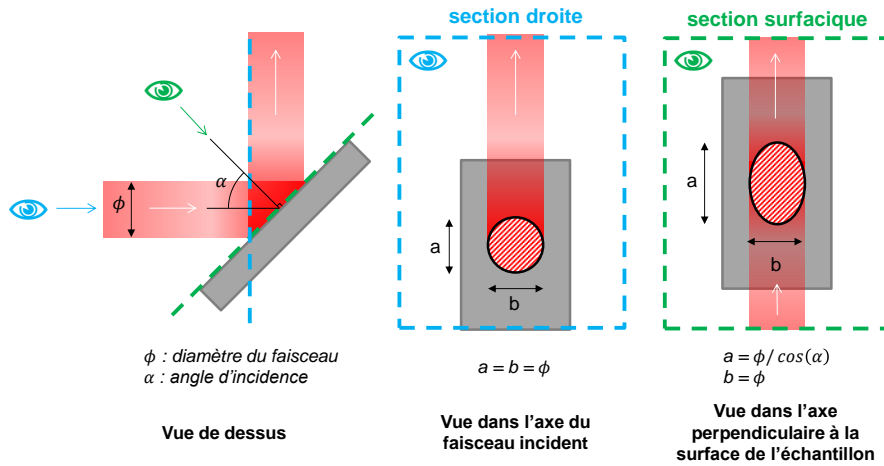


FIGURE 2.2 – Représentation schématique des sections droite et surfacique. Les surfaces considérées sont représentées par les zones hachurées.

## 2.1.2 L'échantillon

### 2.1.2.1 Propriétés intrinsèques

**Nature** Qu'il s'agisse de tester un matériau massif, une couche mince ou un empilement de couches minces, les caractéristiques de l'échantillon (profils d'indices et d'épaisseurs) vont déterminer la manière dont l'énergie va se distribuer (voir 3.1.2). Dans le cas où le but est de caractériser un matériau, il est important de concevoir un échantillon pour lequel, dans les conditions de test, le maximum d'énergie se situera bien dans le matériau d'intérêt.

Afin de comparer des mesures effectuées sur des matériaux dans différentes structures (empilements multicouches), il convient d'utiliser la notion de fluence intrinsèque ( $F_{int}$ ) définie par l'équation 2.8, où  $F_\alpha$  est la fluence surfacique mesurée (eq. 2.9) et où  $EFI_z$  est la distribution de l'intensité du champ électrique dans la profondeur de l'échantillon calculée dans les conditions d'irradiation (cf. figure 2.3). Ceci permet notamment de s'affranchir des effets interférentiels présents dans les couches minces lors de l'analyse des résultats.

$$F_{int} = F_\alpha \times \max(EFI_z) \quad (2.8)$$

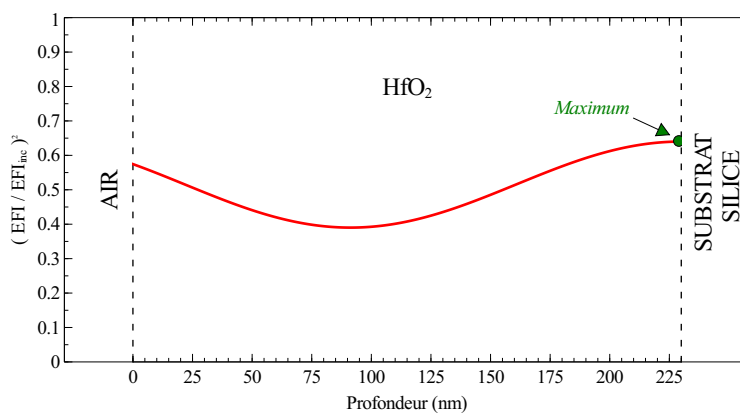


FIGURE 2.3 – Exemple de distribution du champ électrique dans une couche de HfO<sub>2</sub> d'indice 1.85 à 1030nm 0° sur un substrat en silice et dans l'air

**État de surface** La qualité intrinsèque de la surface de l'échantillon (i.e. rugosité, défauts de surface) doit être prise en compte au moment de l'analyse des résultats. En effet, les défauts de surfaces peuvent provoquer des surintensités locales du champ électrique.

**Dimension** La taille de l'échantillon doit être, d'une part et dans la mesure du possible, représentative du procédé de fabrication. D'autre part, la taille de l'échantillon doit être compatible avec l'encombrement du dispositif de mesure. Les échantillons de diamètre 50mm sont souvent bien adaptés à la mise en œuvre de tests de tenue au flux laser. L'échantillon doit être suffisamment épais pour que la face arrière, pouvant être vulnérable à l'endommagement laser, se trouve si possible hors de la zone de Rayleigh du faisceau. Enfin, pour le cas des tests en incidences normales il est recommandé d'utiliser des échantillons dont les faces ne sont pas parallèles afin d'éviter les effets d'interférences dans l'échantillon et donc le risque d'erreur d'interprétation des résultats.

### 2.1.2.2 Conditionnement, préparation et environnement

**Historique** Tous les éléments présents à la surface de l'échantillon, quels que soient leur taille, sont susceptibles d'affecter le processus d'interaction laser-matière. En régime d'impulsions nanosecondes, les problèmes de contamination ont bien été étudiés que ce soit dans le domaine spatial [79] ou pour les grandes installations laser.[3, 75]. En régime d'impulsion courte il n'existe pas encore d'étude de référence en matière d'évaluation de l'impact de la contamination sur la tenue au flux laser des couches minces optiques. Il est assez rare que l'échantillon soit testé, avant d'avoir été préalablement conditionné, dans le même environnement que celui dans lequel il a été fabriqué. Le risque de contamination doit donc être pris en compte par le référencement de l'historique de la vie de l'échantillon avant la mesure (par exemple le type et la durée du conditionnement).

**Préparation** Stuart et al. n'ont observé aucune influence la méthode de préparation de la surface des échantillons avant leurs tests. [92] Tout de même, à chaque fois que cela est possible, il est préférable de tester l'échantillon sans préparation particulière afin d'éviter que la méthode de préparation n'introduise de nouveaux paramètres. Cependant, dans le cas où l'échantillon a déjà subi des tests dans d'autres environnements, il peut-être nécessaire de le nettoyer. Dans ce cas, la procédure de nettoyage, idéalement celle préconisée par le fabricant, doit être référencée.

**Environnement de test** L'environnement général de la plateforme de test, dans lequel est manipulé l'échantillon avant sa mise en place dans le support de test et après son retrait, peut modifier l'échantillon à tester (i.e. humidité, température, propreté). D'autre part, l'environnement direct au cours du test peut être un paramètre d'étude à part entière (i.e. température, pression, gaz).

### 2.1.2.3 Positionnement

**Déplacements au cours du test** Le porte échantillon doit être en mesure de réaliser des déplacements précis et parallèles au plan de l'échantillon défini par ses axes horizontal (X) et vertical (Y). La colinéarité des déplacements est primordiale pour que la distance entre le système de focalisation et l'échantillon le long de l'axe du faisceau (Z) reste constante en tout point (x, y) de l'échantillon.

Dans le cas d'un test sous incidence ( $\alpha$ ) il convient de conserver, comme décrit précédemment, le parallélisme des axes de translation des platines avec le plan de l'échantillon car cela permet d'une part de conserver la position de l'échantillon par rapport au plan focal et de conserver l'indépendance de la position des sites vis à vis de l'angle d'incidence. La précision de l'angle

d'incidence est importante car elle intervient dans le calcul de la fluence surfacique (eq. 2.9) et peut avoir une influence sur la manière dont l'énergie va se répartir dans l'échantillon (voir 3.1.2).

$$F_{\alpha} = \frac{E}{S_{eff}} \times \cos(\alpha) \quad (2.9)$$

**Positionnement par rapport au plan focal** Pour connaître la surface de la zone irradiée, il est important que l'échantillon soit positionné avec précision sur l'axe du faisceau. Or le seul plan qu'il est possible de définir avec précision est le plan focal du dispositif de focalisation. Par exemple, la position de l'échantillon dans le plan focal peut être déterminée, par la méthode "Z-Scan", en effectuant plusieurs séries d'irradiation sur différents sites avec des énergies à peine supérieures au seuil d'endommagement des positions (Z) successives (figure 2.4). Ainsi grâce au déterminisme du régime femtoseconde seuls les sites les plus proches du plan focal, sur lequel la fluence est la plus élevée, vont s'endommager. Ensuite, en diminuant progressivement l'énergie, on peut converger donc vers le plan focal.

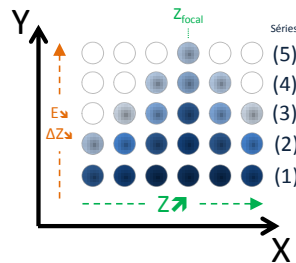


FIGURE 2.4 – Schématisation de la procédure "Z-Scan" permettant un positionnement précis de l'échantillon dans le plan focal du dispositif de focalisation

## 2.1.3 Procédure de test

### 2.1.3.1 Zone irradiée

**Test standard** Une mesure de tenue au flux laser doit rendre compte des hétérogénéités de l'échantillon testé à travers une mesure statistique. Pour cela, plusieurs sites sur l'échantillon sont irradiés de manière identique. La zone de test doit être suffisamment étendue pour que le test soit représentatif de la taille de l'échantillon et la distance entre deux sites irradiés doit être choisie, en rapport avec la taille du faisceau, afin qu'il n'y ait pas de recouvrement entre les zones irradiées et que chaque site soit irradié de manière indépendante des irradiations précédentes. En effet, les résultats des tests peuvent être différents suivant la quantité d'énergie préalablement déposée à cause des possibles effets d'incubation (modification de l'échantillon sous l'effet d'une impulsion laser qui entraîne une modification de son comportement lors de l'interaction avec les impulsions suivantes). Aussi, en cas de dommage préalable catastrophique d'un site voisin, il ne faut pas que des débris viennent interagir avec le faisceau et influencer sur l'endommagement en générant par exemple des centres absorbants ou des surintensités de champ électrique. Cette grandeur doit être déterminée en fonction de la taille de la zone irradiée ainsi que de la nature de l'échantillon (selon les prédispositions du couple laser-échantillon à former des débris). La norme [65] recommande une distance inter-site supérieure à trois fois le diamètre de la tâche laser.

**Test raster-scan** L'objectif d'un test raster-scan est d'irradier une surface importante de l'échantillon à tester afin d'en déduire une densité de défaut à fluence donnée [43]. Dans le



cadre d'un test raster-scan, on force le recouvrement des irradiations afin de balayer de manière continue toute la zone de test. Ce type de test, qui augmente considérablement l'aspect statistique de l'irradiation présente l'avantage d'être représentatif de l'uniformité de l'échantillon. Par contre la mesure raster-scan présente le désavantage d'être plus longue à réaliser et plus difficile à interpréter. En effet, il faut tenir compte du recouvrement des irradiations pouvant provoquer des effets de fatigue ou de propagation des dommages (figure 2.5). On préférera utiliser un mode de test raster-scan pour vérifier la résistance au flux laser ou pour révéler les défauts localisés à une fluence donnée plutôt que pour déterminer le seuil d'endommagement d'un échantillon.

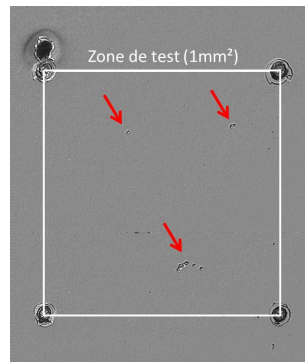


FIGURE 2.5 – Exemple d'une zone de  $1\text{mm}^2$  testée en mode raster-scan. On y observe des endommagements localisés (indiqués par les flèches)

### 2.1.3.2 Irradiation

La première étape du test est le choix du mode d'irradiation de chaque site. En fait, le mode est choisi en fonction des informations que l'on souhaite obtenir sur l'échantillon. Au cours d'un test, tous les sites sont irradiés de la même manière. Les différentes méthodes d'irradiation sont brièvement décrites ci-dessous :

**1:1** “*One-on-one*” : Ce mode d'irradiation consiste à faire interagir l'échantillon qu'avec une impulsion unique (figure 2.6a). Cette méthode, sans doute la plus simple à interpréter, permet de tester la sensibilité d'un échantillon, dans un état donné, à une impulsion laser. L'inconvénient de ce type de test est qu'il ne rend pas compte du comportement d'un matériau dans des conditions *normales* d'irradiation, c'est à dire une succession d'impulsions. Le test 1:1 n'ajoute pas de paramètres supplémentaires à l'analyse.

**S:1** “*S-on-one*” : Cette procédure de tests est la plus représentative des conditions *normales* d'irradiation et permet de rendre compte de l'effet de fatigue du matériau. Ce mode d'irradiation consiste à faire interagir l'échantillon avec un nombre (S) d'impulsions successives à fluence fixée (figure 2.6b). L'interprétation des résultats de mesure se complexifie car chaque impulsion interagi avec un matériau dont les propriétés ont potentiellement changé lors de l'interaction avec l'impulsion précédente. Pour analyser un test S:1, la fréquence (voir 2.1.4.3) et le nombre total d'impulsions (voir 2.1.4.3) doivent être pris en compte. La fluence associée au site irradié est la fluence moyenne de l'ensemble des impulsions.

**R:1** “*R-on-one*” : Cette méthode, consiste à irradier l'échantillon avec une succession d'impulsion laser d'énergie croissante (figure 2.6c). Son intérêt principal est de pouvoir affecter



à chaque site testé un seuil de résistance au flux laser, ce qui est particulièrement utile en cas d'une surface de test réduite. Elle permet en outre de mettre en évidence d'éventuels effets de conditionnement (amélioration de la TFL par des pré-irradiations). La mise en œuvre d'un test R:1 nécessite la gestion d'un nombre important de paramètres (fréquence, fluence de départ, incrément de fluence, nombre d'impulsions) ce qui en complexifie l'analyse. La fluence associée au site irradié ( $F$ ) est obtenue à partir de la fluence maximum mesurée au cours de l'irradiation.

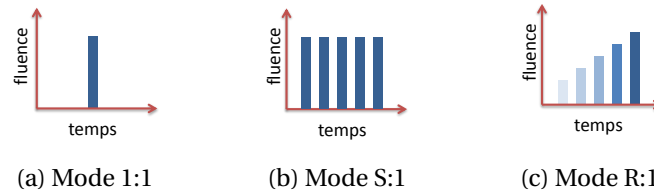


FIGURE 2.6 – Représentation schématique de l'irradiation d'un site pour les différents modes de test.

### 2.1.3.3 Gamme de fluence

Pour déterminer un seuil, il faut être en mesure de réaliser un encadrement du critère d'endommagement (voir 2.1.4.1). Pour cela il faut irradier des séries de sites avec des valeurs discrètes de fluence dont l'intervalle permet de recouvrir l'erreur de détermination du seuil et dont la gamme inclut des valeurs en dessous et au dessus du seuil. On préférera choisir une gamme de test suffisamment grande en dessous du seuil pour sécuriser les valeurs et en dessus du seuil pour interpréter les mécanismes d'endommagement (analyse des morphologies d'endommagement).

## 2.1.4 Le seuil d'endommagement

### 2.1.4.1 Détection des dommages

**Critère d'endommagement** En plus des conditions dans lesquelles est effectué le test et la procédure utilisée, la méthode d'analyse de l'échantillon influe sur la valeur du seuil. En effet, d'une part le critère d'endommagement est défini arbitrairement en fonction de l'application visée et d'autre part le choix de l'instrument peut limiter, par sa résolution, la détection du dommage (figure 2.7).



FIGURE 2.7 – Sites irradiés, observés par différentes techniques

Pour un matériau, on peut définir l'endommagement laser comme l'apparition d'une modification irréversible du matériau sous irradiation. Les difficultés de cette définition sont l'interprétation des échelles à laquelle on considère l'irréversibilité de la modification et par quel moyen on peut la détecter. Dans le cas, d'un composant optique, on peut compléter la définition en précisant que la modification désigne une transformation du composant optique conduisant à la dégradation irréversible de sa fonction optique, on accepte alors que le composant présente des dommages structurels irréversibles dans la mesure où ceux-ci n'affectent pas sa fonction. Ensuite en fonction de l'utilisation du composant optique on peut fixer un seuil plus ou moins élevé pour

définir la dégradation acceptable de la fonction optique. Il convient donc, pour fixer un critère d'endommagement, de définir les propriétés dont on va chercher à détecter le changement (i.e. réflexion, transmission, diffusion, déphasage) puis de définir un seuil (i.e. dimension, niveau) à partir duquel on peut considérer qu'il y a modification.

Dans le cadre de ces travaux, nous définissons un dommage comme toute modification de la zone irradiée, irréversible à l'échelle de la durée d'un test et visible au microscope optique (en mode Brightfield, Darkfield ou Nomarski de x5 à x50).

**Détection in-situ** La détection in-situ a pour but de comparer à différents moments une surface de test. Le premier intérêt de la détection in-situ est l'automatisation des tests qui permet d'une part d'interrompre l'irradiation après l'apparition du premier dommage dans le cas de test à tirs multiple réduisant ainsi le risque de pollution et d'autre part d'améliorer la répétabilité de la détection, mais cela permet également, si la méthode est suffisamment résolue temporellement, une étude des phénomènes physiques fondamentaux intervenant au moment de l'irradiation. La détection in-situ permet de visualiser l'évolution des dommages tir après tir et de comparer précisément une même surface avant et après l'irradiation.

De nombreuses méthodes sont utilisées pour la détection de dommage in-situ. [87] Parmi celles-ci on peut citer la microscopie optique (champ clair, champ sombre, Nomarski), [24, 84, 85, 93], la mesure de phase, la mesure du profil spatial, [28], la détection par diffusion lumineuse, [54, 77, 94] l'observation des phénomènes de diffraction, la photoacoustique, [53, 74, 76, 80] la photothermie, la fluorescence, les mesures spectrales, la détection des ondes de chocs, la détection des rayonnements (plasma ou thermique), etc. A noter que certaines techniques permettent de détecter des événements qui ne sont pas nécessairement synonymes de modification irréversibles de l'échantillon.

Les inconvénients de la détection in-situ sont que la méthode utilisée peut réduire la vitesse d'exécution d'un test en cas de traitement trop lent, qu'il est difficile de cumuler les méthodes à cause de l'encombrement, que les méthodes ne sont pas nécessairement universelles et ne permettent donc pas de tester tous les types d'échantillon. Enfin, la détection in-situ peut conduire à de fausses détections (éjection d'une poussière par exemple).

**Détection ex-situ** A la différence de la détection in-situ, le principe de la détection ex-situ est de comparer la zone irradiée avec sa proche périphérie ou avec un état de l'échantillon avant test. Elle nécessite donc un référencement précis de la position des sites irradiés. Il est toutefois possible de comparer une surface avant et après irradiation dans le cas où la méthode utilisée permet de réaliser une cartographie avant l'irradiation. L'avantage de la détection ex-situ est que l'on peut utiliser plusieurs techniques de détection avec des capacités de détection élevées même si l'encombrement de l'instrumentation est important.

La plupart des techniques citées précédemment pour la détection in situ sont utilisables en détection ex-situ dans la mesure où elles ne concernent pas la détection d'effet transitoire. A ces techniques, on peut ajouter la microscopie électronique à balayage, la microscopie à force atomique, la microscopie confocale, etc.

La détection ex-situ présente cependant l'inconvénient d'être souvent longue et difficile à mettre en œuvre (notamment au niveau du repérage des sites). De plus l'analyse ex-situ rend délicate la répétabilité du protocole d'analyse.

#### 2.1.4.2 Expressions et représentations des résultats

**Représentation seuil** A l'issue d'un test (détection incluse) l'analyse associe pour chaque site irradié une valeur de fluence à un état binaire d'endommagement. L'ensemble des valeurs sont ensuite regroupées par niveau (i.e. incréments de l'atténuateur continu au cours du test). A partir

de ces données, il est possible de tracer la courbe de probabilité d'endommagement laser (P) en fonction de la fluence (figure 2.8).

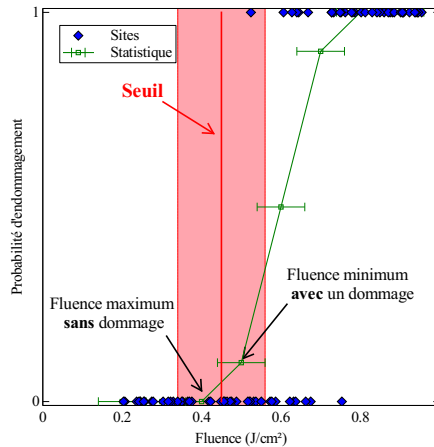


FIGURE 2.8 – Exemple de courbe de probabilité d'endommagement

Ensuite, le seuil de résistance au flux laser de l'échantillon testé ( $F_{th}$ , eq. 2.10) est défini comme la moyenne entre la fluence la plus haute sans dommage ( $F_{P=0\%}$ ) et la fluence la plus basse sans dommage ( $F_{P>0\%}$ ). Les incertitudes sur la valeur seuil ( $\Delta^- F_{th}$  et  $\Delta^+ F_{th}$ ) sont données par les équations 2.11 et 2.12 où  $\Delta^+ \max(F_{P=0\%})$  et  $\Delta^- \min(F_{P>0\%})$  sont les incertitudes sur la valeur des fluences correspondant respectivement à la fluence la plus élevée sans dommage et à la fluence la plus faible ayant une probabilité d'endommagement non nulle.

$$F_{th} = \frac{\max(F_{P=0\%}) + \min(F_{P>0\%})}{2} \quad (2.10)$$

$$F_{th} - \Delta^- F_{th} = \max(F_{P=0\%}) - \Delta^- \max(F_{P=0\%}) \quad (2.11)$$

$$F_{th} + \Delta^+ F_{th} = \min(F_{P>0\%}) + \Delta^+ \min(F_{P>0\%}) \quad (2.12)$$

La valeur du déterminisme  $D_F$  d'un échantillon est définie par l'équation 2.13. On considérera qu'un comportement est déterministe si  $D_F$  reste inférieur au seuil défini par l'équation 2.14.

$$D_F = \min(F_{P=100\%}) - \max(F_{P=0\%}) \quad (2.13)$$

$$D_F < \Delta^- F_{th} + \Delta^+ F_{th} \quad (2.14)$$

**Effets d'incubation et de fatigue** Lors de l'irradiation laser, si aucun dommage macroscopique n'apparaît, le matériaux peut subir une modification de sa configuration électronique ayant comme conséquence de changer sa résistance au flux laser. Les tests de tenue au flux en multi-tirs permettent de mettre en évidence ces effets d'incubation et de fatigue. La représentation des résultats d'un tests en courbe de dégât est adapté à ce type de tests (figure 2.9). En effet, ce graphe permet de bien mettre en avant l'évolution de la résistance au flux laser de l'échantillon en fonction du nombre d'impulsions

**Densité de dommage** Le principal inconvénient des tests de tenue au flux laser en faisceau focalisé est qu'il ne permettent pas d'être totalement représentatif d'un faisceau pleine taille. C'est pourquoi certains tests sont menés en scannant la surface d'un échantillon (raster scan) avec un faisceau focalisé. Pour ce type de test c'est la représentation en densité de dommage qui est pertinente (figure 2.9).

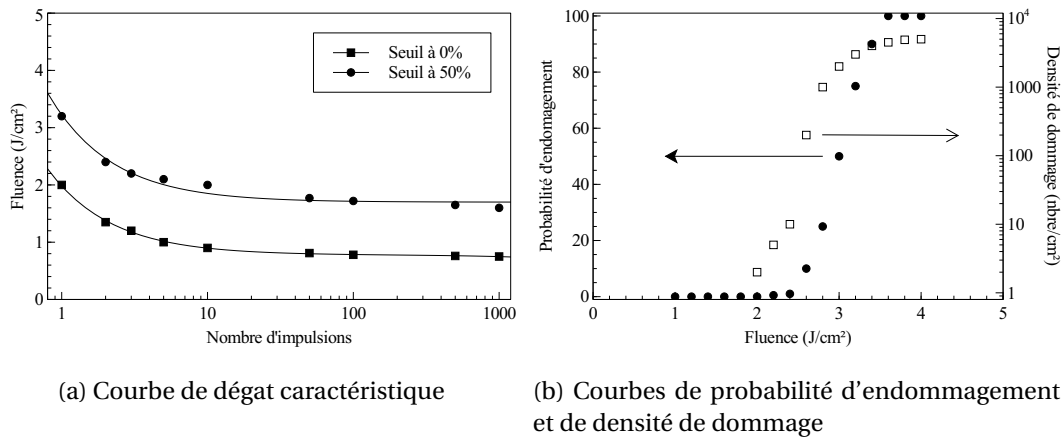


FIGURE 2.9 – Exemples de représentation des résultats de tests de tenue au flux laser

### 2.1.4.3 Lois d'échelle

Pour la détermination des seuils d'endommagement laser, les lois d'échelles ont une grande importance. En effet, chaque système laser est unique et il n'est pas toujours économiquement viable de monter sa propre plateforme d'endommagement en amont de l'installation d'un système et il est difficile voire impossible de trouver une plateforme de test existante et fiable qui corresponde à 100% au besoin. Il est donc incontournable d'utiliser des lois d'échelles pour extrapoler des valeurs mesurées. Cependant la plus grande précaution doit être prise pour utiliser ces lois d'échelles. La règle principale pourrait être : la loi est applicable toutes choses égales par ailleurs. Mais cela est rarement le cas.

**Environnement** La plupart des plateformes de tests de tenue au sont installées dans des laboratoires, dans des salles dans lequel l'environnement est contrôlé. Cependant, il est rare de trouver des conditions de test parfaitement représentatives en terme d'environnement de l'application visée. En particulier, il existe peu de plateformes proposant des tests sous vide.

Peu d'études ont été consacrées à l'étude de l'effet du vide sur l'endommagement laser. Parmi celles-ci on signalera les travaux de D. N. Nguyen et al sur  $\text{HfO}_2$  [70] et B. Bussière et al. sur cristaux de  $\text{TiSa}$  [9], au cours desquels il a été montré que la tenue au flux laser n'est par perturbée par le vide en cas de tests à tir unique mais qu'elle l'est en cas de tir multiple.

Les principaux effets notables des tests sous vide sont les problèmes de contamination (largement étudiés par ailleurs pour les applications spatiales [79] et également la modification des propriétés optiques des échantillons due aux phénomènes de désorption s'ils sont poreux.

**Échantillon** Pour comparer des matériaux entre eux il convient d'une part d'utiliser la fluence intrinsèque (eq. 2.8) en utilisant, pour le calcul de la répartition du champ électrique dans l'échantillon, des paramètres de simulation identiques et en accord avec les conditions de mesure.

**Durée d'impulsion** L'influence de la durée d'impulsion de la tenue au flux laser est directement liée à la prédominance des différents mécanismes d'interaction. STUART et al. [92] ont mis en évidence expérimentalement deux régimes distincts selon que l'impulsion est plus courte ou plus longue que 10ps. Ils montrent que pour les impulsions de durées supérieures à 10ps, l'interaction, dominée par les phénomènes de diffusion thermique implique une loi d'échelle en  $\tau^{0.5}$ . Pour les impulsions inférieures à 10ps, MERO et al. [61] ont établi une loi d'échelle en  $\tau^{0.3}$  à partir de données expérimentales sur des couches diélectriques et des modèles d'ionisation.

**Taille du faisceau** Il n'y a pas d'étude démontrant l'influence la taille du faisceau ( $>10\mu\text{m}$ ) en régime femtoseconde [37]. Il est cependant attendu de manière concevable que le seuil de tenue au flux laser a une probabilité de diminuer avec augmentation de la taille du faisceau. En effet, la probabilité de rencontre entre le faisceau et les défauts ponctuels liés à l'hétérogénéité structurelle de l'échantillon testé augmente avec l'augmentation de la taille du faisceau.

**Longueur d'onde** La longueur d'onde, ou l'énergie des photons est déterminante dans le processus de photo-ionisation. Au premier ordre on peut décrire une croissance linéaire de la résistance au flux laser avec la longueur d'onde.[25]

**Fréquence et nombre de tirs** Lorsque des matériaux diélectriques sont soumis à une irradiation à impulsions multiples, une diminution de la tenue au flux laser est observée avec l'augmentation du nombre d'impulsions, même si on peut rencontrer quelques exceptions.[14] Comme c'est une limitation majeure pour les applications laser de haute puissance, cet effet a été largement étudié et documenté pour différentes conditions d'irradiation (impulsion nano-, pico- et femto-seconde) et des matériaux de natures diverses : verres, [23, 38, 58, 98] cristaux,[27, 58] métaux,[45] polymères, [72] ou couches minces.[59] Ce phénomène est souvent référencé comme "fatigue" [10] ou "incubation" [81] suggérant que les modifications du matériau apparaissent sous l'irradiation laser jusqu'à l'apparition d'un dommage catastrophique. Ces modifications peuvent être macroscopiques (accumulation de chaleur,[45] création de contraintes, et formations de ripples[7]) ou microscopiques (piégeage de charge, et défaut ponctuel) et il n'est souvent pas possible de détecter ces changements avant l'apparition du dommage. Le processus physique peut être "intrinsèque" (processus linéaire photo-induit [16] et ionisation non linéaire[59]) ou "extrinsèque" (inclusion dans le matériaux [40] et contamination[4, 79]). Cela peut également être la conséquence d'un artefact de mesure lié à une fluctuation du laser[99].

## 2.2 Plateformes de tests

Dans cette partie, nous décrivons les caractéristiques des bancs de tenue au flux laser développés au cours de l'étude. Nous nous référerons à cette partie dans les chapitres suivants à chaque fois que des résultats seront présentés afin que chaque seuil d'endommagement soit associé à l'ensemble des paramètres qui ont permis sa mesure et son calcul.

### 2.2.1 500fs-1030nm

La plateforme "sub-ps" de l'Institut Fresnel existe depuis 2006 [50]. Elle a été développée avec l'objectif d'obtenir la meilleure répétabilité possible des conditions de mesure. La source laser est un système commercial extrêmement stable. Des tests sont régulièrement effectués sur des échantillons de référence et montrent une variation des seuils de tenue au flux laser inférieure à 7% sur une échelle de temps de plusieurs années.[21]

#### 2.2.1.1 Plateforme de tests normalisés

**Montage expérimental** La plateforme d'endommagement laser utilise une source commerciale *Amplitude Systèmes, S-pulse HP*. Le banc de test et sa source sont installés dans une même salle régulée en température et maintenue propre. Pour optimiser sa stabilité, la source reste en fonctionnement lors des campagnes de mesures (typiquement plusieurs semaines). Le dispositif expérimental tel qu'il a été utilisé au cours de ces travaux<sup>3</sup> est schématisé figure 2.10.

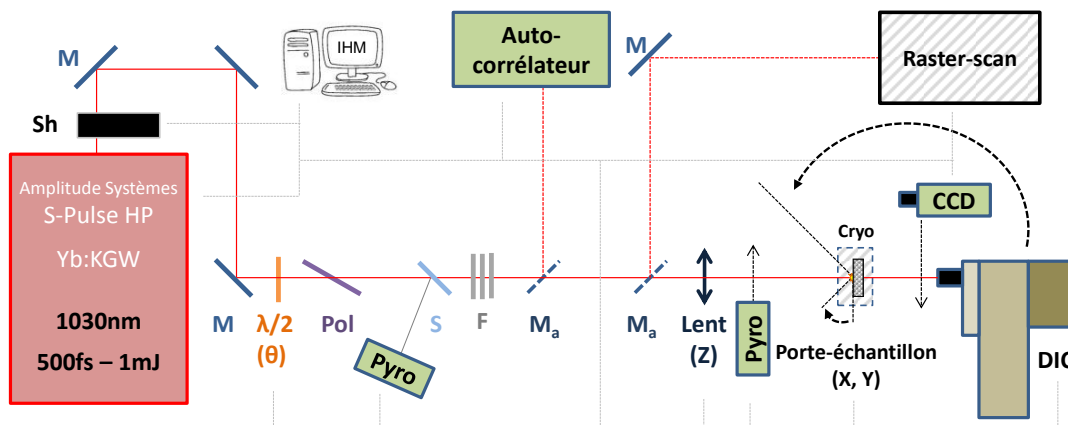


FIGURE 2.10 – Schéma de la plateforme d'endommagement sub-ps de l'Institut Fresnel. Légende : **Sh**, Obturateur; **M<sub>(a)</sub>**, Rmax @1030nm 45°(amovible); **λ/2**, lame demi-onde; **Pol**, Polariseur; **S**, lame de prélèvement; **F**, Roues à filtres; **Lent**, Lentille de focalisation ( focale 250nm); **CCD**, Analyseur de faisceau; **Pyro**, Détecteur pyro-électrique; **DIC**, Microscope Nomarski; **IHM**, Logiciel de pilotage automatique.

Lors de nos campagnes de mesures, nous avons utilisé la source laser à une fréquence de 10Hz avec la durée d'impulsion la plus courte possible ( $\approx 500fs$ ). L'énergie maximale de la source est de 1mJ. L'obturateur est synchronisé avec le laser de manière à pouvoir extraire une impulsion unique. Ainsi des tests 1:1, S:1 et R:1 ont pu être réalisés. Une lame d'onde motorisée, associée à un polariseur, permet la variation d'énergie au cours d'un test. Un jeu de filtres permet de réduire la gamme d'énergie pour le test. Une lame séparatrice renvoie un extrait d'environ 5%

3. La durée d'impulsion de la source est réglable de 300fs à 3ps et peut être réduite à 70fs grâce à un module de compression. La fréquence peut être réglée de 10Hz à 100kHz. Enfin la plateforme dispose également d'un doubleur/tripleur de fréquence permettant de réaliser des test d'endommagement aux longueurs d'onde 515nm et 343nm.

de l'énergie totale vers un détecteur pyro-électrique calibré par rapport à l'énergie totale reçue sur l'échantillon. Le faisceau est focalisé sur l'échantillon par une lentille plan-convexe de focale 150mm montée sur une platine motorisée permettant son déplacement selon l'axe du faisceau. L'échantillon est placé sur un support pouvant effectuer des translations verticales et horizontales. Un microscope Nomarski avec un grossissement x50 est utilisé pour la détection in-situ. Plus de détail sur la configuration du banc peuvent être trouvés dans les travaux de MANGOTE et al. [52].

Afin de réaliser des mesures dans des conditions de température et de pression différentes des conditions ambiantes, un cryostat a été installé sur le porte-échantillon. Le dispositif est décrit au paragraphe 2.2.1.2. La plateforme dispose également d'un module de test raster-scan (voir paragraphe 2.2.1.3).

La détection des dommages se fait à l'aide d'un microscope Olympus utilisé en champ clair, champ sombre ou contraste interférentiel (mode Nomarski), avec des objectifs de différents grossissements (x20, x50, x100). Pour les analyses effectuées sur cette plateforme, un dommage est défini comme une modification visible du site irradié à travers ce microscope quelle que soit sa taille.

Les tests de tenue au flux laser peuvent être réalisés de manière automatique grâce à un logiciel de pilotage (figure 2.11). Dans le cadre de ces travaux nous avons amélioré l'ergonomie du programme et ajouté les fonctionnalités permettant la réalisation de tests S:1 et R:1.

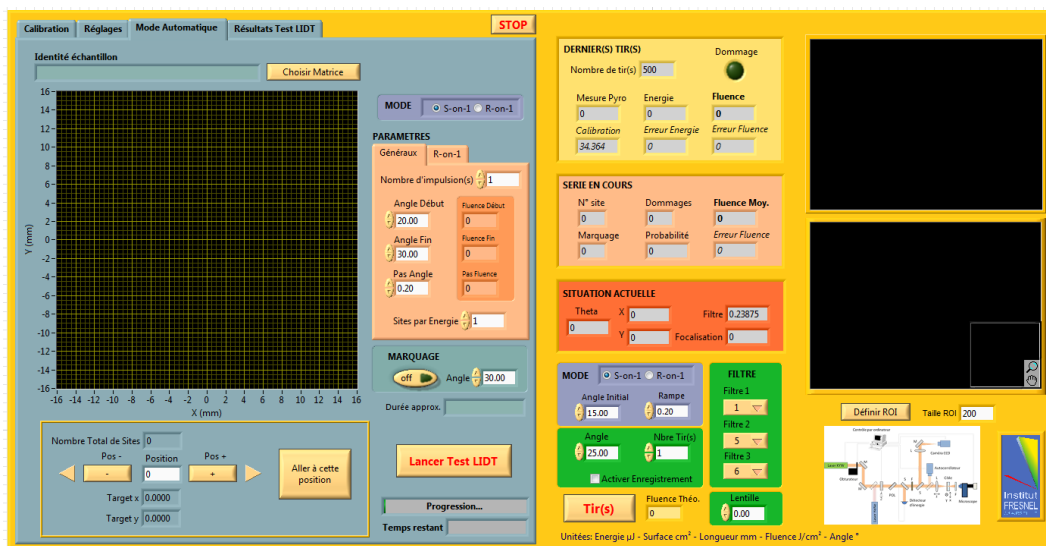


FIGURE 2.11 – Capture d'écran de l'interface de pilotage de la plateforme de tests d'endommagement laser de "sub-ps" de l'Institut Fresnel

**Calibrations de la plateforme** Le profil spectral de l'impulsion n'est mesuré qu'après les interventions de maintenance du laser. Le profil temporel est mesuré, avant chaque campagne de test, à l'aide d'un autocorrélateur (AVESTA ASF 70 fs – 3 ps). La durée de l'impulsion est calculée à partir de la largeur à mi-hauteur en y appliquant un ajustement correspondant à un modèle de type sécante hyperbolique.

Le profil spatial du faisceau focalisé est mesuré à l'aide d'une caméra CCD 14 bits (Dataray WinCamD UCD-23) munie d'un vidéo-microscope avec un objectif x10.

L'extraction de l'énergie et la surface effective dans le plan focal de la lentille sont calibrées avant et après chaque campagne. Le parallélisme de la surface d'intérêt de l'échantillon par rapport aux directions du mouvement des platines est réglé par autocollimation en incidence normale.



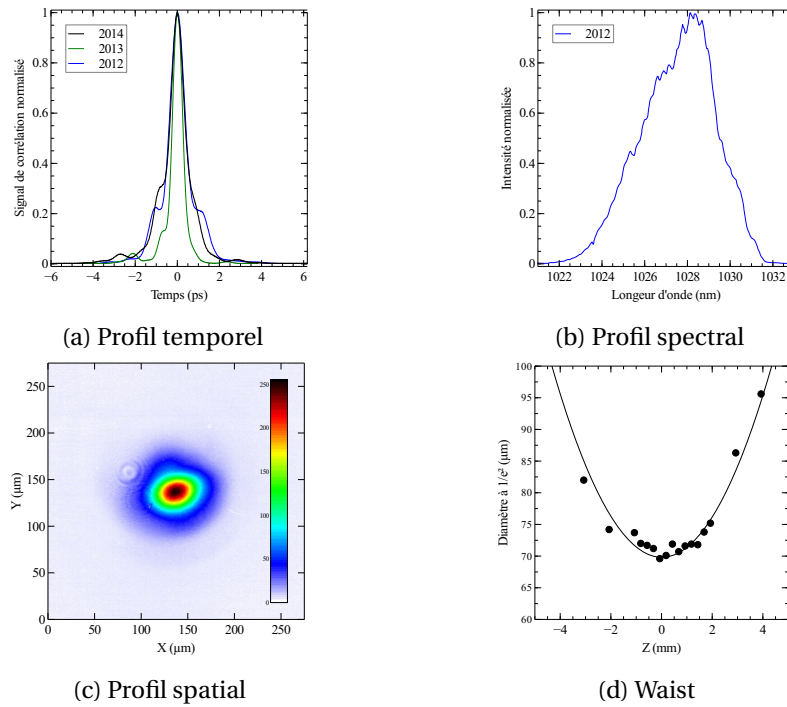


FIGURE 2.12 – Données de calibration de la plateforme “sub-ps” (500fs-1030nm)

Avec une énergie maximale de 1mJ, et une durée d’impulsion minimale de 350fs, on atteint une puissance de 2.8TW correspondant à 50% de la puissance critique d’auto-focalisation calculée, selon l’équation 2.5, dans l’air ( $n_2 = 3.10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) pour une longueur d’onde de 1030nm.

**Calculs d’incertitudes** Les incertitudes absolues et relatives sur les valeurs de seuils d’endommagement mesurés sur cette plateforme sont calculées à partir des erreurs systématiques dues aux précisions des instruments de mesures ainsi qu’à la stabilité de la source laser. Le détail des incertitudes est reporté dans le tableau 2.1.

	Absolue	Relatif
Fluence	<b>8.7%</b> -Énergie : 4% -Surface : 4.4% -Incidence : 0.3%	<b>3.7%</b> -Énergie : 1% -Surface : 2.7%
Énergie	<b>4%</b> -Mesure : 3% -Stabilité : 1%	<b>1%</b> -Stabilité : 1%
Surface	<b>4.4%</b> -Position : 1.7%, -Mesure : 1.7% -Stabilité : 1%	<b>2.7%</b> -Position : 1.7% -Stabilité : 1%
Durée	<b>1.4%</b> -Mesure : 0.4% -Stabilité : 1%	<b>1%</b> -Stabilité : 1%

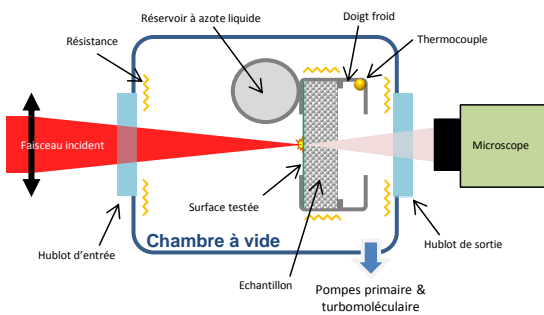
TABLEAU 2.1 – Incertitudes



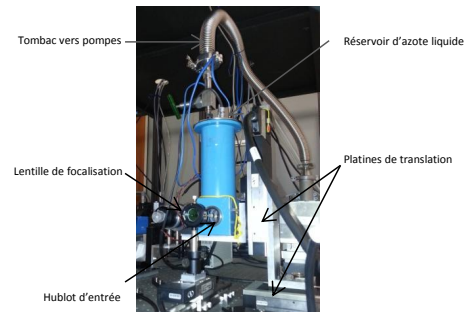
Une incertitude absolue inférieure à 10% montre que la plateforme est d'une très grande précision. L'incertitude relative entre 3% et 4% en fait une plateforme remarquable pour le développement de procédés de fabrication par itération entre production et caractérisation d'échantillons.

### 2.2.1.2 Chambre à vide cryogénique

**Montage expérimental** Pour réaliser des tests d'endommagement laser sous vide et à basse température, nous avons adapté, sur le porte échantillons de la plateforme de tests standards. Le cryostat (figure 2.13), utilisé à l'origine pour faire des mesures spectrales, permet de placer l'échantillon sous vide, à environ  $10^{-4}$  mbar, grâce à une pompe turbomoléculaire et d'en contrôler la température par conduction, entre  $-170^{\circ}\text{C}$  et  $100^{\circ}\text{C}$ , grâce à un petit réservoir d'azote liquide et une résistance chauffante. Le cryostat dispose de deux hublots en silice chauffés par des résistances pour éviter toute condensation.



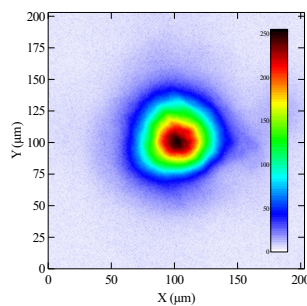
(a) Schéma de l'intérieur du cryostat



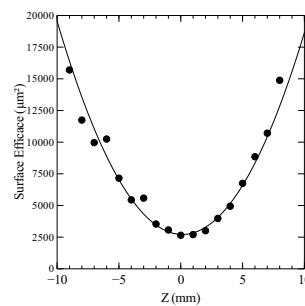
(b) Photo du cryostat sur le porte-échantillon motorisé

FIGURE 2.13 – Schéma de l'implantation de la chambre cryogénique sur le porte échantillon de la plateforme "sub-fs" afin d'y réaliser des mesures sous vide et en température

**Calibrations** Les caractéristiques du faisceau avec le dispositif du cryostat sont considérées comme identiques à la calibration standard. L'énergie et le profil spatial (figure 2.14) sont recalibrés, à l'air et à travers le hublot d'entrée. Les valeurs absolues obtenues à l'issue des tests réalisés dans cette configuration sont à prendre avec précaution car il y a de l'autofocalisation à travers le hublot d'entrée qui introduit une erreur dans le calcul de la fluence seuil.



(a) Profil spatial du faisceau dans le cryostat



(b) Waist dans le cryostat

FIGURE 2.14 – Données de calibration du cryostat sur la plateforme "sub-ps" (500fs-1030nm)

**Incertitudes** Le bilan des incertitudes de mesure (tableau 2.2) dans cette configuration est nettement dégradé par rapport à la configuration standard car d'une part la chambre à vide ne permet pas de lier de manière solide l'échantillon aux platines de translation et d'autre part la présence d'un hublot entre la lentille de focalisation et l'échantillon ne permet pas une calibration optimale de la plateforme.

	Absolue	Relatif
Fluence	<b>17.4%</b> -Énergie : 4% -Surface : 13.1% -Incidence : 0.3%	<b>12.4%</b> -Énergie : 1% -Surface : 11.4%
Énergie	<b>4%</b> -Mesure : 3% -Stabilité : 1%	<b>1%</b> -Stabilité : 1%
Surface	<b>17.1%</b> -Position : 10.4%, -Mesure : 1.7% -Stabilité : 1%	<b>11.4%</b> -Position : 10.4% -Stabilité : 1%
Durée	<b>1.4%</b> -Mesure : 0.4% -Stabilité : 1%	<b>1%</b> -Stabilité : 1%

TABLEAU 2.2 – Incertitudes sur la plateforme de test à 500fs, 1030nm avec la chambre cryogénique

2.2.1.3 Module de raster-scan

**Montage expérimental** En parallèle de la configuration standard de la plateforme d'endommagement, il est possible de dévier le faisceau vers un module de Raster-Scan. Le schéma ainsi qu'une photo du dispositif sont présentés figure 2.15. Un test raster scan (voir 2.1.3.1) consistant à balayer la surface d'un échantillon avec le faisceau, la manière la plus commune de le réaliser est de déplacer l'échantillon. L'inconvénient de cette méthode est sa lenteur. C'est pourquoi le dispositif utilisé ici consiste à déplacer le faisceau à travers une lentille F-theta à l'aide de miroirs galvanométriques. Les miroirs sont synchronisés avec la source laser et peuvent fonctionner jusqu'à une fréquence de 1kHz, donnant ainsi la possibilité d'irradier 1000 sites par seconde<sup>4</sup>. La lentille F-théta permet de toujours focaliser le faisceau dans le même plan (celui de l'échantillon quelque soit l'incidence du faisceau induite par les miroirs).

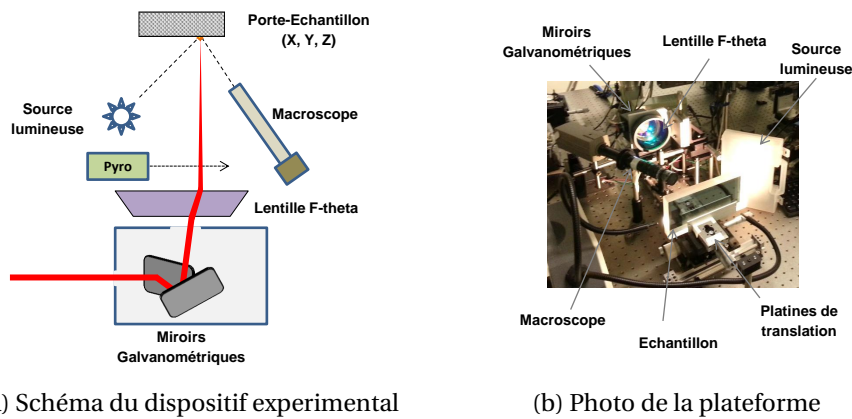


FIGURE 2.15 – Plateforme de raster-scan à 1030nm, 500fs, 1kHz

**Calibrations** L'énergie est calibrée de la même manière que présenté dans le paragraphe 2.2.1.1. Cependant pour une fréquence de 1kHz, le détecteur pyro ne permet pas d'extraire l'énergie de chacune des impulsions, mais uniquement l'énergie moyenne. La source laser étant la même que dans la configuration standard, la stabilité reste excellente.

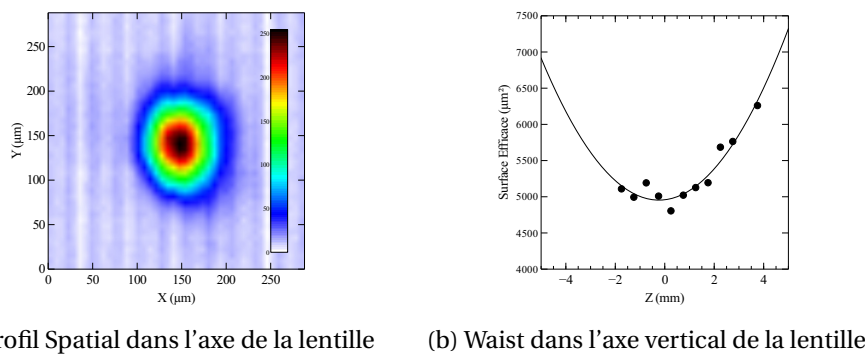


FIGURE 2.16 – Calibration du profil spatial du dispositif raster scan

Le positionnement de l'échantillon dans le plan focal de la lentille se fait de la même manière qu'en configuration standard, c'est à dire en déplaçant l'échantillon selon l'axe du faisceau (Z) et en l'endommageant avec le minimum d'énergie.

4. Un test Raster-Scan sur une surface de 1cm<sup>2</sup> avec un faisceau de 70µm représente 20400 sites. A 10Hz, cas d'un dispositif basée sur le déplacement de l'échantillon, le test durerait plus de 2 jours alors qu'à 1kHz, cas d'un dispositif utilisant les miroirs galvanométrique, le test ne dure à peine plus de 30min

**Incertitudes** Les incertitudes dans la configuration Raster-Scan (tableau 2.3) sont légèrement dégradées par rapport à la configuration standard mais restent tout à fait corrects pour une caractérisation rigoureuse des échantillons. La différence s'explique par la méthode de calibration différant légèrement de la calibration dans les conditions standard.

	Absolue	Relatif
Fluence	<b>9%</b> -Énergie : 4% -Surface : 6.7% -Incidence : 0.3%	<b>6.2%</b> -Énergie : 1% -Surface : 5.2%
Énergie	<b>4%</b> -Mesure : 3% -Stabilité : 1%	<b>1%</b> -Stabilité : 1%
Surface	<b>6.7%</b> -Position : 4.2%, -Mesure : 1.5% -Stabilité : 1%	<b>5.2%</b> -Position : 4.2% -Stabilité : 1%
Durée	<b>1.4%</b> -Mesure : 3.4% -Stabilité : 1%	<b>1%</b> -Stabilité : 1%

TABLEAU 2.3 – Incertitudes sur la plateforme de test à 500fs, 1030nm en configuration raster-scan

## 2.2.2 40fs-800nm

### 2.2.2.1 Description de la plateforme

Le Laboratoire d'Optique Appliquée dispose d'un laser Ti:Sa expérimental (salle verte) utilisé pour le développement de technologies laser en amont du projet *APOLLON 10P*. Une plateforme d'endommagement a été installée sur cette source de manière à pouvoir tester des composants dans des conditions similaires à l'utilisation sur la chaîne laser. La source, qui n'est maintenue en fonctionnement que la journée, et la plateforme se trouvent dans la même salle où la température est régulée et où la propreté n'est pas particulièrement maîtrisée. La source délivre, avant compression des impulsions de 150ps et 3.5mJ. La durée des impulsions étirées est contrôlée par la géométrie de l'étireur. Le compresseur est réglé finement de manière à maximiser les effets non linéaires dans l'air en focalisant le faisceau avec une lentille placée à sa sortie.

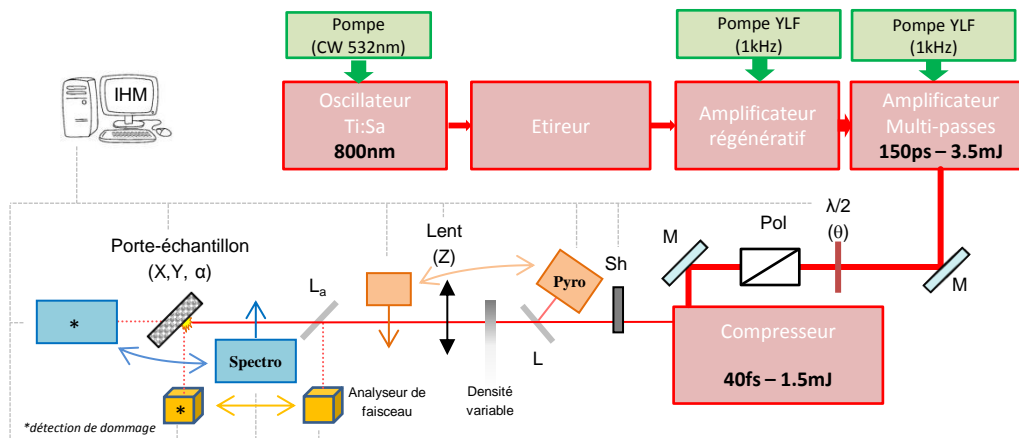


FIGURE 2.17 – Schéma de la plateforme d'endommagement 40fs-800nm. Légende :  $\lambda/2$ , lame demi-onde ; **Pol.**, Polariseur ; **M**,  $R_{max}$  @800nm 45° ; **Sh**, Obturateur ; **S<sub>(a)</sub>**, lame de prélèvement (amovible) ; **Lent**, Lentille convergente de focale 250mm ; **Pyro**, Mesureur d'énergie ; **Spectro**, Spectrophotomètre ; **IHM**, Logiciel de pilotage Labview.

L'énergie est réglable grâce à une lame demi-onde motorisée et associée à un polariseur (l'orientation du couple permet de régler la polarisation). La source délivrant des impulsions à 1kHz et l'obturateur utilisé ne pouvant pas être synchronisé à cette fréquence, seuls les tests S:1 sont possibles sur cette plateforme.

La lentille est montée sur une platine de translation motorisée de manière à pouvoir positionner avec précision la position du plan focal.

La mesure de l'énergie se fait par un prélèvement calibré. La calibration de l'énergie extraite est réalisée avant chaque journée de test en faisant successivement l'acquisition de l'énergie après la lentille et de l'énergie prélevée, sur toute la gamme angulaire de la lame demi onde. Une densité variable permet d'ajuster la gamme de test.

La surface du faisceau dans le plan focal de la lentille est mesurée par un analyseur de faisceau (WinCamD-UCD12 – 1/2" CCD System) sur un faisceau prélevé par réflexion sur une lame de microscope à face arrière dépolie. Dans le même temps, le spectre de l'impulsion est mesuré en utilisant les photons diffusés par ce dépoli.

La plateforme ne dispose d'aucun moyen de détection des dommages in-situ automatique. Cependant pour la mise en place des tests, nous utilisons le spectrophotomètre et l'analyseur de faisceau (caméra CCD) pour détecter les dommages. En effet, lorsqu'un dommage intervient sur un miroir la dégradation du front d'onde et la perte d'énergie sont rapidement et facilement détectables.

L'ensemble des instruments de la plateforme est contrôlé par un logiciel de pilotage développé dans le cadre de cette étude (2.18). Le logiciel permet de réaliser les opérations de calibration en amont des tests puis d'irradier de manière automatique un échantillon pour dérouler un test d'endommagement.

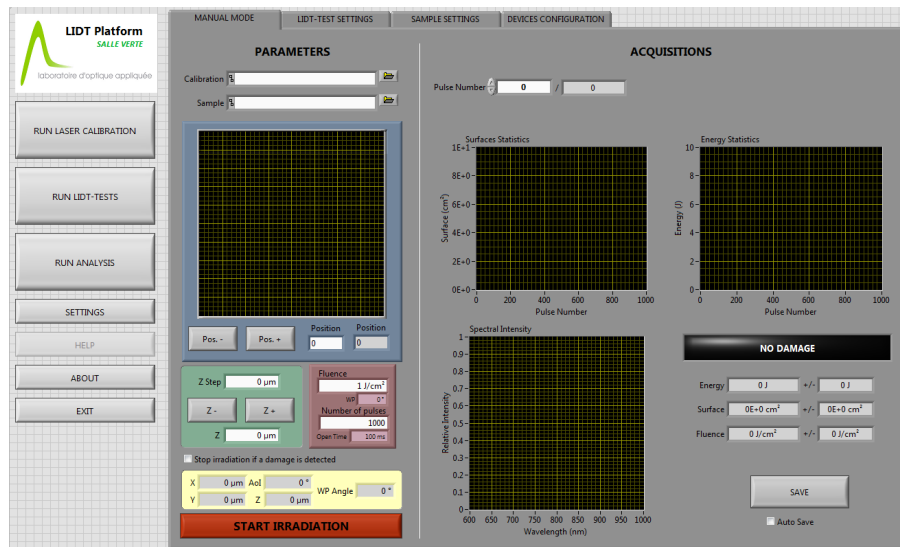


FIGURE 2.18 – Capture d'écran de l'interface de pilotage de la plateforme de tests d'endommagement laser du LOA

### 2.2.2.2 Caractéristiques au moment des tests

Les données de la calibration spectrale et spatiale de la plateforme sont données sur la figure 2.19. On constate que la largeur du spectre à mi-hauteur est d'environ 25nm. Or comme la durée de l'impulsion est réglée limite de fourrier, on l'estime à 40fs. Le diamètre à  $1/e^2$  du faisceau focalisé est de 80µm. Le profil du waist nous permet de constater qu'un réglage au millimètre près est nécessaire et suffisant pour la distance entre l'échantillon et la lentille de focalisation.

### 2.2.2.3 Incertitudes

L'environnement de la plateforme de tests n'étant pas favorable à une grande stabilité de la source, les incertitudes calculées pour cette plateforme sont très élevée (tableau 2.4). Les données acquises sur ce banc de tests sont à interpréter avec une grande précaution en particulier pour les valeurs absolues.

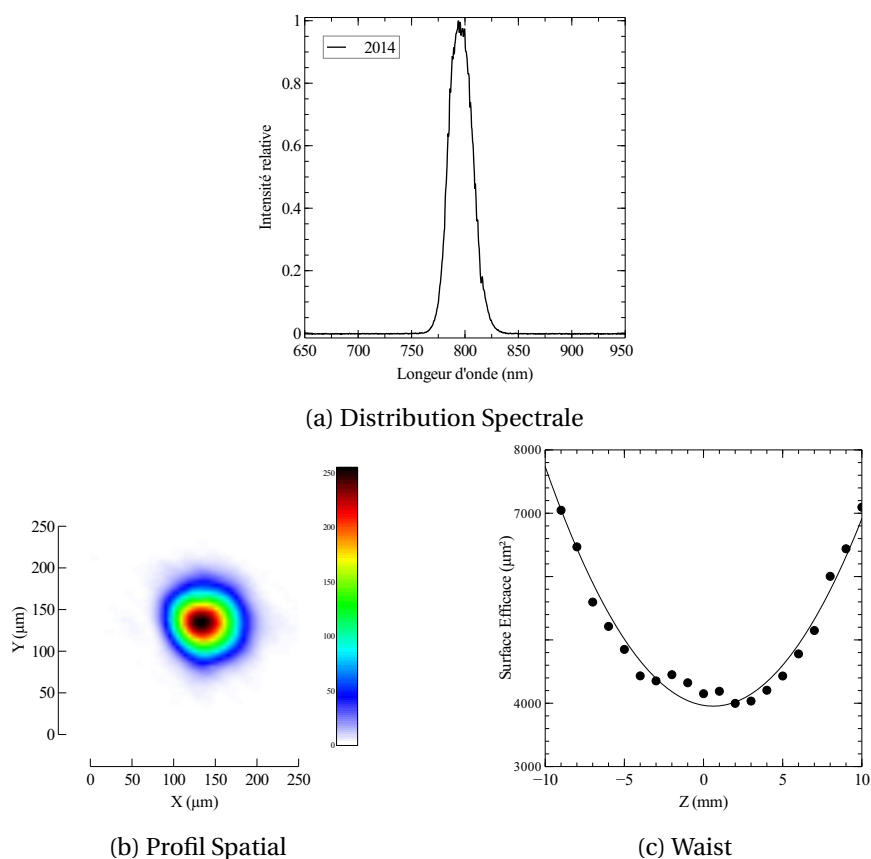


FIGURE 2.19 – Calibration de la plateforme de test de tenue au flux laser à 40fs,800nm

	Absolue	Relatif
Fluence	<b>23.5%</b> -Énergie : 13% -Surface : 10.2% -Incidence : 0.3%	<b>19%</b> -Énergie : 10% -Surface : 9%
Énergie	<b>13%</b> -Mesure : 3% -Stabilité : 10%	<b>10%</b> -Stabilité : 10%
Surface	<b>10.2%</b> -Position : 4%, -Mesure : 1.2% -Stabilité : 5%	<b>9%</b> -Position : 4% -Stabilité : 5%
Durée	<b>15%</b> -Mesure : 13% -Stabilité : 2%	<b>2%</b> -Stabilité : 2%

TABEAU 2.4 – Incertitudes sur la plateforme de test à 40fs, 800nm

### 2.2.3 10fs-800nm

Afin d'adresser la problématique de la tenue au flux en régime ultra-court (<15fs), nous avons réalisé des mesures sur la plateforme d'endommagement laser associée à l'infrastructure laser ASUR gérée par le *Laboratoire Lasers, Plasmas et Procédés Photoniques* (LP3).

#### 2.2.3.1 Description de la plateforme

La source laser ASUR, basée sur la technologie Ti :Sa et CPA, a été développée et installée par *Amplitude Technologies*. L'une des 5 sorties principales de la source (100Hz, 1mJ, 25fs, 800nm) est recomprimée par effet XPW (100Hz, 1mJ, 10fs, 800nm) puis est utilisée sur la plateforme d'endommagement. Le dispositif de mesure est schématisé dans la figure 2.20 et décrit plus en détail par UTÉZA et al. [97]. La source laser et la plateforme d'endommagement laser sont situées dans une salle propre. La source laser est allumée en début de journée et éteinte fin de journée. Les diagnostics du faisceau au niveau de la plateforme d'endommagement (profils temporel, spectral et spatial), sont donc réalisés chaque jour avant les tests sur échantillon. La mesure du profil spatial est réalisée en imageant le plan focal à l'aide d'un objectif de microscope dont le grandissement est calibré avec une mire 200 l/mm et d'un analyseur de faisceau (caméra CCD). L'obturateur est synchronisé avec le laser, qui délivre des impulsions à 100Hz, permettant l'extraction d'une impulsion unique. La photodiode, placée à proximité du dernier miroir avant l'échantillon, permet de vérifier la présence des impulsions. L'énergie est mesurée avant l'irradiation de chaque site et la moyenne sur 1000 impulsions est utilisée pour le calcul de la fluence. L'échantillon est placé sur un porte-échantillon à trois axes de translation. Deux axes (X et Y) sont dans le même plan que l'échantillon permettant son déplacement horizontal et vertical sans modification de l'angle d'incidence, ni de sa position par rapport au plan focal du miroir parabolique. Le troisième axe (Z) est utilisé pour placer la surface de l'échantillon dans le plan focal du miroir parabolique.

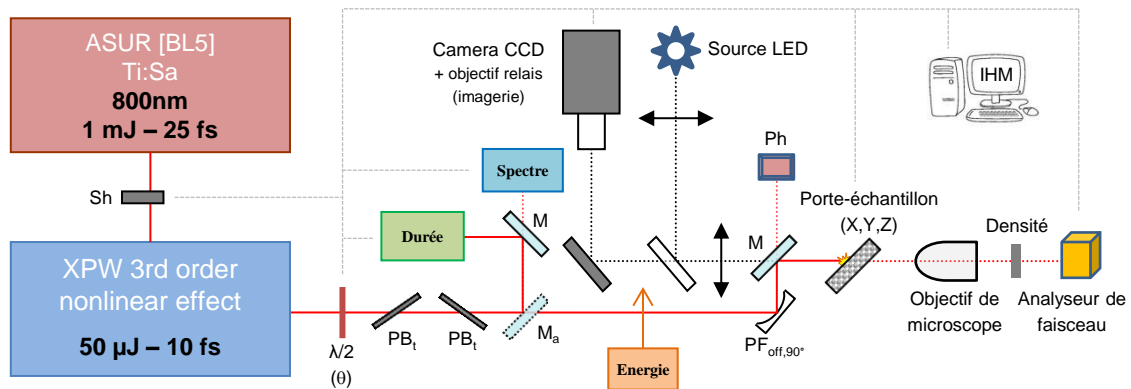


FIGURE 2.20 – Schéma de la plateforme d'endommagement associée à l'infrastructure ASUR au LP3. Légende : **Sh**, Obturateur ; **M<sub>(a)</sub>**, Rmax @800nm 45° (amovible) ; **PB<sub>t</sub>**, Polariseur à Brewster en transmission ;  $\lambda/2$ , Lame demi-onde achromatique ; **Ph**, Photodiode (contrôle de l'énergie sur cible) ; **PF<sub>OFF 90°</sub>**, Miroir parabolique hors d'axe (distance focale effective = 50mm) ; **Durée**, Mesure de la durée des impulsions (Femtometer, Wizzler) ; **Spectre**, Mesure du spectre (spectrophotomètre Ocean Optic) ; **Energie**, Mesure de l'énergie (détecteur pyro-électrique Ophir) ; **IHM**, Logiciel de pilotage Labview.

#### 2.2.3.2 Caractéristiques au moment des tests

Les tests réalisés sur cette plateforme à source d'impulsions laser ultra-courtes ont été étalés sur 2 campagnes. La première campagne inaugurerait le dispositif de test tandis que la seconde



s'appuyait sur les expériences précédentes améliorant ainsi la précision des mesures<sup>5</sup>. Les principales caractéristiques du faisceau au moment des mesures sont présentées dans la figure 2.21.

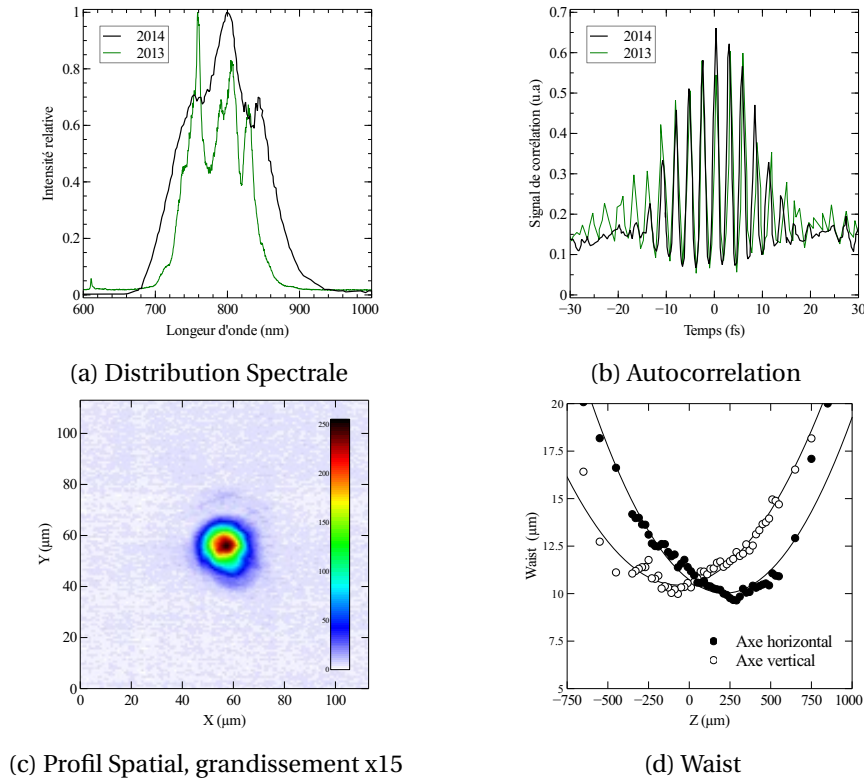


FIGURE 2.21 – Calibration Banc d'endommagement laser sur la plateforme ASUR

Enfin, pour valider l'ensemble des paramètres, des tests de tenue au flux laser dans ces conditions ont été réalisés sur un échantillon de référence en Silice SUPRASIL. Le seuil obtenu était respectivement de  $2.9J/cm^2$  et  $2.3J/cm^2$  lors de la première et de la seconde campagne.

### 2.2.3.3 Incertitudes

A une si courte durée d'impulsion les incertitudes calculées sont tout à fait acceptables (tableau 2.5), en particulier pour des mesures comparatives. En effet, une incertitude absolue de près de 20% requiert une certaine retenue dans la présentation des valeurs mesurées. Par contre l'ordre de grandeur de la valeur mesurée est tout à fait représentatif.

5. Lors de la seconde campagne de mesures nous avons pu profiter de l'expérience de la campagne précédente tant au niveau de la maîtrise des propriétés du faisceau en amont de la plateforme (meilleur contrôle de la divergence du faisceau) que de la procédure de test (meilleur réglage de la parabole). On notera notamment une amélioration dans la manière de régler la parabole de focalisation.

	Absolue	Relatif
Fluence	<b>19.8%</b> -Énergie : 8% -Surface : 11.2% -Incidence : 0.6%	<b>12.8%</b> -Énergie : 5% -Surface : 7.8%
Énergie	<b>8%</b> -Mesure : 3% -Stabilité : 5%	<b>5%</b> -Stabilité : 5%
Surface	<b>11.2%</b> -Position : 2.8%, -Mesure : 3.4% -Stabilité : 5%	<b>7.8%</b> -Position : 2.8% -Stabilité : 5%
Durée	<b>12%</b> -Mesure : 9% -Stabilité : 3%	<b>3%</b> -Stabilité : 3%

TABLEAU 2.5 – Incertitudes sur la plateforme de test à 10fs, 800nm

## Conclusion

A travers ce chapitre, nous avons décrit les paramètres à prendre en compte pour réaliser avec rigueur des mesures de résistance à l'endommagement laser. La gestion de l'ensemble de ces paramètres prend toute son importance lorsqu'on souhaite faire des mesures comparatives notamment dans la phase de développement d'un nouveau composant au cours de laquelle des itérations successives entre la fabrication et les caractérisations sont requises. Ensuite les conditions de test des plateformes utilisées pour la réalisation des mesures présentées dans les chapitres suivants ont été décrites. La plateforme de test de l'Institut Fresnel est tout à fait adaptée aux mesures précises de seuils absolus. Le banc du LP3 permet des mesures de seuil d'endommagement laser à des durées d'impulsion extrêmement courtes avec une erreur relative faible. Enfin la plateforme du LOA est adaptée, de part sa proximité géographique avec Reosc et ses caractéristiques proches des conditions de fonctionnement du laser Apollon 10P, à la réalisation de test comparatifs en vue d'améliorer la tenue au flux des optiques fabriquées.



# Chapitre 3

## Couches Minces Optiques

*« Qui tente sa chance et fait preuve de persévérance obtient sa récompense. Qui plie sous la malchance et ne retrouve pas ses manches vivote dans le silence. »*

---

Daniel Desbiens

### Sommaire

---

<b>3.1 Conception de fonctions optiques</b> . . . . .	<b>56</b>
3.1.1 Généralité . . . . .	56
3.1.2 Calcul du champ électrique . . . . .	57
<b>3.2 Fabrication</b> . . . . .	<b>64</b>
3.2.1 Préparation du substrat . . . . .	64
3.2.2 Dépôt de couches minces optiques . . . . .	65
<b>3.3 Caractérisations</b> . . . . .	<b>70</b>
3.3.1 Propriétés physiques . . . . .	70
3.3.2 Propriétés optiques . . . . .	71
3.3.3 Propriétés mécaniques . . . . .	73

---

## Introduction

La production de composants optiques en général, de couches minces optiques en particulier nécessite une grande maîtrise à la fois des moyens de simulation, de production et de caractérisation. En effet, d'une part une grande maîtrise des moyens de fabrication est indispensable à la réalisation d'objets à la limite de l'état de l'art. D'autre part la démonstration de la performance d'un composant requiert bien entendu des moyens de métrologie de grande précision. Enfin, la connaissance des principes théoriques des technologies utilisées, et l'utilisation des outils de simulation sont indispensables dans les phases de design et de retro-engineering.

Ce chapitre présente les outils théoriques et expérimentaux utilisés au cours de ces travaux d'une part pour concevoir, fabriquer et caractériser les échantillons et d'autre part pour analyser et interpréter les résultats des tests. Cette présentation commence par une rapide revue des principes théoriques fondamentaux de la propagation des ondes lumineuses dans les matériaux nécessaires à la conception de fonctions optiques en général et des miroirs en particulier à partir de couches minces. Ensuite les méthodes de calcul du champ électrique étudiées seront décrites et discutées. Enfin il sera question des procédés de dépôt couches minces des méthodes de caractérisation mis en œuvre.

### 3.1 Conception de fonctions optiques

*L'objet de cette partie est de présenter les outils qui permettent d'appréhender la conception de fonctions optiques à partir des effets interférentiels. Un intérêt particulier est porté à la conception de miroirs et au calcul de la répartition du champ électrique dans des empilements réfléchissants.*

#### 3.1.1 Généralité

Le design de couches minces optiques consiste à trouver l'épaisseur et le profil d'indice du dépôt qui donneront au substrat la fonction spectrale souhaitée (figure 3.1).

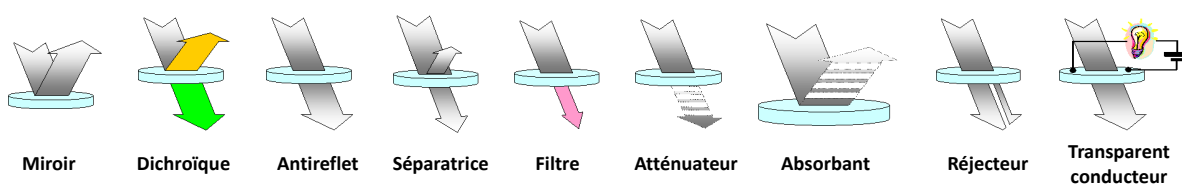


FIGURE 3.1 – Schéma synthétique de différentes fonctions optiques réalisables par traitement couches minces

En théorie, les possibilités de design sont infinies. Dans la réalité, il y a de nombreuses limitations :

- Nombre de matériaux disponibles (compatibilité entre eux et avec la technologie d'évaporation)
- Dynamique spectrale (à cause de la périodicité de la réponse spectrale)
- Experience du concepteur (il n'existe pas de méthode de synthèse)
- Forte sensibilité à l'angle d'incidence et à la polarisation

La conception d'un miroir peut se faire de 3 manières : Traitement métallique, traitement diélectrique ou traitement hybride métal diélectrique. La figure 3.2 montre leur différences de réflectivité.

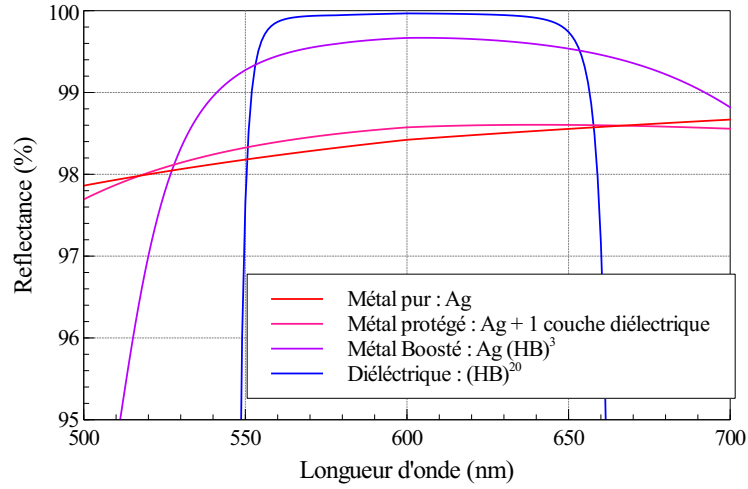


FIGURE 3.2 – Comparaison des réflectivités des miroirs : métallique, métal protégé, métal boosté et diélectrique

### 3.1.2 Calcul du champ électrique

Nous avons vu dans le chapitre 1 que les processus intervenant dans l'endommagement de couches minces optiques par des impulsions laser ultra-courtes sont majoritairement pilotées par des effets électroniques. Il est tout à fait indispensable, de prendre en compte la distribution du champ électrique dans les empilements dès leur conception en utilisant des méthodes de calcul adaptées aux conditions d'applications.

#### 3.1.2.1 Régime stationnaire

La méthode, simple et rapide à mettre en œuvre, utilisée dans la plupart des logiciels de conception de couches minces optiques repose sur un formalisme matriciel. La suite décrit les étapes du processus de calcul.

On considère un empilement quelconque (figure 3.3) illuminé sous incidence  $\theta_1$  par un rayonnement stationnaire monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$ .

Soit  $U_j(z)$  le champ (électrique ou magnétique), solution des équations de Maxwell 1D en régime stationnaire, dans la couche  $j$ . D'après Helmholtz,  $U_j(z)$  est la somme d'une composante progressive  $U_j^+(z)$  et d'une composante rétrograde  $U_j^-(z)$  (eq. 3.1).

$$U_j(z) = U_j^+(z) + U_j^-(z) \quad \text{où} \quad \begin{cases} a_j^+ \text{ et } a_j^- \text{ sont des constantes complexes,} \\ \beta_j = \sqrt{k_j^2 - (k_1 \sin \theta_1)^2} \text{ et} \\ k_j^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_j = \left(2\pi \frac{n_j}{\lambda}\right)^2. \end{cases} \quad (3.1)$$

Pour alléger les notations dans les expressions des relations de propagation et de passage, on

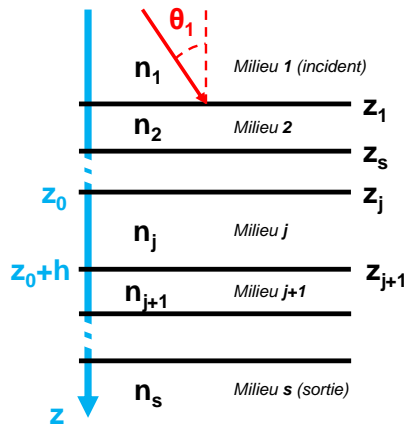


FIGURE 3.3 – Représentation d'un empilement pour le calcul matriciel.  $n_j$  et  $z_j$  correspondent respectivement à l'indice et à l'épaisseur de la couche  $j$ , la première couche ( $j = 1$ ) étant le milieu incident et la dernière couche ( $j = n$ ) étant le substrat.

introduit le terme  $p_j$  (eq. 3.2) permettant de différencier les polarisations.

$$p_j = \begin{cases} 1 & \text{pour la polarisation S} \\ \left(\frac{1}{n_j}\right)^2 & \text{pour la polarisation P} \end{cases} \quad (3.2)$$

On défini  $h$  comme l'épaisseur d'une couche délimitée par les deux plans  $z = z_0$  et  $z = z_0 + h$  appartenant au milieu  $j$ . On peut alors simplement montrer que la propagation de l'onde dans le milieu continu  $j$  s'écrit :

$$U_j(z_0 + h) = U_j^+(z_0)e^{i\beta_j h} + U_j^-(z_0)e^{-i\beta_j h} \quad (3.3)$$

Au niveau du dioptre  $z_j$ , entre les milieux  $j$  et  $j + 1$ , le passage de l'onde est régi par la continuité du champ électrique et du champ magnétique qui se traduit par le système suivant :

$$\begin{cases} U_j^-(z_j) + U_j^+(z_j) = U_{j+1}^-(z_j) + U_{j+1}^+(z_j) \\ -p_j\beta_j U_j^-(z_j) + p_j\beta_j U_j^+(z_j) = -p_{j+1}\beta_{j+1} U_{j+1}^-(z_j) + p_{j+1}\beta_{j+1} U_{j+1}^+(z_j) \end{cases} \quad (3.4)$$

Pour alléger la notation et mieux rendre compte du formalisme matriciel qui permet de calcul numérique nous définissons le vecteur  $\vec{U}_j$  de la manière suivante :

$$\vec{U}_j = \begin{pmatrix} U_j^- \\ U_j^+ \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

La relation de propagation de l'équation 3.3 peut donc s'écrire sous la forme :

$$\vec{U}_j(z_0 + h) = C_j \vec{U}_j(z_0) \quad \text{où} \quad C_j = \begin{vmatrix} e^{-i\beta_j h} & 0 \\ 0 & e^{i\beta_j h} \end{vmatrix} \quad (3.6)$$

Le système d'équation définissant relation de passage du dioptre  $z_j$  entre le milieu  $j$  et le milieu  $j + 1$  de l'équation 3.4 peut alors s'écrire :

$$\vec{U}_j(z_j) = T_j \vec{U}_{j+1}(z_j) \quad \text{où} \quad T_j = \begin{vmatrix} s_j & d_j \\ d_j & s_j \end{vmatrix} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} s_j = \frac{p_j\beta_j + p_{j+1}\beta_{j+1}}{2p_j\beta_j} \\ d_j = \frac{p_j\beta_j - p_{j+1}\beta_{j+1}}{2p_j\beta_j} \end{cases} \quad (3.7)$$

$C_j$  et  $T_j$  sont respectivement la matrice de propagation dans le milieu  $j$  et la matrice de passage du milieu  $j$  vers le milieu  $j + 1$ .

Ainsi, il est possible de calculer, par récurrence, le champ électrique dans tout l'empilement, à partir de la relation suivante :

$$\vec{U}_1(z_1) = M_j \vec{U}_{j+1}(z_j) \quad \text{où} \quad M_j = T_1 \prod_{i=2}^j C_i T_i \quad (3.8)$$

Les conditions au bord ( $\vec{U}_1$  le champ dans le milieu incident, et  $\vec{U}_s$  le champ dans le milieu de sortie), qui permettent d'initialiser la relation de récurrence, se calculent d'une part en considérant  $M$  la matrice du système complet. On a donc :

$$\vec{U}_1 = M \vec{U}_s \quad \text{avec} \quad M = \begin{pmatrix} M^{11} & M^{12} \\ M^{21} & M^{22} \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

Et d'autre part, si on utilise le fait que le champ rétrograde dans le substrat est nul ( $U_s^- = 0$ ) et que l'on fixe le champ incident à 1 pour la normalisation du calcul ( $U_1^+ = 1$ ), alors le calcul coefficient de réflexion  $r$  et de transmission  $t$  conduit à l'expression de la composante rétrograde dans le milieu incident ( $U_1^-$ ) et à la composante progressive dans le milieu de sortie ( $U_s^+$ ) :

$$\begin{aligned} r = \frac{U_1^-}{U_1^+} &= \frac{M^{21}}{M^{22}} \\ t = \frac{U_s^+}{U_1^+} &= \frac{1}{M^{22}} \end{aligned} \quad \text{d'où} \quad U_1 = \begin{pmatrix} \frac{M^{21}}{M^{22}} \\ 1 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad U_s = \begin{pmatrix} 0 \\ \frac{1}{M^{22}} \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

Enfin, du point de vue de l'intensité, les coefficients de réflexion et de transmission s'expriment :

$$R = r.r^* \quad \text{et} \quad T = \frac{n_s}{n_1} t.t^* \quad (3.11)$$

Donc, si le champ électrique incident a une intensité  $I_{inc}(t)$ , l'intensité du champ électrique dans l'empilement  $I(z, t)$  s'écrit :

$$I(z, t) = I_{inc}(t) \times \left| \vec{U}_j(z) \right|^2 \quad (3.12)$$

### 3.1.2.2 Régime transitoire

Dans un milieu diélectrique d'indice de réfraction moyen de 1.7 (comme c'est le cas dans un miroir construit avec les matériaux  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$ ), une onde monochromatique à 800nm, parcourt une distance de 2.6 $\mu\text{m}$  en 15fs. Or un empilement quart d'onde haute réflectivité (12 paires de  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$ ) à 800nm en incidence normale a une épaisseur de 3 $\mu\text{m}$ . Le trajet de l'onde réfléchie est donc au plus d'environ 6 $\mu\text{m}$  soit plus de deux fois la distance sur laquelle s'étend un pulse de 15fs. Il paraît donc nécessaire de tenir compte de la réponse transitoire du système pour calculer rigoureusement l'intensité du champ électrique dans les empilements. Pour cela, nous avons envisagé deux approches : l'une utilisant la polychromaticité et le régime stationnaire, l'autre utilisant la méthode FDTD (Finite Difference Time Domain).

**Superposition d'ondes monochromatiques** Cette approche permet d'utiliser le code de la méthode décrite au paragraphe précédent en utilisant le fait que, comme vu précédemment, une impulsion courte peut être décrite comme la superposition de plusieurs ondes



monochromatiques. Ainsi, dans le cas le plus courant d'impulsion gaussienne, en utilisant la relation 3.13 reliant la largeur temporelle à mi-hauteur de l'impulsion  $\Delta\tau$ , la largeur spectrale à mi-hauteur  $\Delta\lambda$  et la longueur d'onde centrage  $\lambda_0$  on peut calculer la distribution spectrale de l'impulsion à simuler.

$$\Delta\tau \times \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0^2} = \frac{2\ln 2}{\pi c} \quad (3.13)$$

Ensuite, on utilise l'algorithme matriciel explicité au paragraphe précédent pour calculer l'intensité du champ électrique induite pour chaque longueur d'onde  $I_\lambda(z)$  dont on fait ensuite la somme pondérée et normalisée par l'intensité spectrale de la source  $S_\lambda(\lambda)$ . On peut donc calculer la répartition du champ électrique dans l'empilement à partir de la discrétisation de la relation suivante :

$$I(z) = \frac{\int_\lambda S_\lambda(\lambda) \times I_\lambda(z)}{\int_\lambda S_\lambda(\lambda)} \quad (3.14)$$

**Finite Difference Time Domain** La méthode FDTD consiste à résoudre dans le temps et l'espace les équations de Maxwell. Elle présente l'avantage d'être la plus complète pour modéliser les ondes électromagnétiques. Cependant, son exhaustivité en fait une méthode qui demande beaucoup de ressource de calcul, c'est pourquoi il est préférable de faire des hypothèses simplificatrices.

Nous avons fait le choix de ne travailler qu'en une dimension (1D). La simplification des équations de Maxwell en 1D dans un milieu homogène sans source donne :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{d\vec{H}}{dt} \\ \nabla \times \vec{H} = \epsilon \frac{d\vec{E}}{dt} \end{array} \right. \quad \frac{\partial}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial y} = 0 \quad \text{1D} \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial E_x}{\partial z} = -\mu \frac{\partial H_y}{\partial t} \\ \frac{\partial H_y}{\partial z} = -\epsilon \frac{\partial E_x}{\partial t} \end{array} \right. \quad (3.15)$$

On fixe d'une part la condition initiale avec les champs électrique et magnétique nuls. D'autre part, pour les bords du domaine spatial, nous utilisons les conditions d'absorption totale (ABC<sup>1</sup>) ce qui revient à simuler que le domaine est borné par deux milieux semi infinis.

Enfin on ajoute au bord du domaine indicent une source de distribution temporelle  $S_t(t, \lambda)$  exprimée comme le produit d'une porteuse  $m(t, \lambda)$  et de son enveloppe gaussienne  $g(t)$  dépendant de la vitesse de la lumière dans le vide  $c$ , de la position temporelle du centre de l'enveloppe  $t_c$  et la durée de l'impulsion à mi-hauteur  $\tau$ .

$$\begin{aligned} S_t(t, \lambda) &= m(t, \lambda) \times g(t) \\ &= \sin\left(\frac{2\pi c}{\lambda} t\right) \times \exp\left(\frac{-(t - t_c)^2}{2\sigma_t^2}\right) \quad \text{avec} \quad \sigma_t = \frac{\tau}{2\sqrt{2\ln 2}} \end{aligned} \quad (3.16)$$

Pour résoudre numériquement ce système on utilise l'algorithme de Yee [103] consistant à mailler le système en intercalant les sommets de la maille du champ magnétique au centre de la maille du champ électrique (figure 3.4).

1. Absorbing Boundary Conditions

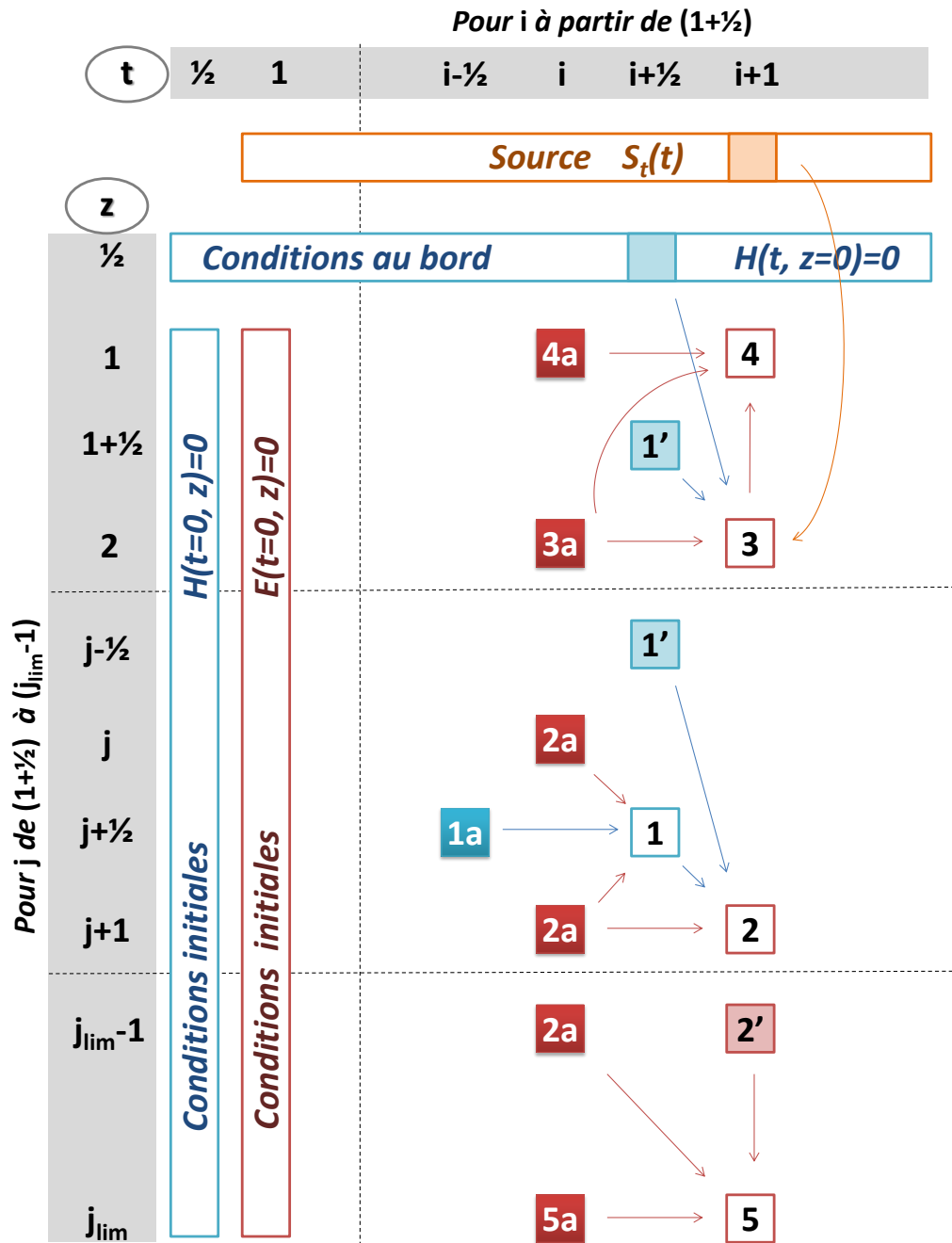


FIGURE 3.4 – Schéma de résolution du problème FDTD 1D selon l’algorithme imaginé par Yee : Après avoir défini les conditions initiales, aux bords du domaine et de la source, le calcul s’effectue instant après instant (t) pour chaque position (z). Les carrés blancs indiquent les opérations réalisées successivement dans l’ordre indiqué de la numérotation. Les flèches indiquent les éléments nécessaires au calcul, c’est à dire les carrés blancs de numéro inférieur calculés dans la même itération temporelle, les carrés colorés clairs et marqués X’ calculés en même temps que les carrés blancs de même numéro et/ou les carrés colorés foncés marqués Xa calculés à l’itération temporelle précédente.

**Comparaison des méthodes** Pour les simulations comparatives nous avons appliqué les méthodes de simulation sur un miroir (HB)<sup>12</sup> H avec  $(H=1 \times \frac{\lambda}{4}$  de  $\text{HfO}_2$   $B=1 \times \frac{\lambda}{4}$  de  $\text{SiO}_2$ ) centré à  $\lambda = 1030\text{nm}$  en incidence normale. La figure 3.5 montre la répartition du champ électrique calculée selon quatre différentes méthodes. La méthode matricielle mono- $\lambda$  est la méthode classiquement utilisé par les logiciels de design. Elle correspond à la simulation de la propagation d'une onde stationnaire et monochromatique. La méthode matricielle  $\Delta\lambda$  correspond à la propagation d'une onde polychromatique. Les deux autres courbes sont issues de simulations FDTD 1D pour deux durées d'impulsions d'intérêt.

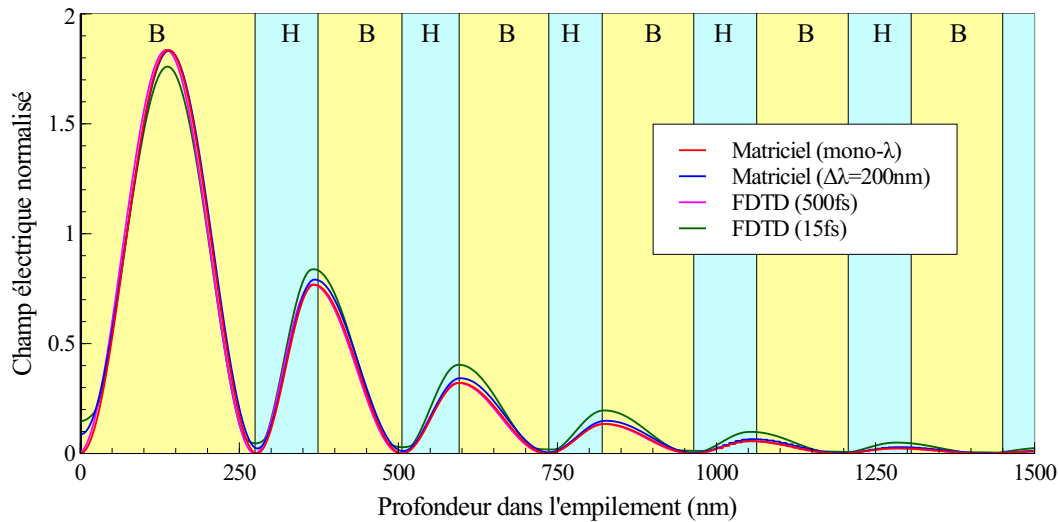


FIGURE 3.5 – Simulation de la répartition du champ électrique dans un miroir à 500fs, 1030nm

Cette figure nous permet de constater que la méthode matricielle monochromatique est tout à fait adaptée au calcul de la répartition du champ électrique dans un empilement dans le cas d'une impulsion de plusieurs centaines de femtosecondes. En effet les deux courbes "Matriciel (mono- $\lambda$ )" et "FDTD (500fs)" sont confondues. Par contre les deux autres courbes "Matriciel ( $\Delta\lambda=200\text{nm}$ )" et "FDTD (15fs)" s'en écartent légèrement. De plus, comme elles ne sont pas confondues, on ne peut pas conclure non plus que la méthode matricielle polychromatique est parfaitement représentative des impulsions courtes. La comparaison de ces simulations montre tout de même que la méthode matricielle monochromatique peut être utilisée en première approximation pour l'optimisation de la répartition du champ électrique des empilements à haute réflectivité. Cela permet d'envisager une mise en œuvre rapide et une prise en compte immédiate de l'incidence et la polarisation sans passer par une simulation FDTD 2D.

**Exemple** Prenons le cas du design d'un miroir à réflectivité supérieur à 99.5% à 820nm en incidence normale. Le design classique (HB)<sup>12</sup> ou le design modifié  $2/3 \times (\text{HB})^{14}$  ( $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ) présentent le même niveau de réflectivité à 820nm (figure 3.6) mais la distribution de leur champ électrique est différente (figure 3.7).

En effet la distribution du champ électrique du design modifié montre une atténuation de l'intensité dans toutes les couches ainsi qu'un décalage du maximum à la surface de la première couche vers l'intérieur. Ne plus avoir de maximum au niveau de la surface peut avoir un effet bénéfique car cette interface est sensible à l'environnement extérieur qu'il n'est pas toujours facile de contrôler. On notera de plus que le design modifié, au champ électrique réduit, a une gamme spectrale de haute réflectivité moins étendue que le design classique, ce qui peut être un

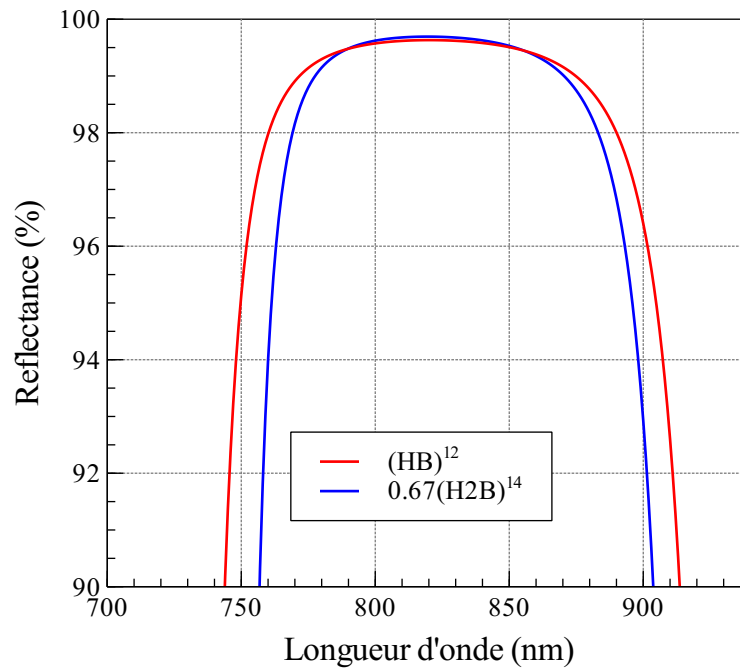


FIGURE 3.6 – Réflectivité théorique en incidence normale des deux designs objets de la comparaison de la distribution du champ électrique

inconvenient pour le design de composants optiques pour les lasers ultra-brefs à large spectre.

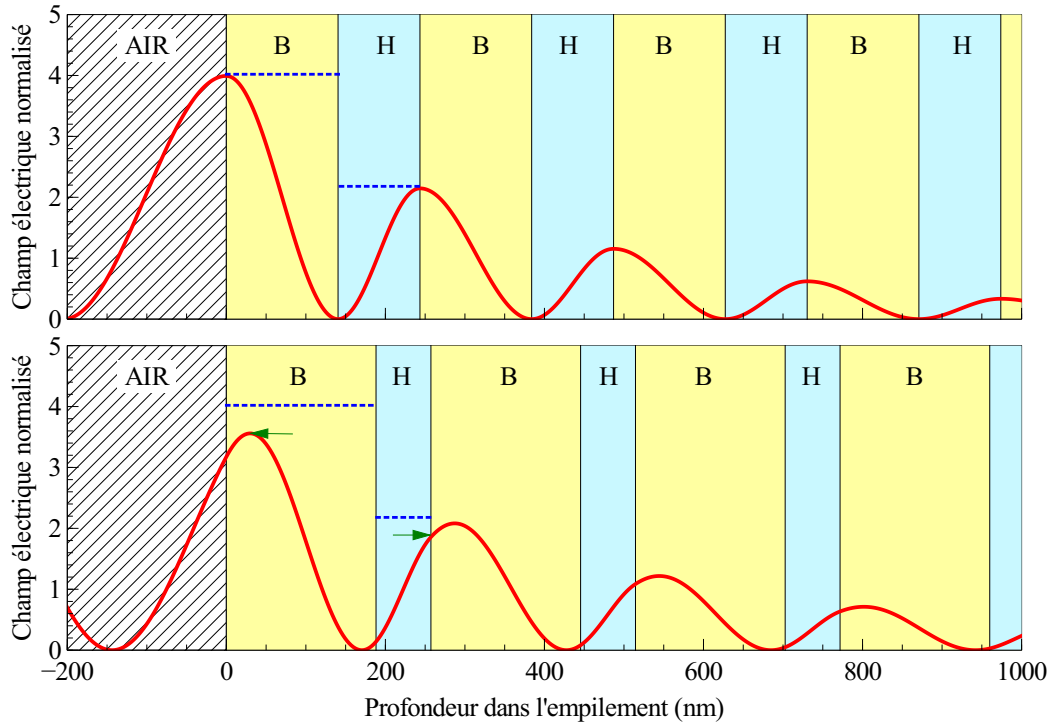


FIGURE 3.7 – Répartition du champ électrique dans deux designs présentant la même réflectivité à 820nm en incidence normale. Pour une meilleure lisibilité seul le premier micron est représenté.

## 3.2 Fabrication

*Cette partie présente les paramètres de fabrication importants pour la réalisation d'optique laser de haute performance. Les moyens disponibles à Reosc et utilisés à l'occasion de ces travaux sont décrits.*

### 3.2.1 Préparation du substrat

La nature et la qualité de surface du substrat sont des éléments capitaux dans la réussite d'un dépôt couches minces. Tout d'abord, le choix du matériau se fait non seulement en fonction de l'application mais aussi en tenant compte de sa compatibilité avec les matériaux déposés. Ses propriétés thermo-mécaniques peuvent jouer un rôle important selon les paramètres de dépôt utilisés. En effet les couches déposées génèrent des contraintes (voir 3.3.3) qui peuvent déformer le substrat.

Ensuite, les différentes étapes du processus de mise en forme du substrat peuvent toutes avoir une influence sur la qualité finale du dépôt couches minces. En fait, chacune des étapes de la fabrication du substrat va conduire à la formation d'une couche sub-surfacique de qualité variable (figure 3.8). En effet, la qualité de la fabrication du blank<sup>2</sup> va conduire à une certaine probabilité de présence de défauts dans la matière (des bulles par exemple). Ensuite l'usinage du substrat va déformer mécaniquement sa surface, puis la phase de polissage va venir créer des défaut sub-surfaciques (SSD) comme des microfissures. Des traces des produits abrasifs utilisés lors de la phase de polissage vont également se retrouver dans la couche dite de Beilby. Bien entendu, le contact du substrat avec son environnement va former deux nouvelles couches superficielles, la première, d'oxyde, issue d'un processus chimique d'interaction et la seconde,

2. bloc de matière brut

issue de phénomènes physique la couche d'adsorption des gaz comme la vapeur d'eau.

Enfin la préparation de surface est la phase la plus critique de la fabrication. Bien qu'elle même vienne rajouter une fine couche de défauts de surface, elle consiste à venir retirer la quasi-totalité des impuretés provenant de l'environnement et une partie des résidus de polissage. La préparation est déterminante pour l'adhérence du traitement couche mince sur le substrat.

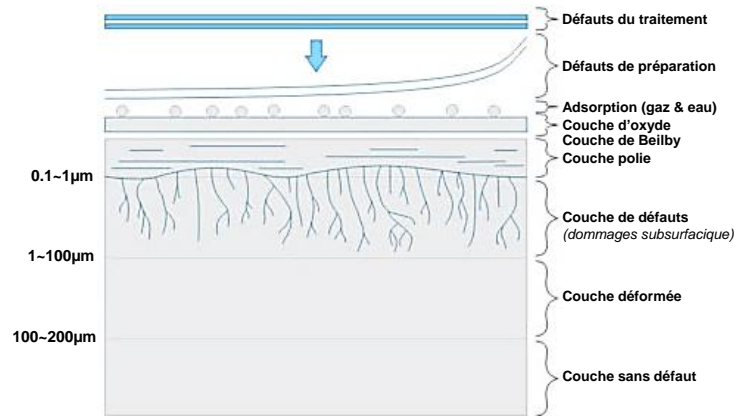


FIGURE 3.8 – Schéma des différentes couches de défauts à la surface d'un substrat (figure importée de la page internet de la société LIDARIS)

### 3.2.2 Dépôt de couches minces optiques

#### 3.2.2.1 Les différentes techniques

Les dépôts de couches minces peuvent se faire avec de nombreux procédés que l'on peut regrouper en 5 catégories :

**Procédés de conduction et de diffusion** dépôt électrostatique ou électrolytique, anodisation,...

**Procédés chimiques** CVD (Chemical Vapor Deposition), Pyrolyse, ALD (Atomic Layer Deposition),...

**Procédés de mouillage** enduction centrifuge (Spin Coating), application au pinceau, ...

**Procédés de pulvérisation** impression, pulvérisation par arc électrique, ...

**Procédés physiques de dépôt en phase vapeur** évaporation thermique, HiPPMS (High-Power Pulsed Magnetron Sputtering), ...

Dans le cas particulier des couches minces optiques, chaque technique présente ses avantages et ses inconvénients selon les critères requis (matériaux déposés et substrats) et recherchés (applications) et impacte directement les contraintes de fabrication et des propriétés des matériaux (table 3.1)

#### 3.2.2.2 Cas particuliers de l'EBD et de l'IAD

Focalisons nous maintenant sur les technologies utilisées au cours cette étude c'est-à-dire l'évaporation sous vide par canons à électrons et l'évaporation sous vide par canons à électrons assistée par faisceau d'ions (figure 3.9). Ces technologies ont l'avantage de la polyvalence et permettent la réalisation de traitements variés sur un très large spectre de l'ultra-violet à

Contraintes de fabrication	Propriétés des matériaux
<ul style="list-style-type: none"> <li>• coûts de mise en œuvre,</li> <li>• vitesse de dépôt,</li> <li>• température de dépôts</li> <li>• homogénéité, uniformité et reproductibilité des indices de réfraction</li> <li>• géométrie et dimension du substrat</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• diffusion et absorption dans le domaine spectral d'intérêt</li> <li>• stabilité temporelle et environnementale</li> <li>• contraintes mécaniques et anisotropie optique</li> <li>• taux de défauts et d'impuretés</li> <li>• dureté</li> <li>• résistance à l'endommagement sous flux laser</li> </ul>

TABLEAU 3.1 – Contraintes de fabrication et propriétés des matériaux impactées par le choix de la technologie de dépôt couches minces.

l'infrarouge lointain, sur les composants aux dimensions de moins du centimètre à plus du mètre.

Le procédé de dépôt par évaporation sous vide comprend quatre étapes principales :

1. Le changement d'état du matériau par vaporisation ou sublimation
2. Le transfert des espèces évaporées de la source vers le substrat
3. La condensation de ces espèces à la surface du substrat
4. La réorganisation ou la modification des liaisons des espèces adsorbées

La technologie EBD (Electron Beam Deposition) consiste à bombarder avec des électrons ( $\approx 10\text{keV}$ ) un matériau cible jusqu'à le vaporiser ou le sublimer. L'IAD (Ion Assisted Deposition) consiste à apporter un complément d'énergie (plusieurs centaines d'eV), grâce à un faisceau d'ions, au matériau évaporé pendant sa condensation sur le substrat. La technologie IAD permet d'augmenter la densité des couches et de restituer la stœchiométrie du matériau en utilisant de bon gaz.

### 3.2.2.3 Contrôle in-situ de l'épaisseur des couches

Pour fabriquer les empilements théoriques imaginés pour une application donnée, il faut non seulement que les propriétés des matériaux tels qu'ils sont fabriqués aient été prises en compte au moment des calculs, mais il faut également être en mesure de déposer chacune des couches de l'empilement avec la meilleure précision sur l'épaisseur.

La manière historique et la plus simple pour contrôler les épaisseurs des couches au cours de l'évaporation est la mesure du temps. Malgré sa simplicité la méthode nécessite une grande maîtrise de la vitesse d'évaporation (constance et répétabilité).

Le contrôle dit "au quartz" consiste à analyser l'évolution de la fréquence d'une microbalance piézoélectrique à quartz. Pour cela on mesure la variation de la fréquence de résonance du cristal qui va diminuer avec l'augmentation de l'épaisseur déposée. Cette variation de fréquence  $F$  ne dépendant que de l'impédance acoustique  $Z$  du matériau déposé et de sa masse  $M$  (eq. 3.17), connaissant la surface exposée au dépôt il est très facile de remonter à l'épaisseur déposée. La difficulté de cette méthode est que la mesure ne peut pas se faire directement sur la pièce. L'uniformité de dépôt doit donc être correctement calibrée et suffisamment stable pour que l'extrapolation de l'épaisseur sur pièce à partir de l'épaisseur sur le quartz soit correcte. D'autre part la densité du matériau déposé doit rester constante au cours du dépôt.

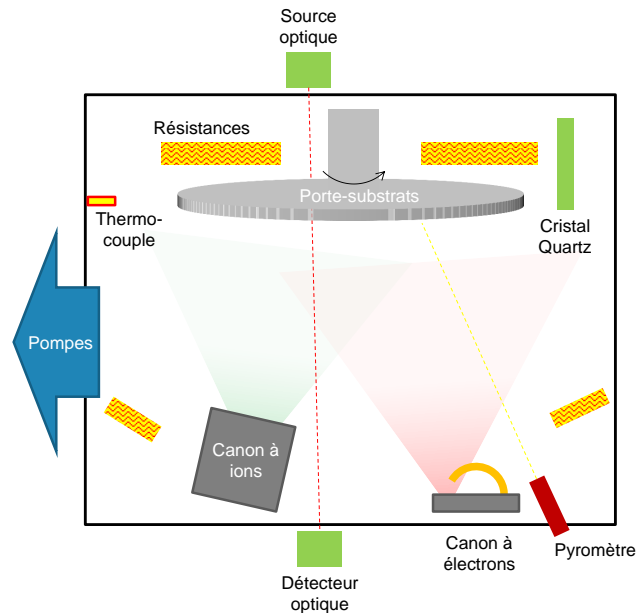


FIGURE 3.9 – Schéma de la configuration typique d'une chambre à vide dédiée à la mise en œuvre des procédés EBD et IAD.

$$M = \frac{\arctan [Z \tan (\pi Z)]}{\pi Z(1 - F)} \quad \text{avec} \quad F = \frac{f_q - f_e}{f_q} \quad (3.17)$$

Le contrôle in-situ de l'épaisseur par monitoring optique ("contrôle optique") consiste à mesurer au cours du temps la réponse optique partielle du dépôt (figure 3.10). Différents systèmes commerciaux existent permettant la réalisation d'un contrôle optique multi-longueur d'onde (large bande) et/ou mono-longueur d'onde (haute résolution) en transmission ou en réflexion. La mesure peut se faire directement sur le composant en production ou sur des substrats spécifiques interchangeables lorsqu'il est nécessaire de segmenter le monitoring optique. La détection automatique des épaisseurs des couches par contrôle optique nécessite l'utilisation d'algorithmes d'analyse du signal optique (filtrage, détection d'extremum, etc.). Reosc dispose de son propre logiciel d'analyse connecté sur ses évaporateurs. L'avantage du contrôle optique est qu'il permet de mesurer directement les épaisseurs optiques des couches (épaisseurs mécaniques et indices). Il existe même aujourd'hui des solutions commerciales de retro-engineering capables de recalculer le design d'un empilement au cours du procédé afin de compenser en cours de fabrication les erreurs de fabrication des couches précédentes.

Dans le cas de la technologie EBD, le dépôt couches minces présente une porosité qui entraîne une variation de son indice de réfraction entre le vide utilisé pour l'évaporation et l'environnement d'utilisation ou de mesure. Une maîtrise profonde et une répétabilité remarquable des procédés de dépôts sont indispensables à l'anticipation de ces variations.

#### 3.2.2.4 Les évaporateurs utilisés

**L'évaporateur "BA8"** Pour le traitement de composants optiques de grande dimension (jusqu'à 1500mm de diamètre), Reosc dispose d'un évaporateur de type BAK1730 (figure 3.11) dans lequel un vide de  $10^{-7}$  mbar est atteint grâce à 2 pompes cryogéniques. Le système de chauffage par résistances permet d'atteindre des températures jusqu'à 250°C sur le substrat. La température sur le substrat est régulée sur les deux faces avec une précision de l'ordre du degré par un système de visée pyrométrique. Plusieurs sources d'électrons et d'ions sont positionnées dans l'évaporateur



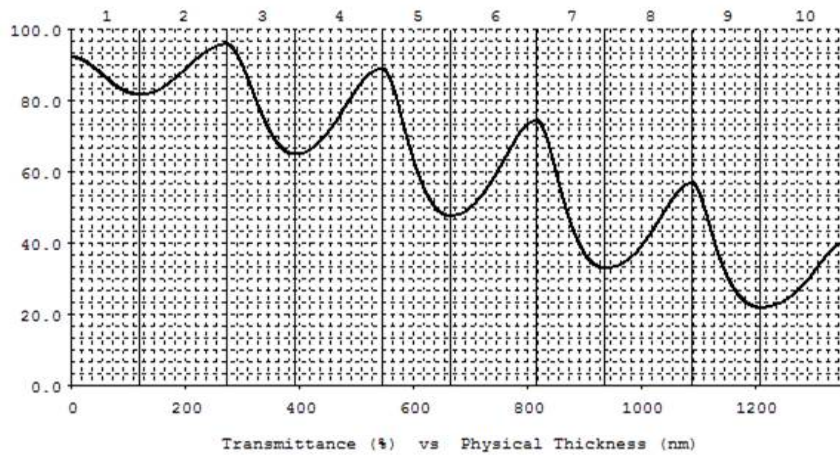


FIGURE 3.10 – Exemple de monitoring optique théorique généré par TFCalc®

de manière à favoriser l'uniformité du dépôt de chacun des matériaux. Enfin, le contrôle de l'épaisseur des couches se fait par l'intermédiaire d'un système de monitoring in-situ (optique & quartz) spécifiquement développé pour cet évaporateur.



FIGURE 3.11 – Vue, côté salle propre, de la porte de l'évaporateur BAK1730 et de sa baie de commande dans l'atelier couches minces optiques de Reosc

**Les évaporateurs “BA4” et “BA6”** Le coût d'un run de fabrication dans la BAK1730 étant élevé sa disponibilité pour des opérations de développement est limitée. C'est pourquoi une grande partie des échantillons a été réalisée dans deux évaporateurs de type BAK760 (figure 3.12). Ces évaporateurs présentent l'avantage d'avoir la capacité de réaliser les mêmes procédés que la BAK1730 à moindre coût (temps & matériaux) sur des composants de dimension réduite. Dans ces évaporateurs, le dépôt se fait exclusivement par canons à électrons avec ou sans assistance ionique. Le contrôle de l'épaisseur des couches peut se faire soit par monitoring quartz, soit par monitoring optique. Le chauffage, jusqu'à 250°C, se fait par l'intermédiaire de lampes IR et est contrôlé par des thermocouples. Le vide ( $6.10^{-7}$  mbar) est obtenu grâce une pompe cryogénique. Dans le cadre de l'étude, les substrats sont disposés dans une calotte sphérique dont la hauteur par rapport aux sources est optimisée de manière à minimiser le défaut d'uniformité.

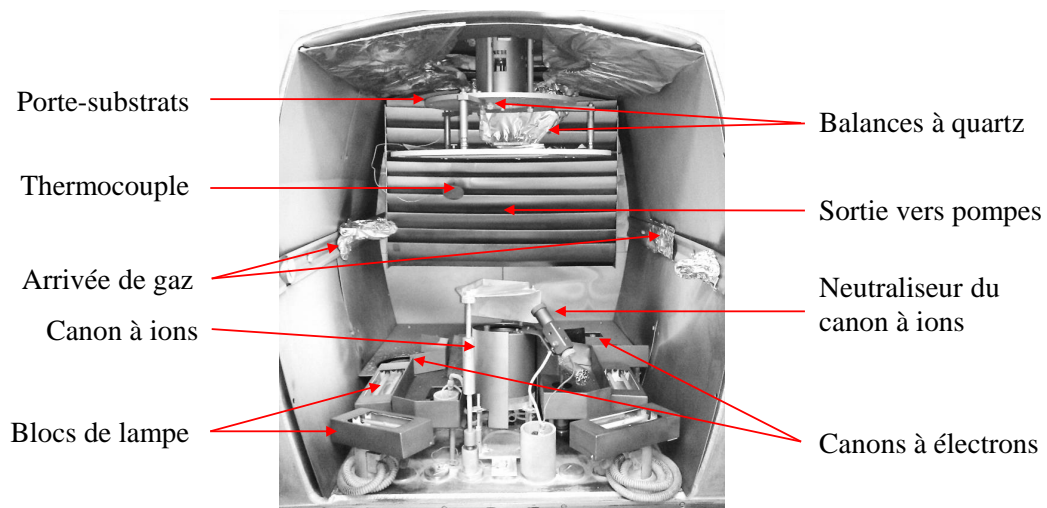


FIGURE 3.12 – Vue de l'intérieur d'un des évaporateurs de type BAK760

**L'évaporateur "BA11"** Enfin, certains échantillons étudiés dans ces travaux ont été réalisés dans un évaporateur  $1130\text{mm}^3$  disposant d'un système de porte-substrats planétaire et un dispositif de chauffage à résistances céramiques permettant d'atteindre plus de  $300^\circ\text{C}$  sur le substrat. Le contrôle de la température se fait par visée pyrométrique. Le vide de  $10^{-7}\text{mbar}$  est atteint grâce à deux pompes cryogéniques. Plusieurs technologies de dépôt peuvent être utilisées dans cet évaporateur et le suivi de l'épaisseur des couches se fait par monitoring quartz et optique (jusque dans l'UV).

### 3.3 Caractérisations

*Le but de cette partie est de présenter les différentes propriétés des matériaux et des empilements qui ont été caractérisés pour en expliquer l'intérêt et décrire les méthodes de mesure mises en œuvre.*

#### 3.3.1 Propriétés physiques

La **densité** d'un matériau en couches minces est un paramètre très important car elle contribue à sa stabilité dans un environnement donné. En effet, un matériau dense restera stable quel que soit l'environnement, tandis qu'un matériau poreux aura des propriétés variables selon ses conditions d'utilisation. Or pour un fabricant de composants optiques la variabilité des propriétés optiques avec l'environnement est un paramètre essentiel à maîtriser.

Deux méthodes peuvent être utilisées pour caractériser l'effet de la porosité d'un matériau sur ses propriétés optiques à travers sa capacité à absorber et désorber de l'eau : 1) la recherche des bandes d'absorption caractéristiques de la présence d'eau dans le spectre infrarouge (cf. chapitre 4) ou 2) la quantification du décalage spectral de la fonction optique entre une mesure réalisée à pression ambiante et une mesure réalisée sous vide (figure 3.13). Dans le cas d'un traitement dense, le décalage spectral entre l'air et le vide est nul et la mesure du spectre IR ne fait apparaître aucune des bandes d'absorption de l'eau.

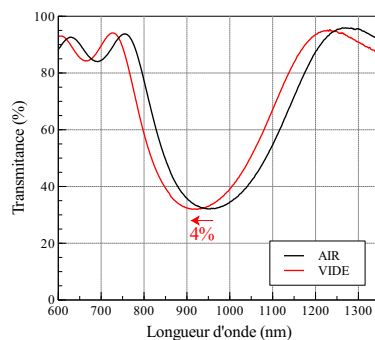


FIGURE 3.13 – Exemples de mesures spectrales de caractérisation du décalage Air/Vide d'un empilement multidiélectrique. Mesure en transmission en incidence normale avant et après 12h de pompage à  $10^{-4}$  mbar.

Les **défauts de surface**, avant et après traitement, sont caractérisés par des contrôles d'aspect consistant à cartographier et à classifier l'ensemble des défauts ponctuels et étendus. Deux normes sont majoritairement utilisées pour définir et/ou spécifier un état de surface :

- La norme MIL-O-13830 qui s'exprime sous la forme d'un couple de nombre : Scratch/Dig où le nombre "Scratch" design la longueur maximale, en micron, acceptable pour une rayure et le nombre "Dig" design le diamètre maximal en dixième de micron acceptable pour un défaut ponctuel.
- la norme ISO 10110-7 qui précise le nombre, la taille et le type de défauts acceptables et différencie l'état de surface avant et après traitement (5/ 2x0.1 Lx0.001 C1x0.5 L2x0.002).

La caractérisation des défauts de surface se fait principalement visuellement par un opérateur qualifié mais peut également être effectuée de manière automatique, lorsque la taille des composants est relativement faible, sous un microscope doté d'un logiciel de balayage, de détection et d'analyse.

L'analyse de la **microstructure** des couches n'est pas indispensable dans la réalisation de traitements couches minces optiques mais peut être utile pour comprendre certains comportements des matériaux et pour identifier la qualité d'un procédé. La méthode qui convient le mieux pour caractériser les matériaux couches minces est la diffraction des rayons-X.

Le principe de la mesure est de venir faire diffracter un faisceau de rayons-X avec la maille cristalline d'un échantillon en faisant varier l'angle d'incidence. On obtient un spectre d'intensité en fonction de l'angle sur lequel on est capable d'identifier des pics de signal dont la position est caractéristique de la maille, dont la largeur est caractéristique de la taille des cristaux et dont l'intensité est caractéristique du nombre de cristallites.

Les mesures de diffraction des rayons-X (DRX) présentées dans le cadre de ces travaux ont été menées au sein du laboratoire Im2np dans les conditions suivantes : Le diffractomètre utilisé pour réaliser ces mesures est un *Philips X'Pert MPD*. Il fonctionne avec un tube de Cu qui émet donc les raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  aux longueurs d'ondes respectives : 1.54056Å et 1.5443Å. La raie  $K_{\beta}$  est absorbée par un filtre de Ni placé juste devant la source. Le détecteur est un détecteur dit « rapide » de type *XCelevator de Panalytical* (ex *Philips*). La structure cristalline est donnée en comparant la position des pics de diffraction avec les fiches références PDF (Powder Diffraction Data), le nombre de pics donne une indication sur leur orientation préférentielle. Le diamètre des cristallites est calculé à partir de la largeur des pics.

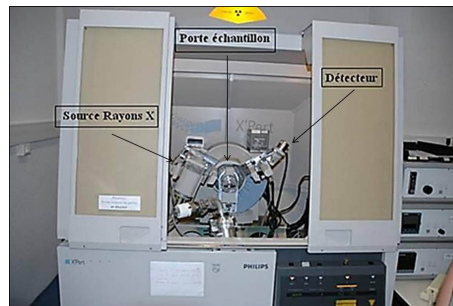


FIGURE 3.14 – Photographie de l'instrument de caractérisations des matériaux par diffraction des rayons-X

### 3.3.2 Propriétés optiques

Les **mesures spectrales** constituent l'essentiel des caractérisations effectuées sur les couches minces optiques. En effet, elles renseignent d'une part sur la qualité de la fonction optique par la mesure de la réponse spectrale dans la gamme d'intérêt (miroir, anti-reflet, dichroïque, etc.). D'autre part elles constituent la base du rétro-engineering puisque c'est à partir de ces mesures que l'on est capable de remonter à l'ensemble des épaisseurs de couches et dans le cas des couches élémentaires, à la dispersion d'indice du matériau.

De plus, comme cela a été décrit précédemment, les mesures spectrales dans l'IR, et les mesures du décalage air/vide dans la gamme spectrale d'intérêt du composant peuvent être utilisées pour caractériser la porosité du traitement révélée par sa capacité à absorber et désorber de l'eau.

Les mesures spectrales dans l'UV permettent de déterminer l'énergie de la bande interdite que l'on déduit de la longueur d'onde de coupure, c'est-à-dire la longueur d'onde à partir de laquelle l'absorption augmente brutalement.

Les mesures spectrales dans le visible et le proche IR ont toutes été réalisées à Reosc avec un spectrophotomètre *Perkin ELMER LAMBDA 950 UV/Vis/NIR* et *LAMBDA 9*. Pour le cas particulier des mesures en réflexion, le module URA (Universal Reflectance Accessory) a été

utilisé permettant ainsi de faire des mesures absolues. Un spectromètre manuel est également utilisé pour vérifier les niveaux de réflectivités le cas échéant. Les mesures dans l'IR sont réalisées sur un spectrophotomètre *Shimadzu* ou un *FTIR<sup>3</sup> Brücker*.

Dans le processus de développement des optiques laser dédiées au régime nanoseconde, Reosc a associé la maîtrise de la réalisation des traitements à des **mesures d'absorption**. Des valeurs faibles d'absorption permettant de confirmer le déroulement nominal d'un procédé de dépôt, l'ensemble des composants laser sont mesurés en absorption. Cette mesure est réalisée par déflexion photo-thermique (ou effet mirage) [34]. Le dépôt à caractériser est réalisé sur un substrat silice 7980 dont l'absorption est suffisamment faible pour être négligeable devant l'absorption du dépôt. L'échantillon de mesure est irradié à une incidence de 45° avec un laser à vapeur de cuivre polarisé horizontalement (P). Le laser qui émet avec une puissance de 20W à 510nm est focalisé à la surface de l'échantillon avec un diamètre de 300µm. La mesure consiste à mesurer la déviation induite d'un faisceau He-Ne tangent à la surface de l'échantillon sur la zone irradiée. La déviation du faisceau est calibrée par la mesure d'un miroir aluminium (couche d'aluminium déposée sur un substrat silice) dont le coefficient de réflexion dans les conditions d'opération du dispositif de mesure d'absorption ( $\approx 12\%$ ) est connu avec une précision de 0.2% (mesure au réflectomètre). La calibration du dispositif est validée par la mesure d'un échantillon étalon de très faible absorption ( $< 20ppm$ ). La précision de la mesure d'absorption est estimée à  $\pm 20ppm$  en absolue et à  $\pm 10ppm$  en relatif, c'est à dire pour des mesures obtenues à partir de la même mesure de calibration. Le dispositif de mesure est schématisé sur la figure 3.15.

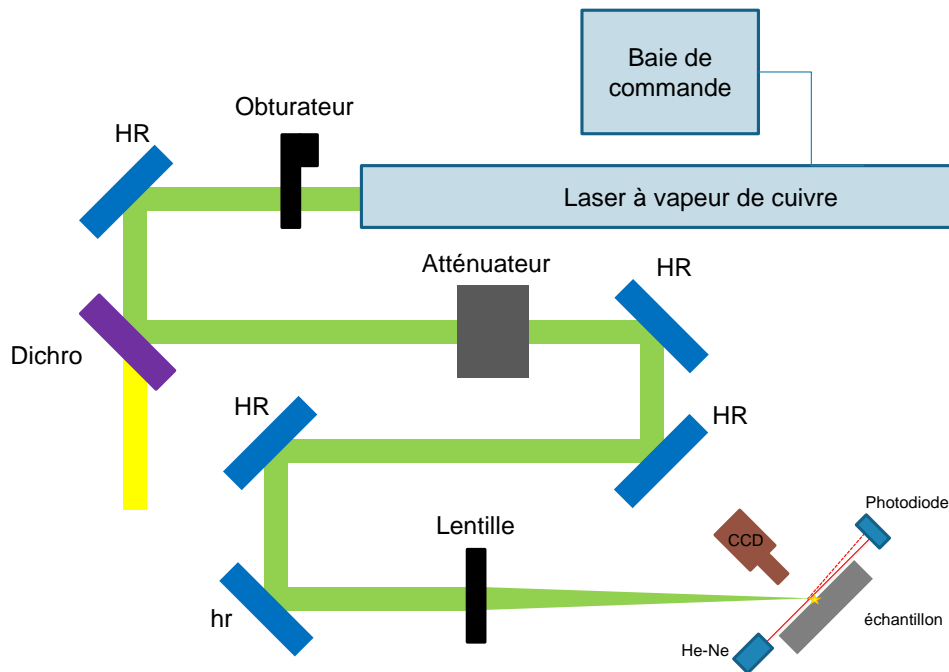


FIGURE 3.15 – Schéma du principe de fonctionnement du banc de mesures d'absorption

Dans le cas des couches élémentaires, la mesure de l'absorption  $A$  permet, en connaissant l'épaisseur du traitement  $e$ , mesuré avec une précision d'au moins  $\pm 5\%$  et en négligeant par hypothèse les réflexions multiples, de calculer le coefficient d'extinction  $k$  du matériau (eq. 3.18).

$$k = \frac{\lambda \times A}{4 \times \pi \times e} \quad (3.18)$$

Dans le cadre de développement de traitement pour les lasers à impulsions femtosecondes, l'un des paramètres les plus importants pour la conservation de la durée des impulsions est la **dispersion de vitesse de groupe** (GDD<sup>4</sup>). La GDD s'exprime en unité de temps au carré et correspond mathématiquement à la dérivée seconde de la phase. Physiquement cela correspond à la dispersion chromatique induite par un composant ou un système (on notera que la GDD s'applique à un composant ou un système défini alors que la GVD<sup>5</sup>, exprimée en  $\text{fs}^2/\text{nm}$ , s'applique à un milieu, un matériau comme une fibre optique par exemple). Dans le cadre de la fabrication des optiques pour les lasers à courte durée d'impulsions et larges gammes spectrales on cherche à minimiser la GDD. La figure 3.16 chiffre l'impact de la GDD d'un composant sur la durée d'une impulsion après son passage.

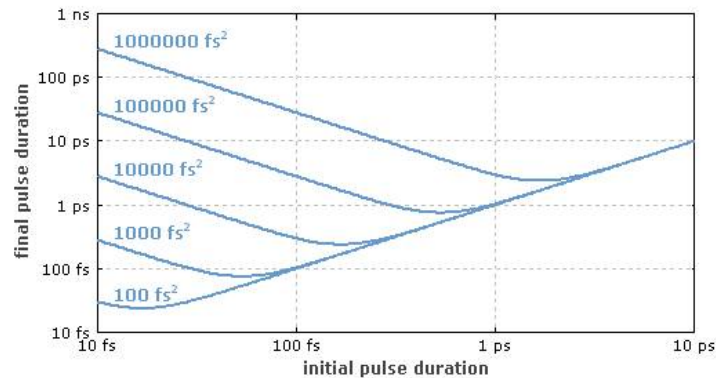


FIGURE 3.16 – Allongement de la durée d'une impulsion après passage dans différents systèmes avec une certaine valeur de GDD. [82]

Reosc ne disposant pas sur site de moyen de mesure de la GDD, une comparaison des simulations effectuées avec TFCalc<sup>®</sup> avec des mesures sur des échantillons produit par Reosc a été réalisé (figure 3.17). Les résultats des simulations sont obtenus après ajustement des mesures spectrales et les mesures ont été réalisées par l'équipe de développement du laser Apollon dans l'entreprise *Ultra Fast Innovations GmbH* (avec la méthode RSI<sup>6</sup> d'une part puis sur leur instrument Chromatis d'autre part). Les résultats des comparaisons montrent que les simulations sont en accord avec les mesures, ce qui donne la possibilité en phase de design d'optimiser en toute confiance la GDD à partir des simulations. Le lecteur pourra consulter les références [12, 18, 41, 96] pour plus de précisions sur les techniques de mesure de la GDD.

### 3.3.3 Propriétés mécaniques

Les **épaisseurs mécaniques** des dépôts couches minces sont souvent mesurées pour calibrer les systèmes de monitoring in-situ notamment lors de modification de la configuration des évaporateurs (par exemple lors de la modification de la position des sources) ou lors du développement de nouveaux matériaux et procédés. Cependant, la mesure de l'épaisseur mécanique est principalement utilisée pour confirmer la valeur de l'épaisseur optique obtenue par ajustement des mesures spectrales.

Pour cette étude les mesures d'épaisseur ont été réalisées à l'aide d'un profilomètre *DEKTA* 3030 qui permet de mesurer des épaisseurs allant de plusieurs dizaines de nanomètres à plusieurs centaines de microns avec une précision de quelques nanomètres.

4. GDD : Group Delay Dispersion

5. GVD : Group Velocity dispersion

6. RSI = Resonance Scanning Interferometer



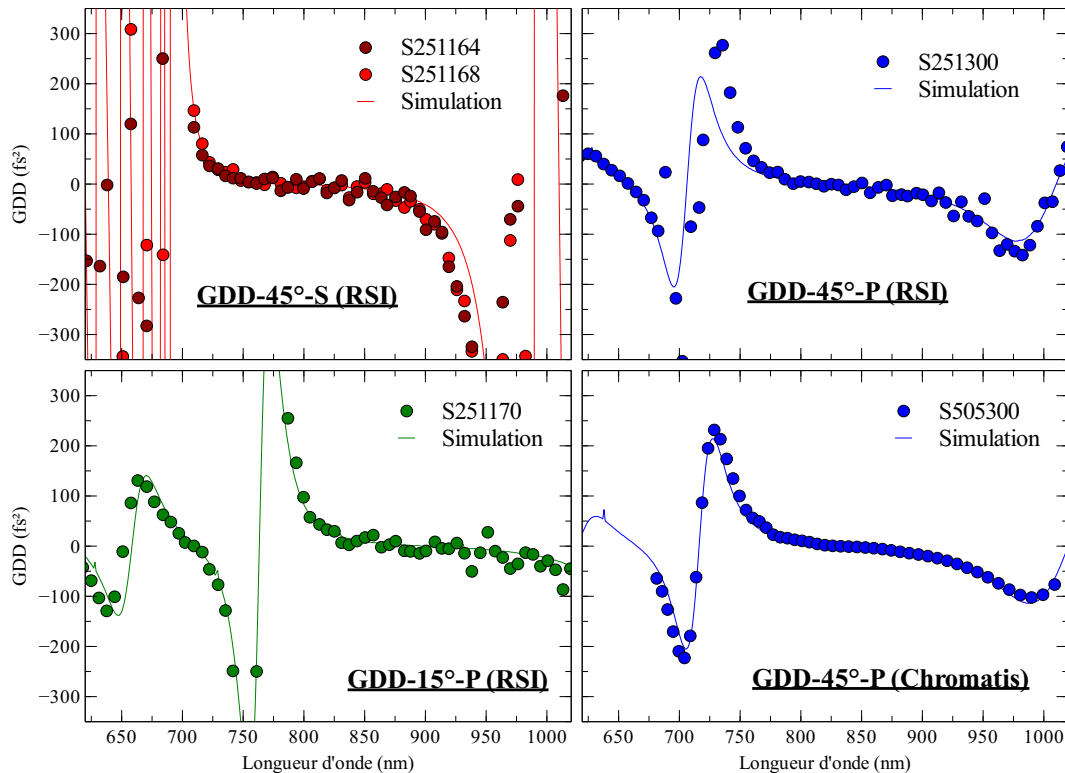


FIGURE 3.17 – Comparaison des simulations et des mesures de GDD sur des échantillons produits par Reosc

Un dépôt de couches minces génère des **contraintes résiduelles** que l'on peut associer à trois phénomènes cumulés [46] :

- l'un d'origine **thermique** lié à la différence des coefficients de dilatation de la couche et du substrat,
- un autre d'origine **intrinsèque** qui génère des contraintes, pendant le dépôt, par l'ensemble des processus conduisant à la variation du volume de la couche mince à l'issue de son ancrage à la surface du substrat.
- et le dernier d'origine **extrinsèque** générant des contraintes par l'interaction du composant avec son environnement, en particulier l'adsorption d'eau et d'oxygène.

La connaissance des contraintes générées par un traitement est indispensable pour la gestion de la planéité des composants de grandes dimensions. La détermination des contraintes générées par le traitement couches minces est calculée à partir de mesure du rayon de courbure du système couche/substrat par interférométrie différentielle (figure 3.18) à 633nm en configuration *fizeau* avec un *Zygo Mark II*.

En fait, un échantillon dédié à la mesure de contraintes (Module d'Young  $E_S$  connu, épaisseur  $e_S$  calibrée et face non-parallèle) est placé dans l'évaporateur pendant le dépôt d'épaisseur  $e_t$  à caractériser. Le front d'onde de cet échantillon est mesuré avant et après traitement. La différence de focus  $\Delta_f$  est calculée grâce à un algorithme réalisant le fit des polynômes de Zernike. Enfin, la contrainte résiduelle  $\sigma$  est calculée selon l'équation 3.19.

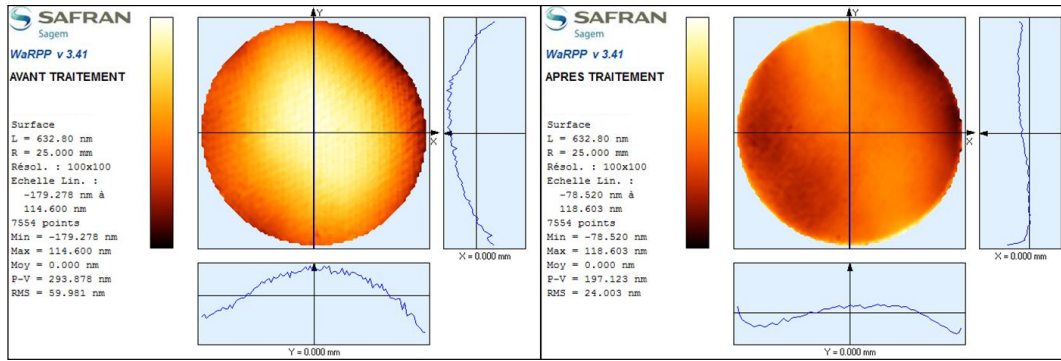


FIGURE 3.18 – Exemples de cartes de front d’onde avant et après traitement sur un échantillon dédié au calcul des contraintes induites par le traitement couches minces

$$\sigma = \frac{4}{3} \times \left( \frac{e_s}{\Phi_u} \right) \times \frac{E_s \times \Delta_f}{e_t} \quad \text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l} \sigma : \text{Contrainte} \\ e_s : \text{Épaisseur du substrat} \\ \Phi_u : \text{Diamètre utile} \\ E_s : \text{Module d'Young du substrat} \\ e_t : \text{Épaisseur du traitement} \\ \Delta_f : \text{Variation de focus} \end{array} \right. \quad (3.19)$$

En plus de la modification des propriétés optiques des matériaux, la densité des couches minces influence également leur niveau de contrainte et leur évolution. Par exemple (figure 3.19) les contraintes d’un miroir réalisé sous assistance ionique vont avoir tendance à être fortement en compression (contraintes négatives) et rester stable alors que les contraintes d’un miroir réalisé sans IAD (courbe rouge) vont avoir tendance à évoluer rapidement vers la tension (pente positive). La profonde connaissance de l’évolution des contraintes des procédés constitue un enjeu majeur pour la maîtrise des spécifications de planéité des composants de grandes dimensions.

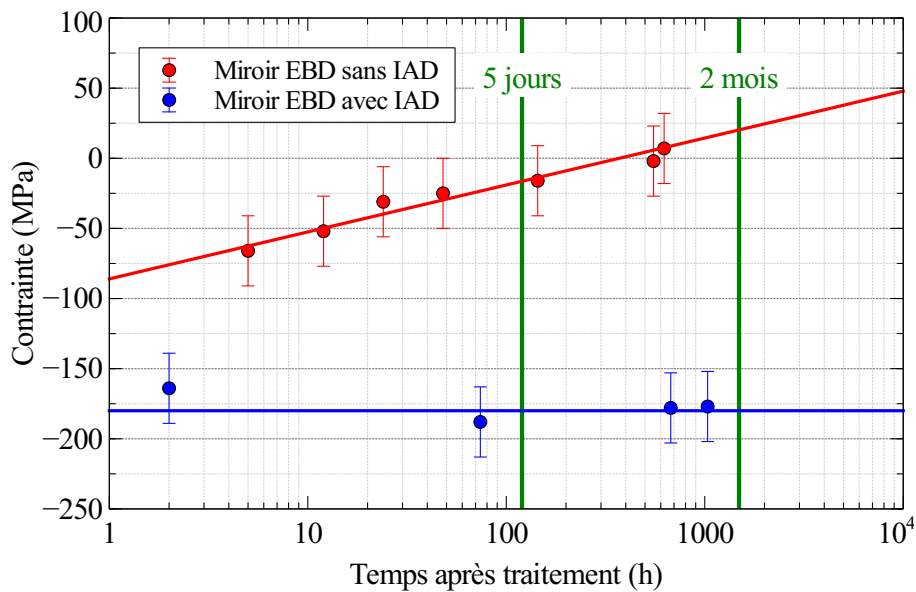


FIGURE 3.19 – Évolution typique des contraintes au cours du temps de deux miroirs réalisés par EBD avec ou sans IAD.





## Chapitre 4

# Tenue au flux laser de matériaux couches minces en régime femtoseconde

« Créer, c'est résister. Résister, c'est créer. »

Stéphane Hessel

### Sommaire

---

<b>4.1 Études de matériaux diélectriques</b> . . . . .	<b>78</b>
4.1.1 Le dioxyde d'hafnium . . . . .	78
4.1.2 Le dioxyde de silicium . . . . .	84
4.1.3 Autres matériaux diélectriques . . . . .	88
4.1.4 Bilan . . . . .	97
<b>4.2 Comportement des matériaux dans un empilement réfléchissant</b> . . . . .	<b>99</b>
4.2.1 Design . . . . .	99
4.2.2 Fabrication . . . . .	100
4.2.3 Caractérisations . . . . .	100
4.2.4 Tenue au flux laser . . . . .	101

---

## Introduction

C'est à partir d'une succession d'itérations entre les campagnes de production d'échantillons et les campagnes de tests que ces travaux ont été menés. Les objectifs de ces différentes mesures ont été multiples.

En effet, le développement d'une technologie de dépôt de couches minces optiques pour une application donnée passe par le choix des matériaux et des procédés d'évaporation compatibles entre eux et compatibles avec cette application. C'est pourquoi nous avons cherché à étudier la résistance au flux laser de plusieurs matériaux et procédés. De plus, le développement d'une technologie de dépôt de couches minces optiques pour une application laser nécessite l'identification des conditions d'irradiation les plus représentatives, c'est pourquoi différentes conditions de test ont été étudiées. D'autre part, la perspective d'améliorer les seuils de résistance au flux laser des matériaux par des procédés post-dépôt nous a poussé à investiguer dans cette direction. Enfin, pour être en mesure de concevoir tous types d'empilement, la corrélation entre la résistance au flux laser des matériaux déposés en couches élémentaires et les matériaux au sein d'un empilement doit être étudiée. Et finalement, il est possible de s'intéresser, lorsque de nombreux échantillons sont testés dans différentes conditions, aux mécanismes fondamentaux de l'endommagement laser en régime femtoseconde.

La première partie de ce chapitre est consacrée à l'étude des propriétés de matériaux diélectriques, réalisés sous forme de couches élémentaires dans différentes conditions, sous différentes conditions de test, avec un focus particulier sur le  $\text{HfO}_2$  et le  $\text{SiO}_2$ . La seconde partie du chapitre porte sur la résistance au flux laser des matériaux dans des empilements réfléchissant une large bande spectrale.

### 4.1 Études de matériaux diélectriques

*Des dépôts de couches élémentaires de matériaux diélectriques ont été réalisés dans les évaporateurs décrits précédemment (voir 3.2). Les procédés utilisés n'étant pour certain pas récurrents, et la réalisation de ces échantillons devant s'insérer dans un planning de production assez dense, il n'a pas toujours été possible de dérouler toute la stratégie habituelle d'optimisation des dépôts. Cela explique la plupart des écarts de qualités et de performances de certains matériaux par rapport aux performances que l'on trouve dans la littérature ou sur le marché.*

#### 4.1.1 Le dioxyde d'hafnium

##### 4.1.1.1 Paramètres de fabrication

Dans le but d'évaluer l'influence des procédés de dépôts et des propriétés physiques des matériaux couches minces sur la tenue au flux laser en régime d'impulsions femtosecondes, plusieurs échantillons de  $\text{HfO}_2$  ont été réalisés à partir de différents jeux de paramètres de dépôts synthétisés dans le tableau 4.1. Les principaux paramètres étudiés sont les matériaux source ( $\text{Hf}$  et  $\text{HfO}_2$ ) ou l'assistance ionique. Les autres paramètres (vitesse de dépôt, température, pression, etc.) sont gardés confidentiels. Tous les dépôts de  $\text{HfO}_2$  ont été réalisés dans un évaporateur de type BAK760 (voir 3.2.2.4) en utilisant le contrôle optique et en visant une épaisseur de  $\lambda/2$  à 800nm.

Échantillon	HfO <sub>2</sub> #23	HfO <sub>2</sub> #24	HfO <sub>2</sub> #29	HfO <sub>2</sub> #30	HfO <sub>2</sub> #28
Source	Hf	Hf	HfO <sub>2</sub>	HfO <sub>2</sub>	HfO <sub>2</sub>
IAD	non	non	non	non	oui
Procédé	A	B	C	D	E

TABLEAU 4.1 – Principaux paramètres de dépôts différenciant appliqués lors de la fabrication des échantillons de HfO<sub>2</sub>.

#### 4.1.1.2 Caractérisations

Après chaque opération d'évaporation, les dépôts sont caractérisés spectralement de l'UV à l'IR (190nm – 10µm). Les mesures en transmission sur le spectre UV-Vis sont réalisées à 0° d'incidence sur un substrat en Silice7980. Les mesures en réflexion sur le spectre UV-Vis sont réalisées à 8° d'incidence sur un substrat en Silice7980 dont la face arrière est dépolie. Les résultats de ces mesures permettent de déduire la dispersion d'indice grâce à un ajustement réalisé sous TFCalc™ ainsi que l'énergie de la bande interdite (longueur d'onde de coupure définie comme la longueur d'onde pour laquelle la transmission atteint 50%). Ces données sont synthétisées dans le tableau 4.2. Les mesures en transmission sur le spectre IR sont réalisées à 0° d'incidence sur un substrat en germanium. La mesure sur le spectre IR permet de révéler la présence de substances adsorbées par le dépôt (i.e. de l'eau) grâce aux pics d'absorption caractéristiques. Les mesures spectrales de ces échantillons de HfO<sub>2</sub> sont représentées figure 4.1.

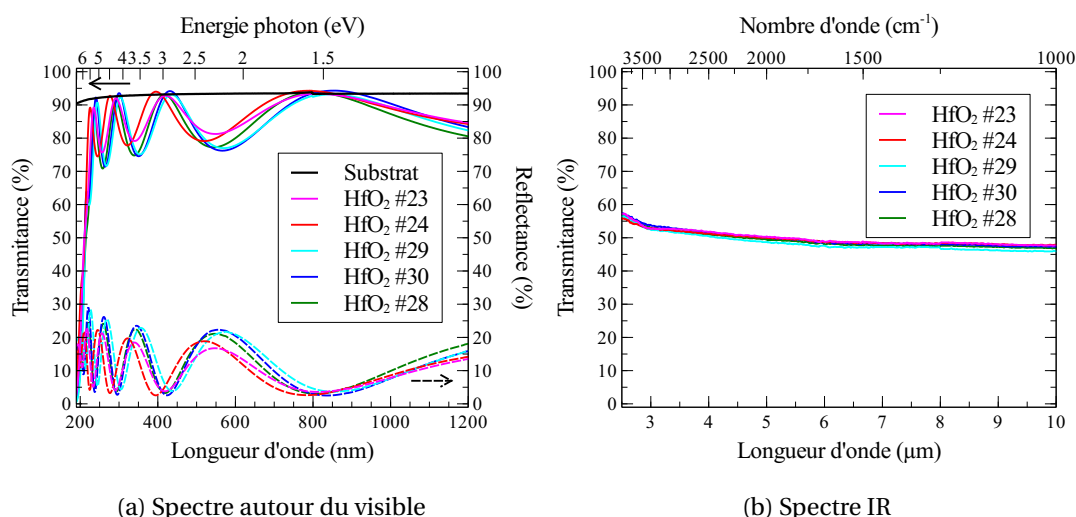


FIGURE 4.1 – Caractérisation spectrale des couches élémentaires de HfO<sub>2</sub>

On peut observer que les courbes de transmission des échantillons HfO<sub>2</sub> #24 et HfO<sub>2</sub> #30 sont à leur maxima locaux au dessus de la courbe du substrat. En fait cela correspond à un léger gradient d'indice, ce qui signifie que l'indice n'est pas constant sur toute l'épaisseur de la couche. On distingue également deux groupes d'amplitude des oscillations. En effet les échantillons réalisés à partir de la source Hf présentent des oscillations plus faibles que celles des échantillons fabriqués à partir de HfO<sub>2</sub> ce qui correspond à un niveau d'indice de réfraction plus faible pour les échantillons fabriqués à partir de Hf. La position horizontale des extrema correspond à l'épaisseur optique réalisée. On observe bien un maximum autour de 800nm, qui confirme l'épaisseur de  $\lambda/2$  à 800nm. Bien que la même calibration du système optique ait été utilisée pour tous les échantillons, on constate de légères différences d'épaisseur. Cela s'explique par la densité du matériau qui crée un décalage air-vide différent et un bruit différent sur le signal optique entraînant des différences dans l'analyse du signal modifiant la précision sur l'identification du

critère de fin de couche. Enfin, la longueur d'onde de coupure est très proche pour l'ensemble des matériaux signifiant une valeur de bandgap quasi identique pour l'ensemble des échantillons. Ces éléments observables sur la courbe UV-Vis sont confirmés par les fits réalisés ainsi qu'à travers les mesures mécaniques.

Sur le spectre IR on ne distingue pas de pic d'absorption particulier montrant que la densité de chacun des matériaux est suffisante pour qu'il n'absorbe qu'une quantité négligeable (non détectable) d'eau.

L'épaisseur mécanique des couches est mesurée avec un profilomètre mécanique (voir 3.3.3). L'absorption des couches est mesurée par effet mirage à 515nm (voir 3.3.2). Les contraintes sont calculées par une mesure différentielle de front d'onde par interférométrie à 633nm de la surface d'un échantillon avant et après traitement (voir 3.3.3). Les résultats de ces caractérisations sont résumés dans le tableau 4.2. Les mesures des épaisseurs mécaniques au profilomètre sont en accord avec les courbes présentées précédemment. Le calcul des indices de réfraction montre bien un écart dépendant du matériau source. Concernant l'énergie de bandgap, on constate que les valeurs sont très similaires. Les mesures d'absorption montrent que les échantillons sont très peu absorbants. L'absorption plus forte sur l'échantillon avec le procédé IAD s'explique par une légère sous stœchiométrie. Enfin le calcul des contraintes différencie bien les échantillons par rapport à leur matériau source. En fait, il est bien connu que l'évaporation réactive (avec le Hf) forme un matériau plus dense (donc moins en compression) que l'évaporation à partir de HfO<sub>2</sub>.

Échantillon	HfO <sub>2</sub> #23	HfO <sub>2</sub> #24	HfO <sub>2</sub> #29	HfO <sub>2</sub> #30	HfO <sub>2</sub> #28
<b>Épaisseur (nm)</b>	220	200	214	224	224
<b>Indice de réfraction</b>	1.83	1.87	1.94	1.95	1.93
<b>Énergie de bandgap (eV)</b>	5.89	5.85	5.81	5.86	5.77
<b>Absorption (ppm)</b>	40	40	60	30	280
<b>Coefficient d'extinction</b>	7.4 10 <sup>-6</sup>	8.1 10 <sup>-6</sup>	1.1 10 <sup>-5</sup>	5.4 10 <sup>-6</sup>	5.1 10 <sup>-5</sup>
<b>Contraintes (MPa)</b>	160	81	225	234	256

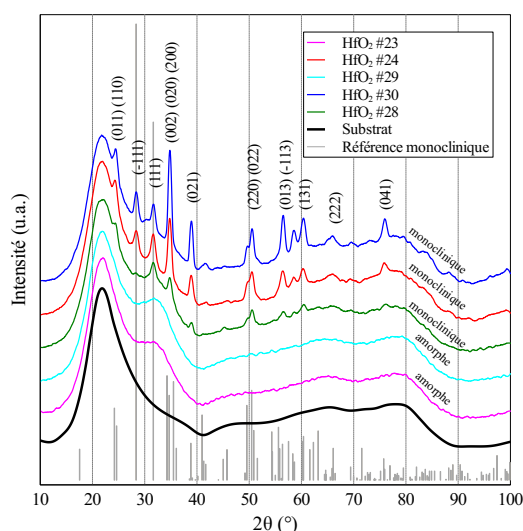
TABLEAU 4.2 – Synthèse des propriétés des échantillons de HfO<sub>2</sub>

Des mesures de DRX ont été menées sur les échantillons utilisés pour les mesures d'absorption. Les résultats des mesures sont présentés figure 4.2.

Les mesures de diffraction des rayons X permettent de constater que la cristallinité des couches est différente selon le procédé utilisé. En effet les procédés de dépôt des échantillons HfO<sub>2</sub> #23 et HfO<sub>2</sub> #29 ont conduit à la formation d'une couche amorphe tandis que les trois autres procédés ont conduit à la formation d'une couche polycristalline dont la phase monoclinique est la plus présente. On constate, en corrélant ces valeurs avec les précédentes caractérisations optiques qu'il n'y a pas de lien direct entre les propriétés optiques des couches élémentaires de HfO<sub>2</sub> et leur taux de cristallinité.

#### 4.1.1.3 Tenue au flux laser

Pour pouvoir comparer les procédés, indépendamment de l'épaisseur des couches, les seuils de tenue au flux sont pondérés par le maximum du champ électrique calculé, relativement au champ incident, dans la couche et selon les conditions de test, par rapport à l'intensité du champ incident. Ainsi on définit le seuil intrinsèque du matériau. L'ensemble des échantillons de HfO<sub>2</sub> fabriqués étant d'épaisseur et d'indice proches, la répartition de l'intensité du champ est très similaire. L'allure de la répartition du champ électrique dans une couche de HfO<sub>2</sub> semblable

FIGURE 4.2 – Spectre de diffraction des rayons X des différents échantillons de HfO<sub>2</sub>

à celles fabriquées est donnée figure 2.3. Les valeurs du maximum de l'intensité du champ électrique de chacune des couches de HfO<sub>2</sub> sont consignées dans le tableau 4.3.

Les indices et les épaisseurs étant très proches il est tout à fait logique de trouver un champ électrique d'une intensité maximale similaire dans chacune des couches.

Échantillon	HfO <sub>2</sub> #23	HfO <sub>2</sub> #24	HfO <sub>2</sub> #29	HfO <sub>2</sub> #30	HfO <sub>2</sub> #28
<b>Maximum EFI</b>	0.637	0.626	0.636	0.637	0.622

TABLEAU 4.3 – Intensité maximum du champ électrique (EFI) dans les conditions de tests (1030nm, 0°) dans la couche de HfO<sub>2</sub> de chaque échantillon fabriqué.

Afin de réaliser ces tests d'endommagement laser, le dépôt de chaque couche a été réalisé sur un substrat prismatique en silice d'épaisseur 5mm et de diamètre 50mm. La surface traitée est préparée selon une procédure spécifiquement développée pour les applications haute tenue au flux laser (voir 3.2.1).

**Tests "normalisés"** Ces couches élémentaires de HfO<sub>2</sub> aux propriétés diverses, liées à l'utilisation de différents paramètres de dépôts, ont été testées au flux laser dans les conditions standards de la plateforme "sub-picoseconde" de l'Institut Fresnel (voir 2.2.1.1).

Échantillon	HfO <sub>2</sub> #23	HfO <sub>2</sub> #24	HfO <sub>2</sub> #29	HfO <sub>2</sub> #30	HfO <sub>2</sub> #28
<b>1:1</b>	1.98 ± 0.10	2.00 ± 0.10	1.91 ± 0.09	1.93 ± 0.09	1.95 ± 0.10
<b>10:1</b>	1.79 ± 0.09	1.80 ± 0.09	1.77 ± 0.09	1.66 ± 0.08	1.75 ± 0.09
<b>100:1</b>	1.58 ± 0.08	1.61 ± 0.08	1.69 ± 0.08	1.49 ± 0.07	1.56 ± 0.08
<b>1000:1</b>	1.49 ± 0.07	1.50 ± 0.07	1.46 ± 0.07	1.51 ± 0.07	1.57 ± 0.08

TABLEAU 4.4 – Synthèse des seuils internes de tenue au flux laser des échantillons de HfO<sub>2</sub> à 1030nm avec différent nombre d'impulsion par site. Les valeurs sont indiquées en J/cm<sup>2</sup>

Les résultats des tests LIDT dans les conditions standards (500fs, 1030nm, 0°) sont reportés dans la figure 4.3. En tenant compte de l'incertitude sur la détermination du

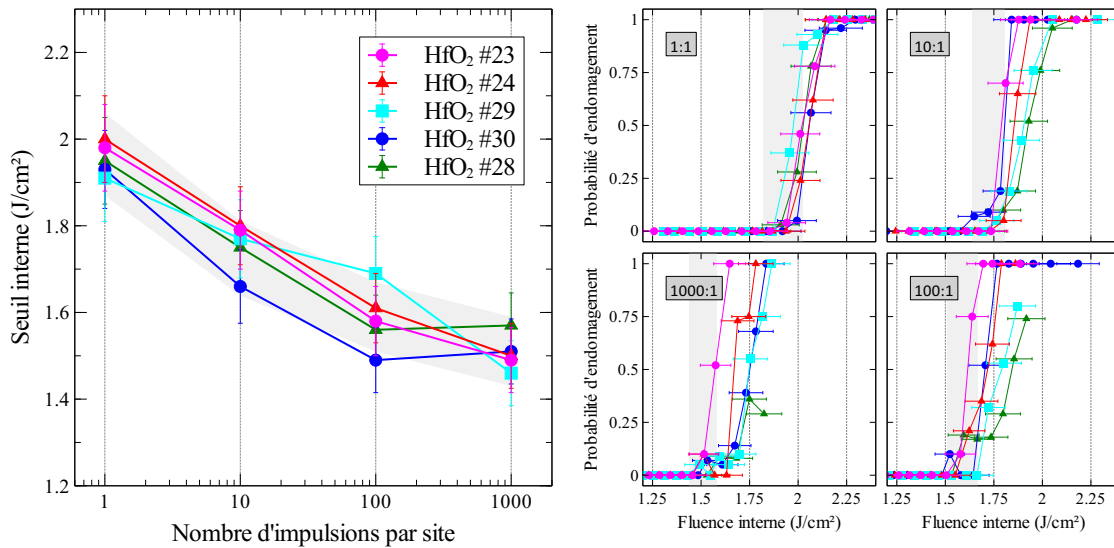


FIGURE 4.3 – Tenue au flux du HfO<sub>2</sub> à 1030nm 0° sur un substrat en silice et dans l’air. [à gauche] Seuil en fonction du nombre d’impulsions par site. [droite] Courbes de probabilité d’endommagement

seuil d’endommagement, ces résultats ne montrent aucune différence significative entre les échantillons. Le seuil d’endommagement laser en mode 1:1 est de 2J/cm<sup>2</sup>, ce qui est en complet accord avec d’autres échantillons de HfO<sub>2</sub>, certains déposés par IBS, testés dans les mêmes conditions.[51] On observe une chute de plus de 20% du seuil de dommage dans les 100 premiers pulses comme observé par MERO et al. [60]. Ce comportement est attribué à la formation de défauts électroniques (“deep” et “shallow” traps) en forte densité dans la bande interdite.[17]

De plus, on ne peut pas faire de corrélation entre les procédés de dépôt ou les propriétés physiques de ces couches de HfO<sub>2</sub> avec leur seuil interne de dommage. Le matériau source n’a pas d’impact significatif tout comme le niveau d’absorption dans le visible. Nous n’observons pas non plus de tendance au niveau de la cristallinité des couches.

Par contre si on regarde le déterminisme des tests multi-tirs, quelques différences se dégagent à la limite des barres d’erreur. En effet, tout d’abord on constate que les échantillons cristallins pour chacun des matériaux source ont un comportement légèrement moins déterministe que la couche amorphe. On constate également que la couche qui a le déterminisme le moins prononcé est la couche faite par IAD qui est faiblement cristallin mais qui présente une forte absorption. Cela peu s’expliquer par la présence de centres absorbants cristallins localisés.[78]

**Tests R:1** Lors de la préparation des tests “normalisés”, il est apparu que les couches de HfO<sub>2</sub> semblaient être plus résistantes lorsque la fluence était augmentée progressivement. C’est pourquoi, pour quantifier l’effet de conditionnement constaté, des tests R:1 ont été menés. Ces tests ont été réalisés en fixant, pour l’ensemble des sites irradiés, la fluence de la première impulsion ( $F_1$ ) puis en l’incrémentant de manière constante ( $F_\delta$ ) pour les impulsions suivantes. Une succession de séries  $i$  (10 sites) est irradiée avec une fluence finale ( $F_{fn}^i$ ) croissante. Le nombre de tirs total par site croît donc avec l’augmentation de la fluence finale (figure 4.4, gauche). De la même manière que pour l’analyse d’un test 1:1, on détermine le seuil de dommage en associant le statut d’endommagement à la fluence finale (fluence maximale) appliquée sur chaque site irradié.

L’efficacité de la méthode devant être évaluée au cours de ces tests, aucune optimisation de l’automatisme de l’expérience n’a été réalisée pour réduire la durée des tests. Au cours de ces tests R:1, la fréquence utilisée est inférieure à 1Hz. Les mêmes paramètres de tests ont été utilisés

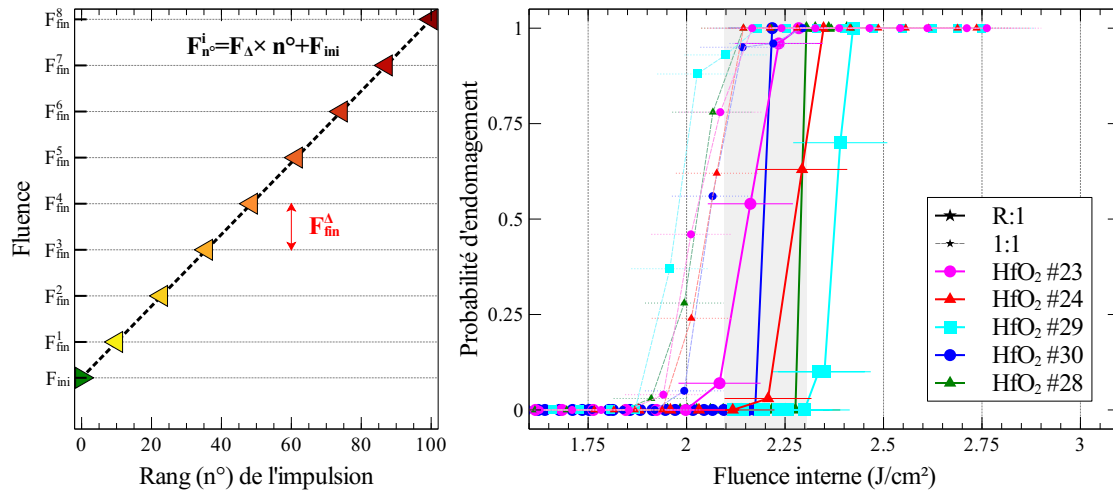


FIGURE 4.4 – Tenue au flux en mode R:1 (à 1030nm, 500fs, 0° dans l'air) de couches de HfO<sub>2</sub> déposées sur des substrats en Silice. [Gauche] Paramètres de la méthode R:1. [Droite] Courbes de probabilité d'endommagement des différents échantillons en mode R:1 comparés au mode 1:1.

pour l'ensemble des échantillons. Cependant, la répartition du champ électrique variant d'un échantillon à l'autre, les paramètres intrinsèques du test varient également légèrement (tableau 4.5).

A la barre d'erreur près, les échantillons de HfO<sub>2</sub> ont tous, dans le régime de conditionnement expérimenté, un comportement déterministe semblable à celui observé en mode 1:1 (figure 4.4, droite). Cependant, malgré une irradiation multiple, les seuils calculés sont tous significativement supérieurs aux seuils mesurés en mode 1:1. Si l'on compare, en tenant compte des barres d'erreur, les seuils d'endommagement de chaque échantillon en mode R:1 (tableau 4.5), seul, l'échantillon HfO<sub>2</sub> #23 a une valeur significativement plus faible que les autres. Cela signifie qu'il y a peut être une prédestination de certains procédés à être plus sensibles au conditionnement ou bien que la méthode de conditionnement doit être adaptée à chaque procédé.

Échantillon	HfO <sub>2</sub> #23	HfO <sub>2</sub> #24	HfO <sub>2</sub> #29	HfO <sub>2</sub> #30	HfO <sub>2</sub> #28
<b>Fluence initiale (<math>F_{ini}</math>)</b>	$1.15 \pm 0.06$	$1.13 \pm 0.06$	$1.18 \pm 0.06$	$1.18 \pm 0.06$	$1.13 \pm 0.06$
<b>Pas (<math>F_{\Delta}</math>)</b>	0.025	0.025	0.025	0.025	0.025
<b>Seuil d'endommagement</b>	$2.04 \pm 0.10$	$2.15 \pm 0.11$	$2.31 \pm 0.11$	$2.19 \pm 0.11$	$2.28 \pm 0.11$
<b>Nombre d'impulsions</b>	35	40	45	40	45

TABLEAU 4.5 – Paramètres et résultats des tests de tenue au flux laser en mode R:1 (à 1030nm, 500fs, 0° dans l'air) réalisés sur les échantillons de HfO<sub>2</sub>. Les valeurs de fluence (*Fluence initiale*, *Pas* et *Seuil d'endommagement*) sont des fluences internes exprimées en  $J/cm^2$ . Le *Nombre d'impulsions* est une indication du nombre d'irradiations réalisées sur la série théorique dont le niveau de la fluence finale correspond au *Seuil d'endommagement*.

**Tests sous vide** Afin d'évaluer l'influence de la pression et de la température sur la résistance au flux laser, des tests ont été réalisés en installant l'échantillon dans un cryostat. La configuration de test est présentée précédemment. Pour des raisons d'encombrement dans l'enceinte à vide, le dépôt est réalisé sur un substrat en silice diamètre 25mm épaisseur 1mm. Le dispositif expérimental utilisé pour les tests est décrit au chapitre 2.

On observe clairement, sur la figure 4.5, qu'entre 100K et 325K et dans ces conditions de tests, la tenue au flux laser du HfO<sub>2</sub> #29, que ce soit en 1:1 ou en 100:1 ne dépend pas de la température.



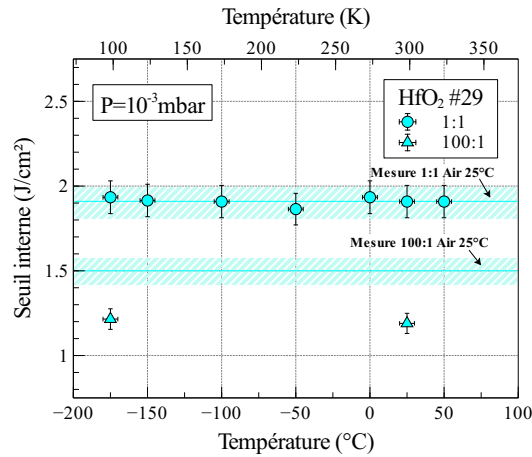


FIGURE 4.5 – Tenue au flux du HfO<sub>2</sub> à 1030nm, 500fs, en incidence normale, à une pression de 10<sup>-3</sup>mbar et à différentes températures. Les lignes horizontales et les zones hachurées correspondent respectivement au seuil et à l’incertitude obtenus à l’air et à température ambiante.

Par contre, alors que dans le cas du mode 1:1 les seuils sous vide sont équivalents au seuil à l’air, pour le mode 100:1 une baisse de 20% est constatée entre les seuils à l’air et les seuils sous vide. Ces résultats sont en accord avec les observations de NGUYEN et al. [70] pour lesquels l’origine de ce phénomène se trouve dans la formation de centres absorbants ponctuels dans la couche, provoqué par la création de lacune d’oxygène au moment de la désorption induite lors de la mise sous vide.

**Morphologies des dommages** L’observation des morphologies des dommages obtenus pour chacune des méthodes de test montre que les comportements sont différents. En effet on voit bien que pour le mode 1:1 le dommage est net, la couche a été ablatée en totalité. En revanche dans le cas du test en mode 10:1, on remarque qu’une structuration irrégulière a lieu, suggérant une modification inhomogène du matériau. Enfin, le dommage caractéristique d’un test avec conditionnement présente une structuration semblable au dommage obtenu en multi-tir mais avec un contour plus défini indiquant que le matériau a subi à la fois une dégradation inhomogène mais moins catastrophique.

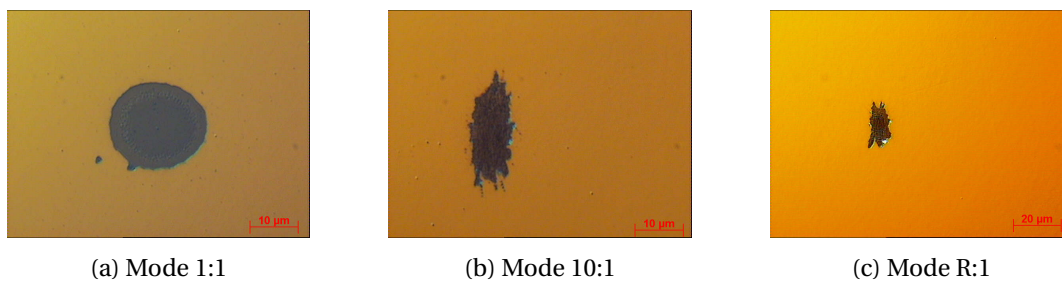


FIGURE 4.6 – Dommages caractéristiques du HfO<sub>2</sub> pour les trois modes d’irradiation expérimentés

## 4.1.2 Le dioxyde de silicium

### 4.1.2.1 Paramètres de fabrication

Deux types de dépôt de silice ont été réalisés. Le premier est un traitement que l’on qualifie de standard (SiO<sub>2</sub> #100) réalisé à partir d’une cible de SiO<sub>2</sub> pur tandis que le second (SiO<sub>2</sub> #103)

est déposé à partir d'une silice dopée avec entre 5% et 10% d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  ("LIMA" commercialisé par Umicore Materials AG), pour réduire la porosité et l'hydrophilie de la couche de silice. Les deux matériaux ont été évaporés dans un évaporateur de type BAK760 (voir 3.2.2.4) et déposés sur des substrats en BK7. Les échantillons  $\text{SiO}_2$  #100 et  $\text{SiO}_2$  #102 ont été déposés avec les mêmes paramètres (matériaux sources différents) pour évaluer l'influence du dopage de la silice. L'échantillon  $\text{SiO}_2$  #104 correspond à une silice déposée à partir d'une cible pure avec des paramètres très énergétiques (utilisation de l'assistance ionique). Enfin l'échantillon  $\text{SiO}_2$  #103 correspond à une silice déposée à partir d'une cible dopée avec des paramètres optimisés pour améliorer la densité. Les éléments différenciant de chacun des échantillons sont reportés dans le tableau 4.6.

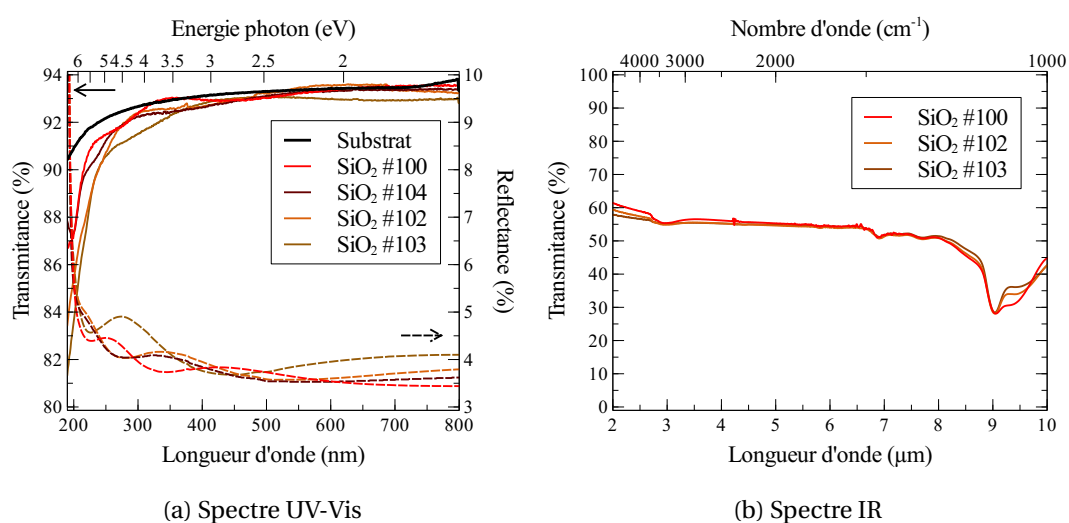
Échantillon	$\text{SiO}_2$ #100	$\text{SiO}_2$ #104	$\text{SiO}_2$ #102	$\text{SiO}_2$ #103
Cible	$\text{SiO}_2$	$\text{SiO}_2$	LIMA	LIMA
Paramètres	A	B	A	C
IAD	Non	Oui	Non	Non

TABLEAU 4.6 – Paramètres de dépôt des échantillons de  $\text{SiO}_2$ .

#### 4.1.2.2 Caractérisations

Chacun des dépôts est caractérisé en terme d'épaisseur mécanique, d'absorption (à 510nm) et d'indice de réfraction (à  $1\mu\text{m}$ ). Les résultats sont portés dans le tableau 4.7. Des mesures spectrales de l'UV à l'IR ont également été réalisées (figure 4.7).

Échantillon	$\text{SiO}_2$ #100	$\text{SiO}_2$ #104	$\text{SiO}_2$ #102	$\text{SiO}_2$ #103
Épaisseur (nm)	215	170	180	165
Indice	1.45	1.48	1.47	1.49
Absorption (ppm)	50	70	50	70
Coefficient d'extinction	$9.5 \cdot 10^{-6}$	$1.7 \cdot 10^{-5}$	$1.1 \cdot 10^{-5}$	$1.7 \cdot 10^{-5}$

TABLEAU 4.7 – Caractéristiques des échantillons de  $\text{SiO}_2$ .FIGURE 4.7 – Mesures spectral des couches élémentaires de  $\text{SiO}_2$ 

Malgré les faibles écarts d'indice de réfraction entre les couches déposées et le substrat, les

spectres UV-Visible montrent bien les différences d'épaisseur à travers la position des extrema ainsi que les différences d'indices des différents échantillons grâce à l'amplitude des courbes.

Les différences constatées en terme d'absorption ne sont pas suffisamment significatives pour faire l'objet de commentaires. Les différences d'indice constatées sont liées d'une part à la densité des couches pour ce qui est de comparer les échantillons réalisés avec le même matériau cible. Par contre, le fait que l'indice du matériau dopé à l' $Al_2O_3$  soit plus élevé que le matériau pur est directement lié à la présence de l' $Al_2O_3$  dont l'indice est supérieur à celui de la silice. L'analyse du spectre IR des 4 échantillons fait apparaître une quantité d'eau absorbée différente (baisse de la transmission autour de  $2.9\mu m$ ). En effet les échantillons  $SiO_2$  #103 et  $SiO_2$  #104 ne présentent aucune absorption d'eau contrairement aux échantillons  $SiO_2$  #102 et  $SiO_2$  #100 révélant l'efficacité de l'optimisation des procédés. Le fait que l'absorption d'eau de l'échantillon  $SiO_2$  #102 soit moindre que celle de l'échantillon  $SiO_2$  #100 montre qu'en présence de quelques pourcents d' $Al_2O_3$ , le matériau cible diminue le caractère hydrophile de la silice.

#### 4.1.2.3 Tenue au flux laser

Comme pour les couches élémentaires de dioxyde de hafnium, pour accéder à la valeur intrinsèque de la tenue au flux laser des matériaux, nous avons calculé la répartition du champ électrique dans chacune des couches de silice. Le tableau 4.8 synthétise les valeurs maximales du champ électrique dans la couche de silice, calculées dans les conditions de test. On notera d'une part que le maximum se situe à l'interface entre la couche et le substrat et d'autre part que le substrat étant de nature proche de la couche il y a une forte probabilité que la fluence générée par les phénomènes d'autofocalisation qui ont lieu dans le substrat soit plus critique pour le substrat que la fluence appliquée sur la couche. Cela se traduit par de l'endommagement en face arrière de l'échantillon ou dans le volume du substrat avec propagation du dommage vers la face avant rendant le test inexploitable.

Échantillon	$SiO_2$ #100	$SiO_2$ #104	$SiO_2$ #103
Maximum EFI	0.695	0.688	0.695

TABLEAU 4.8 – Champ Électrique dans  $SiO_2$ .

La comparaison des seuils de tenue au flux laser à 1030nm, 500fs (tableau 4.8) montre que le procédé énergétique de dépôt de la silice ( $SiO_2$  #104) dégrade ses performances de tenue au flux laser. Cela peut s'expliquer par la création de défaut électronique dans le matériau, soit par des impuretés liées à l'utilisation de l'assistance ionique soit d'un défaut de stœchiométrie (lacune ou excès d'oxygène). Le test R:1 ne montre pas d'effet bénéfique du conditionnement de l'échantillon  $SiO_2$  #100. Cela n'exclut pas le fait que la silice puisse être sensible au conditionnement, mais pas avec les paramètres utilisés.

Échantillon	$SiO_2$ #100	$SiO_2$ #104	$SiO_2$ #103
1:1	$2.99 \pm 0.15$	$2.15 \pm 0.11$	$1.83 \pm 0.09$
100:1	$2.1 \pm 0.10$	-	$1.7 \pm 0.08$
R:1	$2.83 \pm 0.14^*$	-	-

TABLEAU 4.9 – TFL dans  $SiO_2$ . (\* Fluence initiale :  $1.1J/cm^2$  - Pas :  $0.04J/cm^2$  - Nombre d'impulsion au seuil d'endommagement : 50).

Les courbes de probabilité d'endommagement (figure 4.8) ne présentent pas de spécificité. On observe un déterminisme plus prononcé dans le cas de l'échantillon silice pure que dans le

cas de l'échantillon LIMA. Cela peut s'expliquer par une inhomogénéité du dopage d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  et/ou des défauts stœchiométriques localisés.

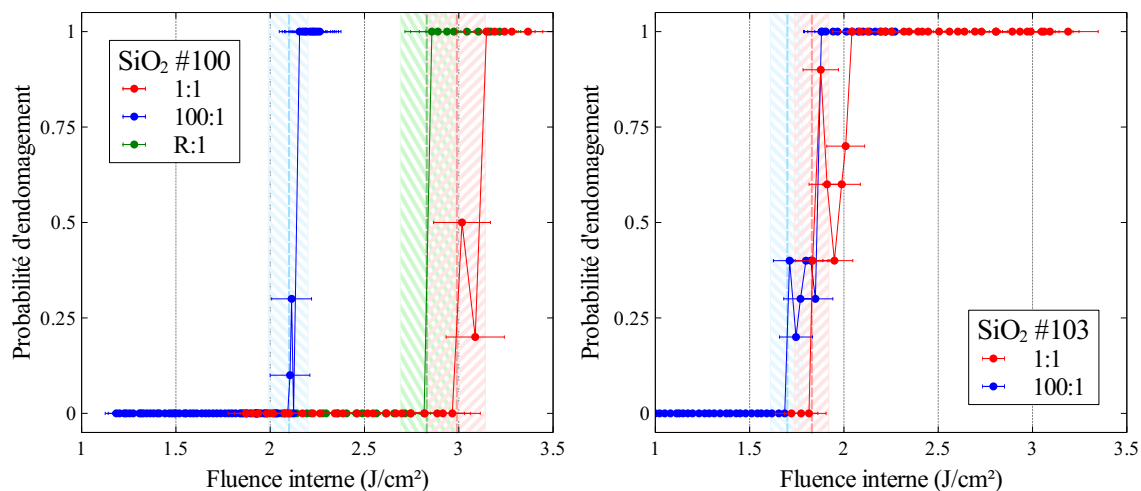
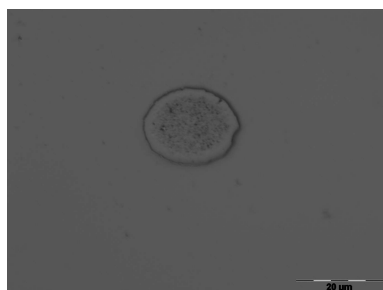


FIGURE 4.8 – Courbes de probabilité d'endommagement des couches élémentaires de  $\text{SiO}_2$

La figure 4.9 montre des morphologies de dommages typiques des couches de silice testées. On constate que sur l'échantillon de Silice "standard"  $\text{SiO}_2$  #100 le dommage se présente sous la forme d'une boursouffure indiquant que la couche tend à se délaminer tandis que le dommage sur une couche de silice dopée se présente sous la forme de nombreux points ce qui suggère des défauts de stœchiométrie locaux.



(a)  $\text{SiO}_2$  en mode 1:1



(b)  $\text{SiO}_2$  dopée  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en mode 1:1

FIGURE 4.9 – Morphologie typiques des couches élémentaires de  $\text{SiO}_2$  et  $\text{SiO}_2$  dopée  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en mode de tir unique et en mode multi-tirs

### 4.1.3 Autres matériaux diélectriques

Le SiO<sub>2</sub> et le HfO<sub>2</sub> forment une paire incontournable dans le design de traitement couches minces optiques lorsque une grande résistance au flux laser est requise [90, 91]. Cependant, il est impossible d’atteindre les largeurs spectrales et les niveaux de réflectivité nécessaire à la propagation d’impulsions ultra-courtes (< 50fs). C’est pourquoi nous avons étudié la tenue au flux laser d’un certain nombre de matériaux diélectriques afin d’identifier ceux qui pourraient leur être associés.

#### 4.1.3.1 Paramètres de fabrication

Chacun des matériaux a été fabriqué en utilisant des procédés compatibles avec le traitement de substrats de grande dimension. En effet, soit les dépôts ont été réalisés directement dans la BAK1730, soit dans une machine de dimension réduite mais avec des procédés transférables. L’épaisseur des couches déposées a été choisie de manière à être représentative, en terme de structure, de son état dans un empilement réfléchissant à 800nm soit une épaisseur optique entre 1 et 2 quarts d’onde. Les procédés utilisés pour la réalisation des échantillons étudiés ici, n’ont pas fait l’objet d’optimisation spécifique dans le but d’obtenir les meilleurs performances optiques. En effet, le procédé de dépôt n’ayant pas d’influence significative sur la tenue au flux laser, l’obtention du matériau avec la bonne stœchiométrie était suffisante. Les données de fabrication des échantillons sont reportées dans le tableau 4.10.

Les échantillons d’oxyde ont été réalisés spécifiquement pour le besoin de cette étude et dans la même campagne de fabrication que les couches élémentaires de SiO<sub>2</sub> décrites précédemment. Les échantillons de fluorures ont été prélevés parmi des couches élémentaires réalisées lors de développements pour des projets différents et il nous a semblé intéressant d’évaluer la performance de ces matériaux. L’intérêt des matériaux fluorures réside dans leur indice qui est plus faible que celui de la silice. La couche de SiO<sub>2</sub>/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> a elle été réalisée plus tard car des développements matériels ont été nécessaires à la mise en œuvre du procédé de dépôt. La réalisation de ces couches s’inspire des résultats sur des mixtures de SiO<sub>2</sub>/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> déposé par IBS, montrant un seuil de tenue au flux laser nettement plus élevé que le Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pur.[56]

Les échantillons ont été déposés sur des substrats de BK7 ou de silice polis et préparés selon les procédures standards dans la fabrication de composants laser.

Échantillon	TiO <sub>2</sub> #134	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> #115	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #116	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #117	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #143	MgF <sub>2</sub> #72	AlF <sub>3</sub> #79	SiO <sub>2</sub> /Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #035
Évaporateur	BA6	BA6	BA6	BA6	BA6	BA11	BA11	BA8
Procédé	IAD	IAD	EBD	EBD	EBD	-	-	EBD
Substrat	BK7	BK7	BK7	BK7	BK7	Silice	Silice	Silice

TABLEAU 4.10 – Données sur la fabrication des différents échantillons de matériaux diélectrique.

#### 4.1.3.2 Caractérisations

Les différentes caractéristiques des matériaux (tableau 4.11) ont été déterminées selon les techniques décrites au chapitre 3 et selon les même objectifs que pour les couches élémentaires de HfO<sub>2</sub> et de SiO<sub>2</sub> décrites précédemment. Les mesures spectrales (Figure 4.10) ont permis de calculer les indices de réfraction, de parfois détecter des absorptions fortes et de calculer les énergies de bande interdite. Elles permettent également de remonter de manière précise à l’épaisseur déposée. La mesure d’absorption à 511nm permet de mesurer les faibles niveaux

absorption et donc de déterminer le coefficient d'extinction de la couche. L'épaisseur mécanique mesurée au profilomètre mécanique est utile pour confirmer l'épaisseur et l'indice déterminés optiquement.

Échantillon	TiO <sub>2</sub> #134	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> #115	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #116	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #117	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #143	MgF <sub>2</sub> #72	AlF <sub>3</sub> #79	SiO <sub>2</sub> /Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #025
Épaisseur (nm)	100	210	195	240	102	257	299	1100
n	2.29	2.03	1.90	1.60	1.82	1.34	1.34	1.65
Bandgap (eV)	3.6	4.3	6.1	6.7	6.5	5.3	>6.7	5.8
Absorption (ppm)	1920	1100	90	350	40	-	-	-
k ( $\times 10^{-5}$ )	78	21	1.9	5.9	1.6	-	-	-

TABLEAU 4.11 – Caractérisation des matériaux diélectrique

Les indices de réfraction calculés sont conformes aux valeurs attendues. En ce qui concerne l'absorption, et à fortiori le coefficient d'extinction, des couches élémentaires de TiO<sub>2</sub> et de Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> sont plutôt élevées par rapport à ce qui est réalisable mais suffisamment faible pour ne pas avoir de doute sur la qualité optique des couches élémentaires.

Les mesures spectrales sur les couches élémentaires de fluorures montrent bien que leur indice est plus faible que le substrat (silice). En effet le signal de transmission mesuré reste supérieur (anti-reflet) à la transmission du substrat non traité. On notera que la coupure des matériaux fluorure est très basse, c'est pourquoi le bandgap de l'AlF<sub>3</sub> ne peut pas être déterminé avec précision, la mesure spectrale n'allant pas assez bas dans l'UV.

#### 4.1.3.3 Tenue au flux laser

Comme pour les couches élémentaires de SiO<sub>2</sub> et de HfO<sub>2</sub>, les tests de tenue au flux laser de ces matériaux ont été réalisés dans les conditions standards de la plateforme de l'Institut Fresnel (cf. §2.2.1). De même que pour les matériaux précédents, on pondère dans la suite les seuils de tenue au flux laser mesurés par le maximum de l'intensité du champ électrique (cf. tableau 4.12).

Échantillon	TiO <sub>2</sub> #134	Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> #115	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #116	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #117	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #143	MgF <sub>2</sub> #72	AlF <sub>3</sub> #79	SiO <sub>2</sub> /Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub> #025
Max EFI	0.474	0.588	0.611	0.653	0.563	0.749	0.752	0.592
TFL 1:1	0.62	1.06	2.07	2.68	2.07	2.66	2.56	3.04
TFL 100:1	0.48	0.78	1.63	1.86	1.64	-	-	2.54

TABLEAU 4.12 – Résistance au flux laser (TFL, en J/cm<sup>2</sup>) de matériaux diélectriques

Les courbes de probabilité d'endommagement des oxydes (figure 4.13) montrent un comportement déterministe pour l'ensemble des matériaux en mode 1:1. En revanche, on constate que ce n'est plus le cas, ni en mode multitirs pour les matériaux TiO<sub>2</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ni en mode R:1 pour le Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Cela met en évidence que l'effet d'incubation fait perdre le caractère déterminisme de l'endommagement des couches minces d'oxydes en régime ultra-court.

Les courbes de probabilité d'endommagement des fluorures (figure 4.14) montrent un comportement déterministe pour l'AlF<sub>3</sub> mais pas pour le MgF<sub>2</sub>. On peut supposer que cela vient d'un défaut d'uniformité de la stœchiométrie du MgF<sub>2</sub> lié au procédé de fabrication optimisé pour d'autres applications.

La courbe de probabilité endommagement de la couche élémentaire mixte SiO<sub>2</sub>/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (figure 4.15) fait apparaître un comportement quasi déterministe. Le procédé de fabrication requiert une

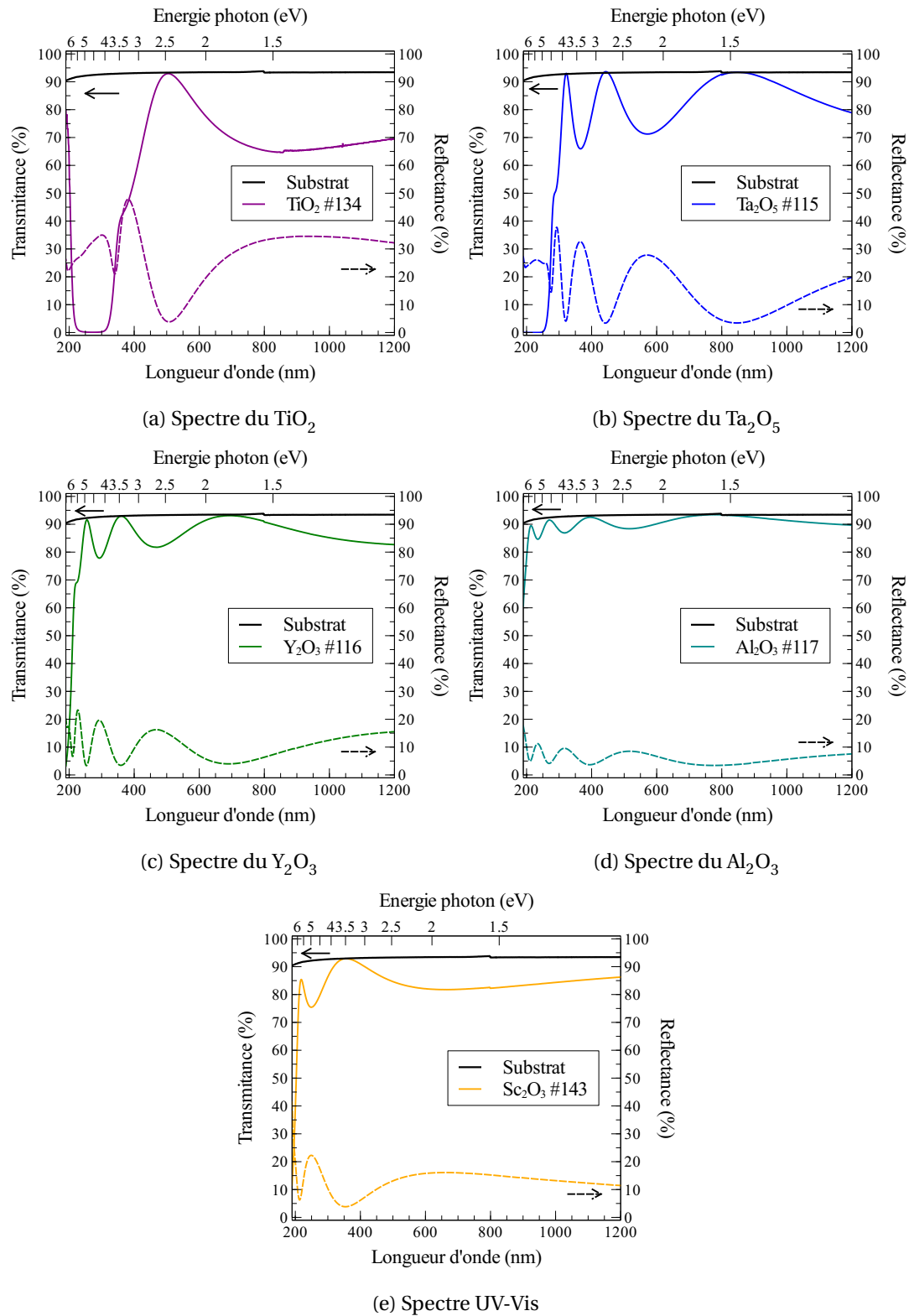


FIGURE 4.10 – Mesures spectrales en transmission et en réflexion des couches élémentaires des oxydes étudiés

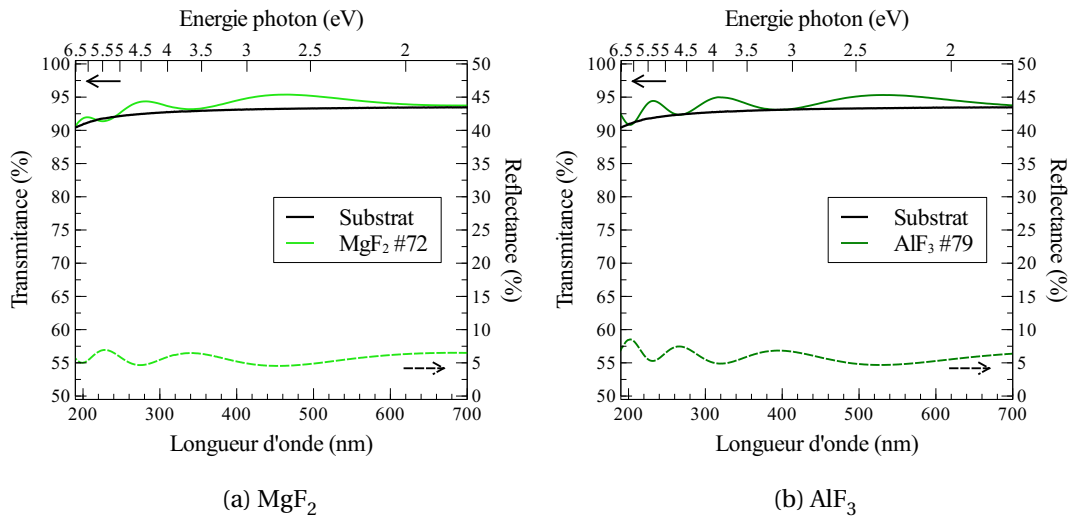


FIGURE 4.11 – Réflexion et transmission de couches élémentaires de fluorures

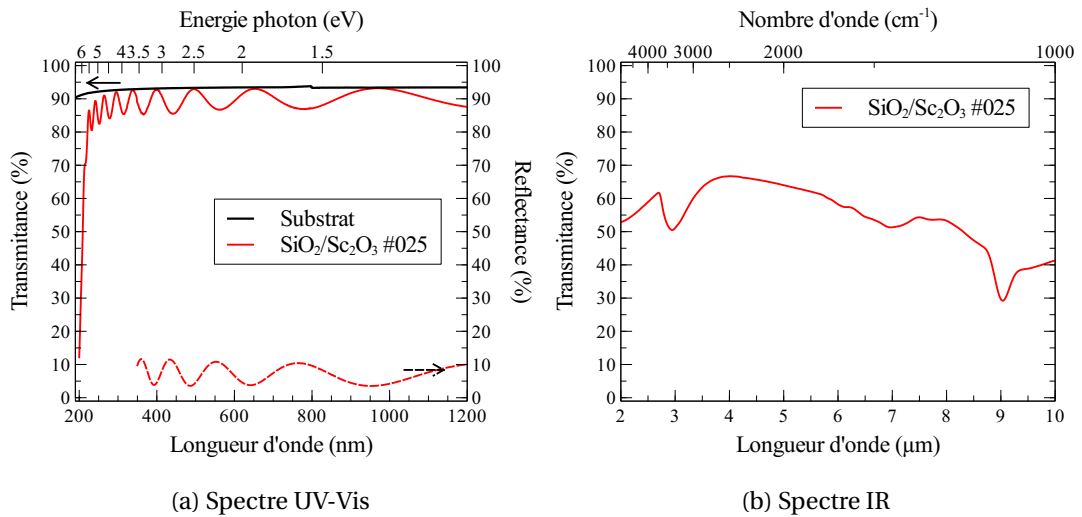


FIGURE 4.12 – Mesure spectrales de la couche élémentaire mixte  $\text{SiO}_2/\text{Sc}_2\text{O}_3$



optimisation supplémentaire pour éliminer le défaut de stœchiométrie.

Les dommages des oxydes (figure 4.16) montrent à la fois des similitudes de comportement d'un matériau à l'autre et des différences évidentes. En effet, si on compare, pour chacun des matériaux, le dommage en mode simple impulsion et le dommage en mode impulsion multiple alors on se rend compte que les contours du second sont moins bien définis que ceux du premier. En fait, on constate pour l'ensemble des matériaux que l'accumulation des tirs révèle à des fluences plus faibles (en périphérie de la zone irradiée, ou au centre pour des fluences très faibles) des hétérogénéités de résistance. Cela peut s'expliquer par une inhomogénéité de l'effet d'incubation ou par des modifications (non-détectées) de la matière qui crée des phénomènes d'interférences dans la matière provoquant la formation de motifs (ie. ripples). Si maintenant on compare les matériaux entre eux, on soulignera que le  $\text{TiO}_2$  et le  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  ont des dommages parfaitement définis en mode simple impulsion alors que les trois autres matériaux le sont un peu moins. Peut-être que l'on peut trouver une explication dans les contraintes à tendance fortement négatives (compression) dans le  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  et le  $\text{TiO}_2$ .

Les morphologies d'endommagement sur les fluorures (figure 4.17) font état de deux types de comportements différents. En effet on constate que le  $\text{MgF}_2$  a une forme plutôt cohérente avec ce que l'on observe en régime sub-picoseconde. [50] c'est à dire une zone ablatée au centre (là où la densité d'énergie appliquée s'est trouvée être la plus élevée), avec autour la partie supérieure de la couche issue de la zone ablatée. Par contre, le dommage de l' $\text{AlF}_3$  est plutôt symptomatique d'un matériau endommagé à partir de centres absorbants.

Les morphologies de dommages sur la couche  $\text{SiO}_2/\text{Sc}_2\text{O}_3$  (figure 4.18) montrent, dans le cas 1:1, une ablation de la couche à la profondeur pour laquelle l'intensité du champ électrique était maximale. Dans le cas du dommage en multi-tirs, on remarque que des points apparaissent en périphérie de la zone ablatée. Cela peut signifier que l'accumulation d'impulsion vient révéler des défauts locaux sur la couche.

De la même manière que nous l'avons fait pour une couche élémentaire de  $\text{HfO}_2$ , nous avons mesuré l'influence du vide et de la température sur la tenue au flux laser du  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ . Les résultats sont présentés sur la figure 4.19. On retrouve pour le  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  le même comportement que ce que l'on avait observé sur le  $\text{HfO}_2$  c'est à dire aucune variation du seuil avec la température. Pour le mode 1:1 on retrouve les mêmes valeurs de tenue au flux laser que l'on soit sous vide ou dans l'air tandis qu'en mode d'irradiation multi-tirs, on observe une diminution du seuil lorsqu'on passe de l'air au vide.

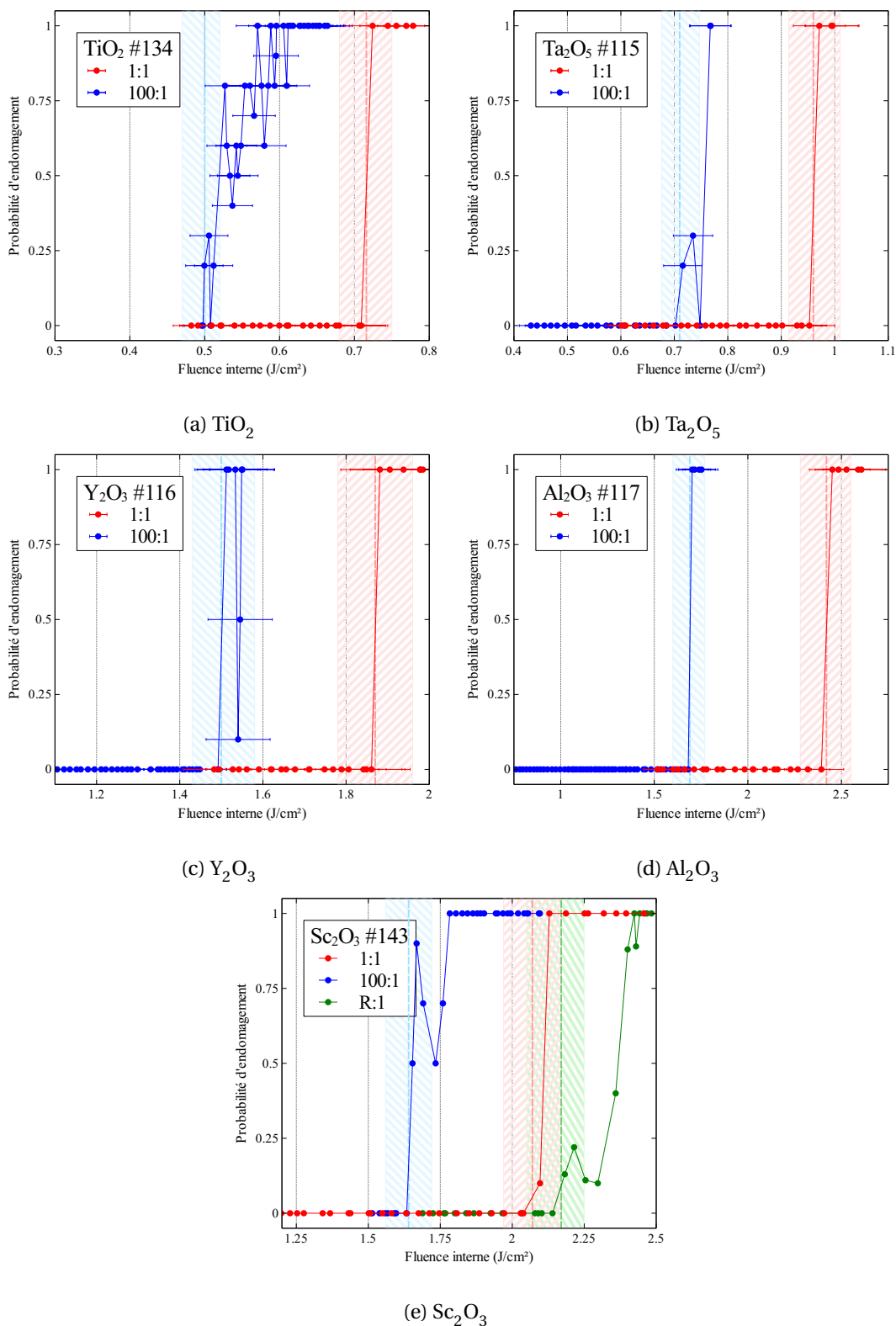


FIGURE 4.13 – Courbe de probabilité d'endommagement des différents oxyde testés

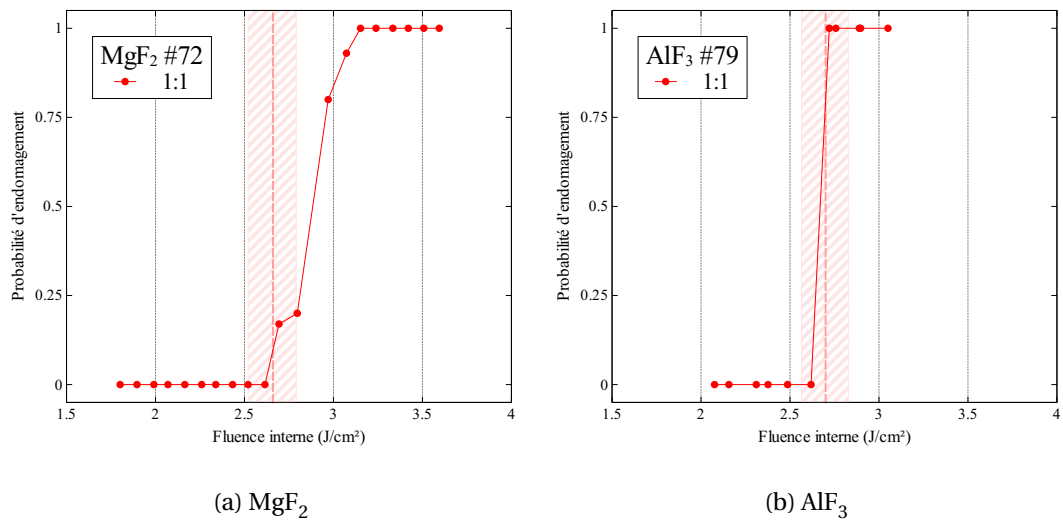


FIGURE 4.14 – Courbe de probabilité d'endommagement des différents fluorure testés à l'Institut Fresnel

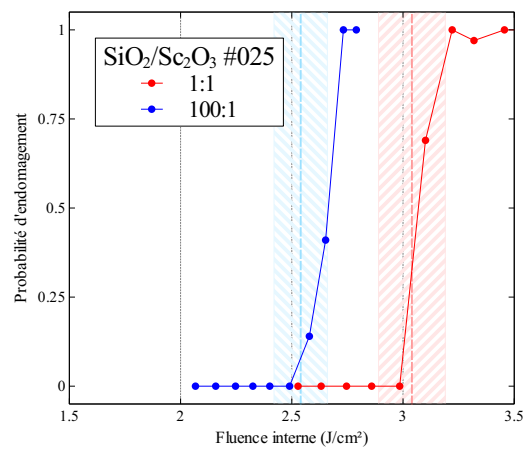


FIGURE 4.15 – Courbe de probabilité d'endommagement de  $SiO_2/Sc_2O_3$

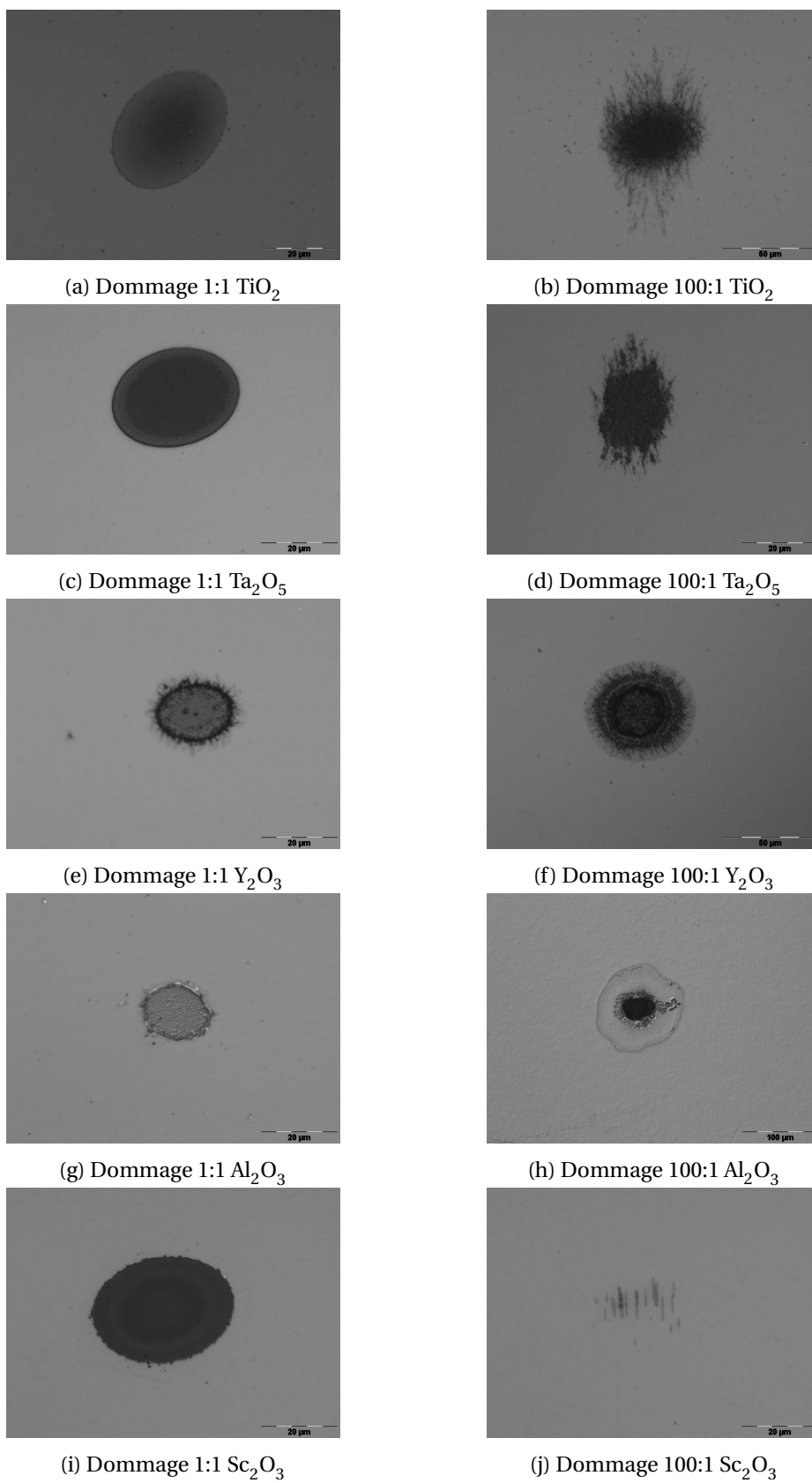


FIGURE 4.16 – Morphologie des dommages des différents oxydes testés

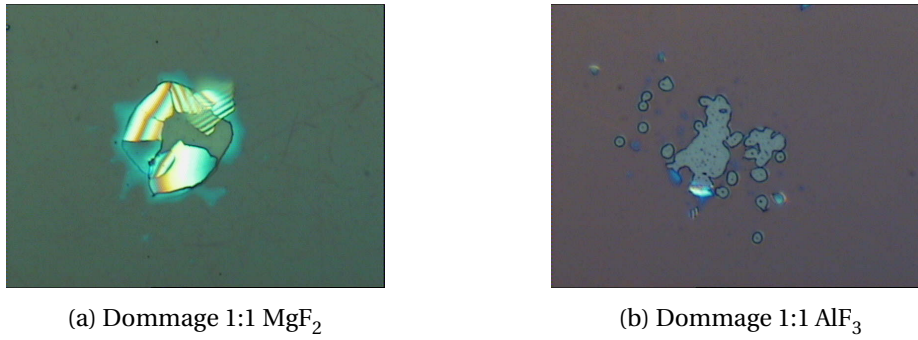


FIGURE 4.17 – Morphologies de dommage des différents fluorures testés

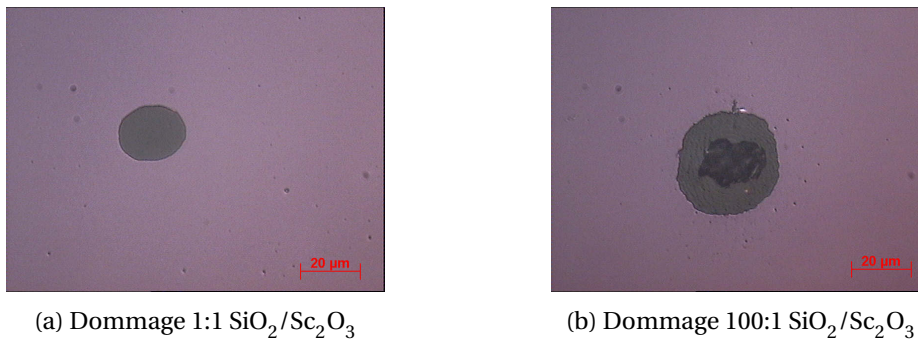


FIGURE 4.18 – Morphologies de dommage de la couche SiO<sub>2</sub>/Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

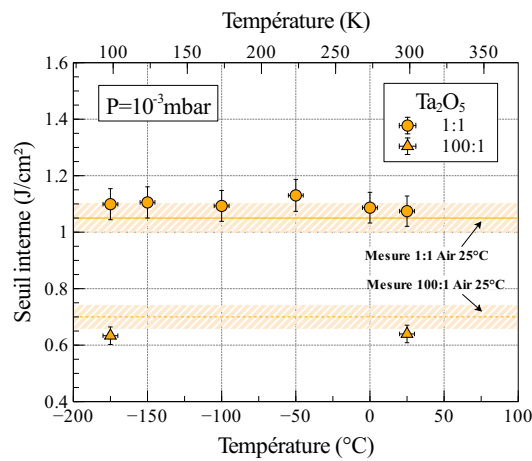


FIGURE 4.19 – Tenue au flux du Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> à 1030nm, 500fs, en incidence normale, à une pression de 10<sup>-3</sup>mbar et à différentes températures. Les lignes horizontales et les zones hachurées correspondent respectivement au seuil et à l'incertitude obtenus à l'air et à température ambiante.

#### 4.1.4 Bilan

Ces caractérisations de matériaux en couches minces élémentaires nous permettent d'établir une base de données des matériaux susceptibles d'être intégrés à la formule d'un traitement d'un composant laser de grande dimension.

Sur la figure 4.20, nous avons placé les données de tenue au flux laser présentées précédemment. La figure de gauche représente l'évolution des seuils de tenue au flux laser en fonction de l'indice de réfraction des matériaux. La figure de droite montre la corrélation entre le seuil de tenue au flux laser des matériaux et leur énergie de bande interdite. Sur ces deux graphes, nous avons également représenté des données correspondant à des matériaux massifs issus pour une partie de la littérature [21] et pour l'autre partie de mesures que nous avons réalisées dans les mêmes conditions que les tests sur les couches élémentaires. On remarquera que les données des matériaux en couches minces suivent la même tendance que les matériaux massifs.

Le graphe de gauche nous permet de constater que la tenue au flux laser baisse largement à mesure que l'indice de réfraction augmente. Il constitue une base de données pour le choix des matériaux de la formule d'un composant laser.

Sur le tracé de l'évolution de la tenue au flux laser en fonction de l'énergie du bandgap des matériaux (à droite), on constate que la linéarité de la relation est conforme aux données de la littérature pour les tests en impulsion unique. [51] En ce qui concerne les seuils de tenue au flux laser en régime multi-tirs, on observe également, mais de manière un peu inattendue, une certaine linéarité. En effet les mécanismes d'endommagement en régime impulsif multiple mettent en jeu des phénomènes liés à la capacité des matériaux à générer des défauts dans la bande interdite. Or cela n'a à priori aucune corrélation avec la valeur du bandgap. Cependant, si on considère que plus le bandgap est grand plus il y a de niveaux d'énergies intermédiaires susceptibles de devenir un défaut alors on peut donc considérer que dans le cas où tous les matériaux ont la même capacité à générer des défauts sous l'influence d'une irradiation laser alors les matériaux au bandgap élevé vont être plus impactés que les matériaux de bandgap faible. De plus étant donné que nous observons une linéarité sur des données obtenues avec une même technologie de dépôt, on peut se demander si la faculté des matériaux à créer des défauts n'est pas liée au procédé de dépôt. D'autre part, le régime multi-tirs est représenté ici par un nombre d'impulsions limité (100 tirs), on peut s'attendre à ce que la linéarité soit perdue pour un nombre d'impulsions plus important (au delà de 10 000 tirs).

Les tests réalisés sur le  $\text{HfO}_2$  et le  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  ne montrent pas d'influence évidente de la température (dans la gamme  $-200^\circ\text{C}/50^\circ$ ) ou du vide (jusqu'à  $10^{-3}$  mbar). Bien que les valeurs des seuils de tenue au flux laser obtenues dans ces conditions ne soient pas absolues (répétabilité moyenne du positionnement de l'échantillon dans le doigt froid, auto-focalisation par le hublot d'entrée, etc...) il ne peut pas y avoir de doute sur ces comportements relatifs. Le vide modéré de  $10^{-3}$  mbar n'a pas d'influence sur la tenue au flux laser des matériaux avec des tirs uniques, par contre une baisse non négligeable du seuil d'endommagement est constaté, en multi-tirs, entre l'air et le vide. La température, quant à elle, n'a pas d'influence sur la résistance au flux laser. Ces investigations mériteraient d'être approfondies par des tests dans une enceinte à vide plus adaptée aux contraintes de l'endommagement laser et avec un vide plus poussé ( $10^{-7}$  mbar) ainsi que la possibilité d'atteindre des températures plus basses que celles permises par l'azote liquide.

Enfin, nous avons pu voir à travers les tests R:1 menés au cours de cette étude que le seuil de résistance au flux laser des matériaux qui ont fait l'objet de ce type de tests peut être amélioré de manière significative grâce à un pré-conditionnement laser. Cela met en évidence que le matériau

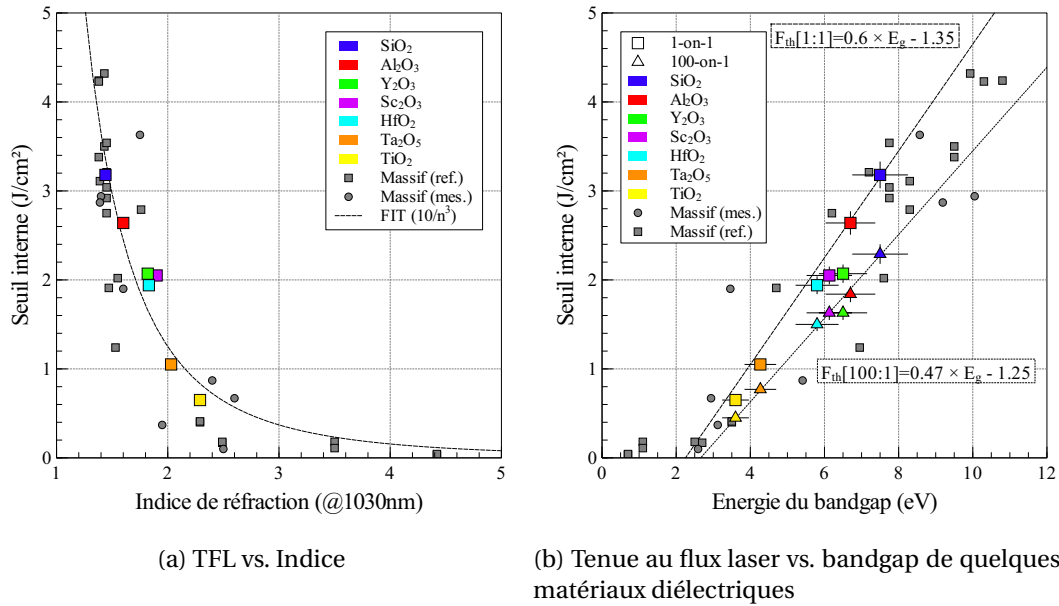


FIGURE 4.20 – Tenue au flux de matériaux diélectriques en fonction de leur propriétés optiques

en couches minces “as build” n’a pas atteint son potentiel maximal de résistance au flux laser. Il est donc envisageable d’accroître la résistance au flux laser des matériaux couches minces par un effet de conditionnement pouvant être réalisé par des procédés post-dépôt telle qu’une irradiation prolongée à une fluence inférieure au seuil de dommage ou bien par des procédés de recuit thermiques. Ce phénomène, observé et utilisé en régime d’impulsion nanoseconde, nécessite une étude spécifique afin d’une part de comprendre son origine et d’autre part d’optimiser son utilisation.

## 4.2 Comportement des matériaux dans un empilement réfléchissant

Dans cette section nous nous intéressons au comportement des matériaux au sein d'empilements à haute réflectivité sur des gammes spectrales étendues à travers des mesures d'endommagement laser comparatives avec des couches élémentaires des matériaux qui les composent. Cette étude vise à valider expérimentalement le principe de design par optimisation du champ électrique dans le cadre de la technologie d'évaporation par canon à électrons par similarité avec les travaux de JUPE et al. [37].

### 4.2.1 Design

Pour les besoins de l'étude, nous avons réalisé des miroirs adaptés au transport d'impulsions ultra-brèves (haute réflectivité et faible GDD sur une large gamme spectrale) et compatibles avec les conditions de tests permises par sur la plateforme de tests de l'Institut Fresnel (centrés autour de 1030nm pour une incidence de 45°). Plusieurs types d'empilements ont été réalisés à partir de matériaux qui ont fait l'objet de l'étude décrite dans la première partie de ce chapitre :

1. Des miroirs multidiélectriques (MLD) sans considération particulière pour la distribution du champ électrique,
2. Des miroirs MLD dont la distribution du champ électrique est volontairement modifiée par l'ajout de quelques couches au-dessus des premiers empilements réalisés,
3. Des miroirs hybrides métal/multi-diélectriques (MMLD) avec une distribution du champ électrique optimisée,
4. Une couche d'argent protégée (AgP), réalisée à l'occasion de développements dans le cadre d'un autre projet.

Les maxima de la répartition du champ électrique dans les différents matériaux<sup>1</sup> des différents empilements réalisés sont présentés dans le tableau 4.13.

Empilement → ↓ Matériaux	MLD #038		MLD #036		MLD #034		MLD #382		MLD #381	
	(S)	(P)	(S)	(P)	(S)	(P)	(S)	(P)	(S)	(P)
A	3.90	1.94	3.82	1.95	3.47	1.92	0.65	0.97	3.98	1.95
B	2.30	1.40	-	-	-	-	0.39	0.70	2.10	1.33
C	-	-	1.91	1.17	-	-	-	-	-	-
D	-	-	-	-	1.67	1.17	-	-	-	-
E	-	-	-	-	-	-	0.64	0.95	2.08	1.32
F	0.21	0.31	0.09	0.17	0.09	0.18	0.04	0.15	0.01	0.23

Empilement → ↓ Matériaux	MMLD #033		MMLD #034		AgP #11 0°
	(S)	(P)	(S)	(P)	
A	0.62	0.98	0.62	0.93	-
B	0.61	0.91	0.62	0.93	-
G	0.24	0.56	0.03	0.14	-
H	0.01	0.03	<0.01	<0.01	-
Protection	-	-	-	-	3.90
Ag	-	-	-	-	0.18

TABLEAU 4.13 – Intensités maximum relatives du champ électrique à 1030nm et 45° (0° pour AgP #11) dans les matériaux des empilements réfléchissant étudiés.

1. Reosc ne souhaitant pas révéler les formules des différents empilements, les noms de matériaux ne sont pas explicitement donnés mais sont représentés par les lettres de A à H.



### 4.2.2 Fabrication

L'ensemble des échantillons a été réalisé à partir des matériaux et des procédés étudiés dans la section précédente avec les mêmes contraintes de disponibilité des évaporateurs pour l'optimisation des paramètres de dépôt. Pour les mesures de tenue au flux laser, les traitements ont été réalisés sur des substrats en N-BK7 superpoli de diamètre entre 40mm et 60mm et d'épaisseur entre 3mm et 8mm.

Les premiers échantillons MLD, sans considération particulière pour la répartition du champ électrique, ont été réalisés dans un évaporateur BAK760 équipé d'un système de contrôle optique in-situ. Le complément de traitement aux échantillons issus de la première série a été réalisés dans un autre évaporateur de type BAK760 avec un contrôle des épaisseurs des couches réalisé au quartz. En dehors de la configuration des systèmes in-situ de contrôle des épaisseurs des couches, les deux évaporateurs BAK760 utilisés sont équipés de manière similaire en canons à électrons et canons à ions. Les procédés utilisés pour ces dépôts sont intégralement compatibles avec l'évaporateur BAK1730 qui est utilisé par Reosc pour faire les traitements sur les pièces de classe métriques. Les empilements MMLD et la couche d'argent protégé ont été réalisés directement dans le grand évaporateur BAK1730 en utilisant un contrôle de l'épaisseur des couches in-situ mixte quartz et optique.

### 4.2.3 Caractérisations

Les mesures spectrales (figure 4.21) réalisées sur les différents échantillons montrent d'une part que les empilements MLD et MMLD possèdent une réflectivité maximale à 1030nm pour une incidence de 45°, les rendant ainsi compatibles avec la configuration de tests de la plateforme "sub-fs" de l'Institut Fresnel. D'autre part on peut noter que les miroirs présentent des largeurs de bande réfléchies (>99%) entre  $\Delta\lambda = 170\text{nm}$  et  $\Delta\lambda = 300\text{nm}$ . L'échantillon d'argent protégé présente à 0° d'incidence une réflectivité de 98% à 1030nm

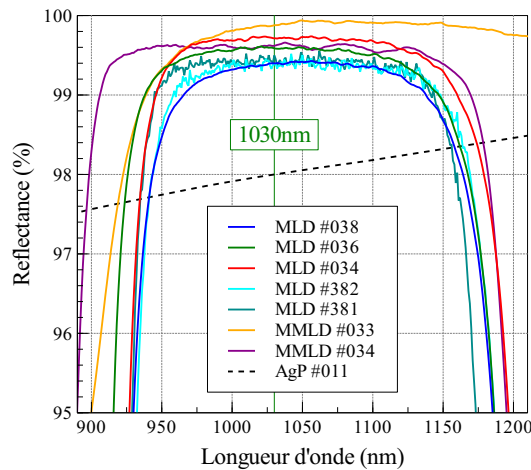


FIGURE 4.21 – Mesures de réflectivité des empilements à 1030nm à 45° en polarisation S (la réflectivité de AgP #11 est en incidence normale)

#### 4.2.4 Tenue au flux laser

La tenue au flux laser de ces échantillons a ensuite été testée sur la plate-forme de l'Institut Fresnel, dans les conditions standard avec une incidence de 45° en polarisation S et P. Les résultats (figure 4.22) montrent indiscutablement que le gain de tenue au flux laser est favorable lorsqu'on réduit le champ électrique.

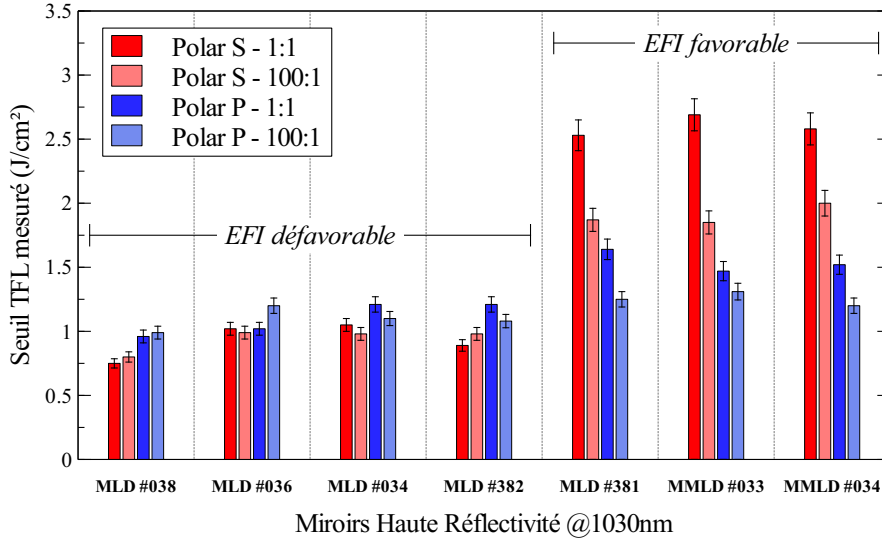


FIGURE 4.22 – Tenue au flux laser des empilements réfléchissants à 500fs, 1030nm et 45°

Ces résultats de mesures de tenue au flux laser sur des empilements de différents matériaux diélectriques possédant une distribution de champ électrique variée nous permet de vérifier expérimentalement la formule de prédiction de la tenue au flux des empilements (eq. 4.1) dans laquelle l'ensemble des termes sont exprimés pour une configuration commune (environnement, longueur d'onde, incidence, polarisation, nombre de tirs, etc.).

$$TFL_{HR} = \min \left( TFL_{int}^M \times \left| \frac{EFI_{inc}}{EFI_{max}^M} \right|^2 \right)$$

$$\text{où} \begin{cases} TFL_{HR} & \text{Tenue au flux laser de l'empilement} \\ TFL_{int}^M & \text{Tenue au flux laser interne du matériau M} \\ EFI_{inc} & \text{Intensité du champ électrique incident} \\ EFI_{max}^M & \text{Intensité du champ électrique dans le matériau M} \end{cases} \quad (4.1)$$

Les mesures de TFL et les prédictions pour chaque échantillon dans les différentes configurations ont été représentées sur la figure 4.23 sur laquelle l'axe vertical représente la valeur de tenue au flux laser de l'empilement prédite selon l'équation 4.1 et l'axe horizontal correspond à la valeur mesurée expérimentalement. La zone centrale blanche sur la figure représente la zone de validité du modèle en tenant compte d'une incertitude conservatrice de 20% pour la valeur prédite : 10% pour la TFL interne mesurée des couches élémentaires des matériaux et 10% pour le calcul de la répartition du champ électrique basée sur l'épaisseur et l'indice de réfraction des couches déterminées par un ajustement des mesures spectrales. Les échantillons réalisés, dont les données ont été reportées sur ce graphe montrent pour la première fois la validité de cette approche.

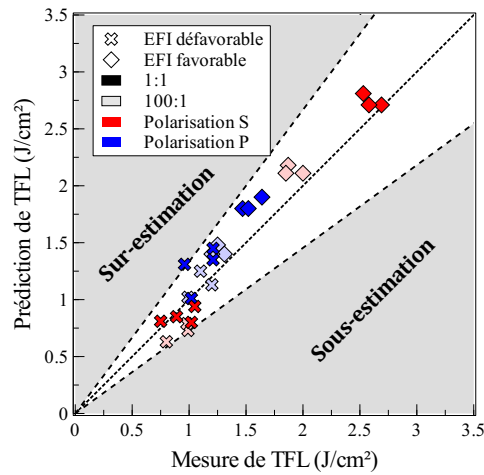


FIGURE 4.23 – Validation expérimentale de la méthode de prédiction de la tenue au flux laser des empilements à partir des caractéristiques internes des matériaux et de la répartition du champ électrique dans l'empilement

De plus la prédiction de la tenue au flux dans l'échantillon avec la couche d'argent protégé donne une valeur de  $TFL_{int}^{Prot.}/EFI_{max}^{Prot.} = 2.68/3.90 = 0.69 \pm 0.07 \text{ J/cm}^2$  en mode 1:1 ( $0.48 \pm 0.05 \text{ J/cm}^2$  en mode 100:1). La tenue au flux de l'échantillon a été mesurée en incidence normale à  $0.62 \pm 0.04 \text{ J/cm}^2$  en mode 1:1 et  $0.58 \pm 0.03 \text{ J/cm}^2$  en mode 100:1.

Cela amène à deux constatations : la première est que le modèle de prédiction est de nouveau valide dans ce cas et la seconde est que malgré la protection du métal par une couche unique de diélectrique, c'est le diélectrique qui est le matériau critique.

On remarque à travers cette étude sur des échantillons en présence de métal protégé par des couches de matériaux diélectriques, qu'il est possible de porter la criticité de l'empilement dans le matériau diélectrique plutôt que dans le métal (plus vulnérable) à travers une répartition du champ électrique optimisé. Cela donne un intérêt tout particulier à la conception d'empilements réfléchissants hybrides métal/diélectriques pour les applications laser à impulsions ultra-courtes.

#### 4.2.4.1 Morphologies de dommage

L'étude des morphologies de dommages des empilements couches minces peut permettre d'identifier l'élément critique ayant provoqué sa modification et comment celle-ci est intervenue. Par exemple, la figure 4.24 montre deux dommages différents obtenus sur un empilement MLD correspondant chacun à une polarisation. Effet le dommage en polarisation S montre que les premières couches ont été ablatées de manière similaire (le diamètre du cratère est quasi constant) et que la première couche a subi une modification d'indice autour de la zone ablatée. Cela signifie que la première couche subit une modification non destructrice pour une fluence inférieure au seuil d'ablation et que la couche ablatée la plus profonde est largement plus critique (relativement à la répartition du champ électrique) que les couches supérieures. Le dommage en polarisation P montre que 3 couches ont été ablatées avec un diamètre différent et ne montre pas de modification d'indice. On peut en déduire que les matériaux de ces couches supérieures ont la même criticité (toujours relativement à la répartition du champ électrique) car les différents diamètres sont représentatifs de la répartition d'énergie dans le faisceau gaussien avec lequel l'irradiation a eu lieu.

La figure 4.25 montre des dommages obtenus à des fluences largement supérieures au seuil d'endommagement sur des empilements de type MMLD et MLD. On y observe, quel que

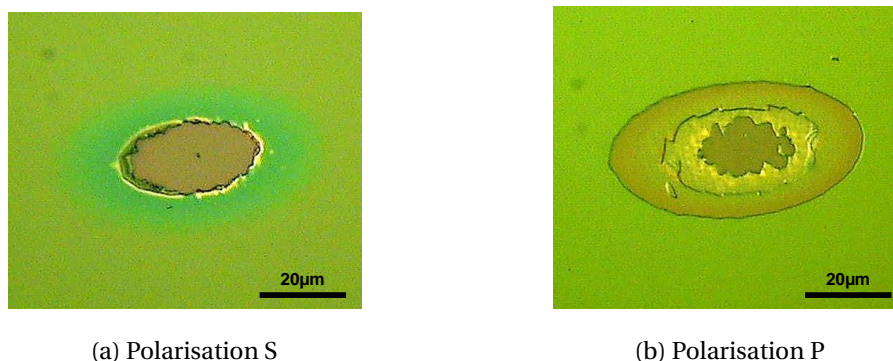


FIGURE 4.24 – Dommages sur un empilement MLD à 500fs, 1030nm et 45° dans deux polarisations différentes. Ces deux dommages ont été obtenus à des fluences largement supérieures au seuil d'endommagement

soit le type de traitement des zones concentriques aux contours bien définis caractéristiques de l'endommagement des matériaux diélectriques en régime femtoseconde. Les rapports des dimensions des zones rappellent la distribution du champ électrique dans l'empilement et la forme gaussienne du pulse.

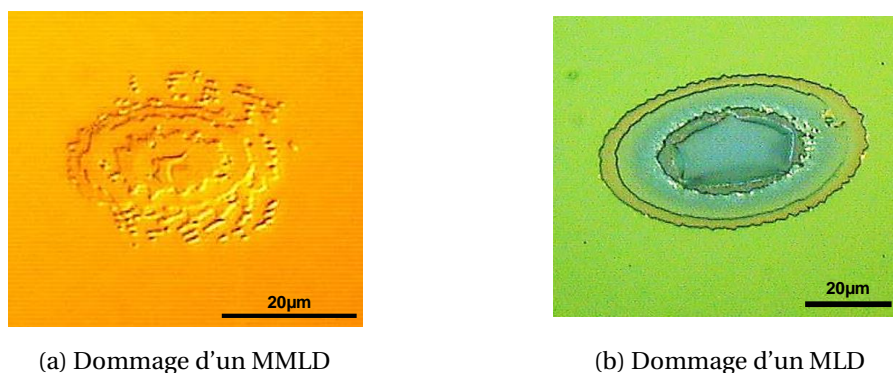


FIGURE 4.25 – Dommage d'empilements réfléchissant

Les morphologies d'endommagement sur l'échantillon avec la couche d'argent protégé montrent, dans le cas du mode 1:1 (figure 4.26a), un dommage caractéristique d'un matériau diélectrique. Dans le cas du mode multi-pulse (figure 4.26b), on observe 3 zones : la première, au centre, est la zone d'ablation à la fois du diélectrique et du métal ; la seconde zone présente des ripples et la troisième, en périphérie contient un ensemble de débris. On notera que la zone d'ablation n'est pas parfaitement délimitée, ce qui signifie que c'est l'accumulation des impulsions et une modification de la matière sous la forme de ripples qui a conduit à l'endommagement de ce site.

L'analyse des dommages permet également d'améliorer la mise œuvre des tests. Par exemple, lors de la réalisation des premiers tests d'endommagement laser sur les empilements hybrides métal/diélectrique l'analyse des dommages a révélé que lorsqu'un endommagement se produit avec une éjection importante de matière, comme c'est le cas lors de la réalisation de sites de marquage (pour repérer les zones de tests lors que l'analyse ex-situ) par exemple, des particules métalliques se répartissent à la surface de l'échantillon provoquant une diminution du seuil d'endommagement sur les sites contaminés.

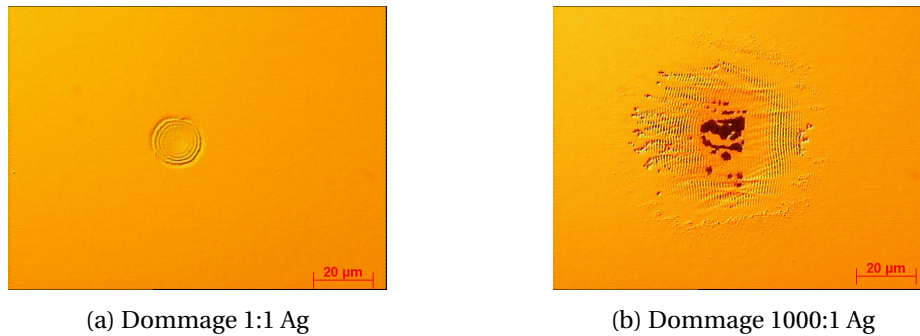


FIGURE 4.26 – Endommagement d'une couche d'argent protégée

## Conclusion

A travers ce chapitre a été présentée l'étude de la résistance au flux laser, en régime impulsif ultra-court, de matériaux diélectriques déposés avec des paramètres compatibles de la fabrication d'optique de classe métrique, en utilisant la technologie d'évaporation par canons à électrons et l'assistance ionique. Les investigations se sont portées sur les propriétés intrinsèques des matériaux d'une part, par les tests menés sur des couches élémentaires, et sur le comportement de ces matériaux dans des empilements à large spectre de haute réflectivité d'autre part.

Les résultats sur les couches élémentaires constituent une base de connaissances privilégiée pour le design de composants laser. Les matériaux réalisés confirment la décroissance de la tenue au flux laser avec l'augmentation de l'indice de réfraction. Cela justifie la difficulté de design d'empilement à large gamme spectrale de haute réflectivité, nécessitant l'utilisation de matériaux d'indice élevé, pour une application sous flux laser élevé. L'étude de ces matériaux montre également que la technologie utilisée est compatible de la fabrication d'optiques à haute tenue au flux laser. En effet la relation linéaire qui relie la tenue au flux des matériaux à leur bandgap est vérifiée et les seuils internes de tenue au flux laser sont comparables aux plus hautes valeurs données par la littérature.

Les tests menés sur les empilements réfléchissants constituent la première validation expérimentale de la méthode de prédiction de la tenue au flux laser à partir de la tenue au flux laser interne des matériaux constitutifs de l'empilement et de la répartition du champ électrique en son sein. D'autre part les résultats montrent qu'il est possible avec la technologie utilisée de réaliser des miroirs possédant très large gamme spectrale de très haute réflectivité compatibles avec les fluences laser recherchées.

Cette étude démontre la faisabilité de traitements couches minces compatibles des impulsions laser ultra brèves et donne les outils pour leur design.

# Chapitre 5

## Fabrication de composants pour lasers multipetawatt

*« Où est la pensée, là est la puissance. »*

---

Victor Hugo

### Sommaire

---

<b>5.1 Optiques réfléchissantes et semi-réfléchissantes</b> . . . . .	<b>108</b>
5.1.1 Traitements MLD et MMLD . . . . .	108
5.1.2 Différentes formes de miroirs . . . . .	112
5.1.3 Lames séparatrices et miroirs de diagnostics . . . . .	114
<b>5.2 Réseaux de diffraction</b> . . . . .	<b>116</b>
5.2.1 Conception . . . . .	116
5.2.2 Fabrication . . . . .	117
5.2.3 Caractérisations de l'empilement non structuré . . . . .	119
5.2.4 Caractérisations du réseau . . . . .	121

---

## Introduction

En régime femtoseconde l'amélioration de la tenue au flux laser d'un traitement couches minces passe par la minimisation, pour chaque matériau composant l'empilement, du rapport du champ électrique sur sa tenue au flux interne. Cette conclusion du chapitre précédent constitue la base du design des optiques à produire pour les lasers du même type que le système Apollon 10P.

La tenue au flux laser est l'élément central du processus de design d'un composant pour une grande infrastructure laser (figure 5.1). En amont se trouve l'ensemble des spécifications qui découlent de la fonction de l'optique dans le système. L'ensemble de ces données constitue les paramètres d'entrée pour le choix du design, du procédé et de la stratégie de fabrication d'où va découler le processus de fabrication donnant les performances finales de l'objet.

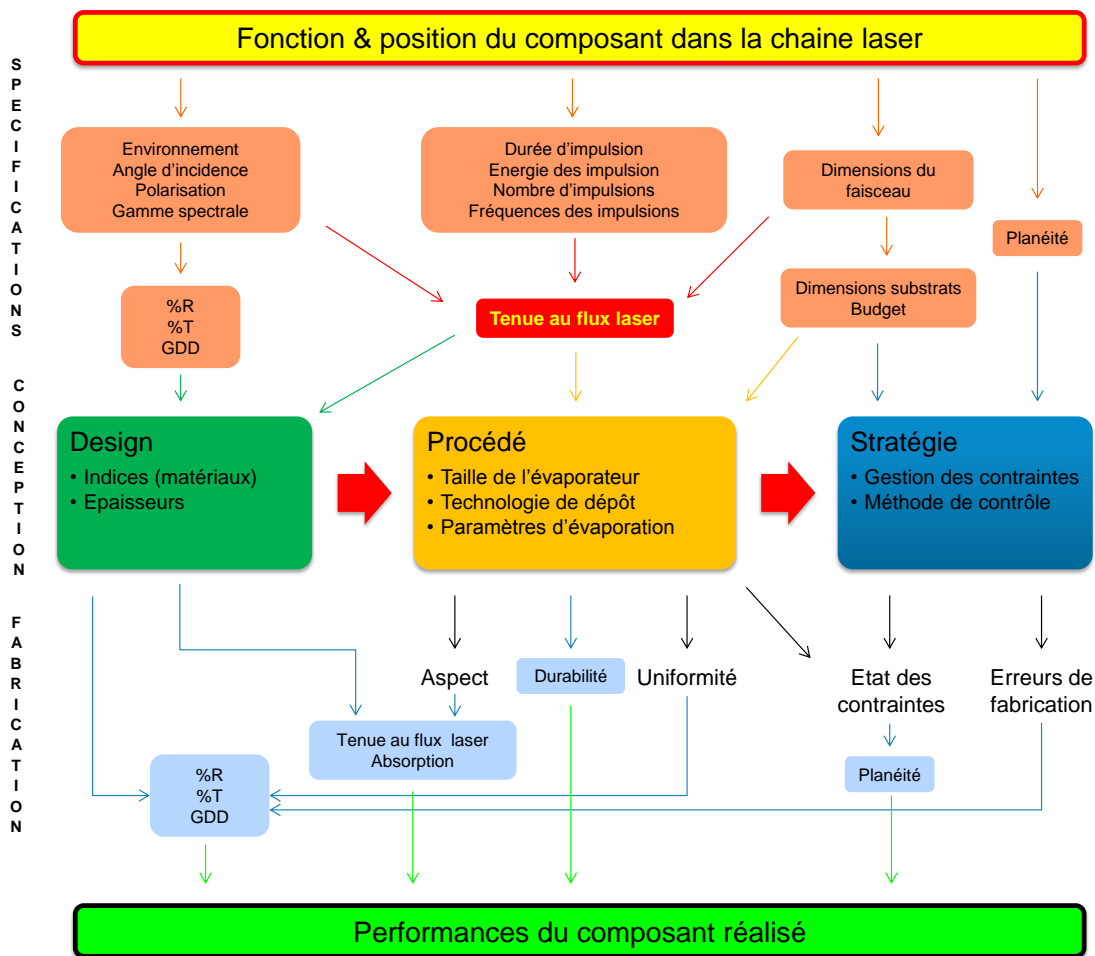


FIGURE 5.1 – Processus de conception d'un composant laser au niveau du traitement couches minces.

Les données acquises au cours de l'étude des matériaux en couches élémentaires et en empilements ont pour principal intérêt d'être utilisées pour le design et la fabrication de composants optiques intégrés dans les systèmes lasers. Ces composants (figure 5.2), qu'ils soient plans, concaves, convexes, de formes libres ou déformables, requièrent des traitements couches-minces spécifiques pour leur donner leur fonction optique : des traitements réfléchissants (miroirs), nécessitant parfois une fuite bien maîtrisée (miroirs à fuite), des traitements semi-réfléchissants (séparatrices), des traitements à réflexion minimale (anti-reflets) ou encore des



traitements structurés diffractifs (réseaux). Plus les spécificités de leur fonction optique sont nombreuses, moins il y a de degrés de liberté et plus la probabilité d'identifier une solution théorique réalisable diminue. Dans tous les cas, en phase de design, un poids très important doit être maintenu sur le critère de tenue au flux laser c'est-à-dire, dans le cas particulier des régimes impulsionnels ultra-courts, sur la minimisation de l'intensité du champ électrique distribuée dans l'empilement.

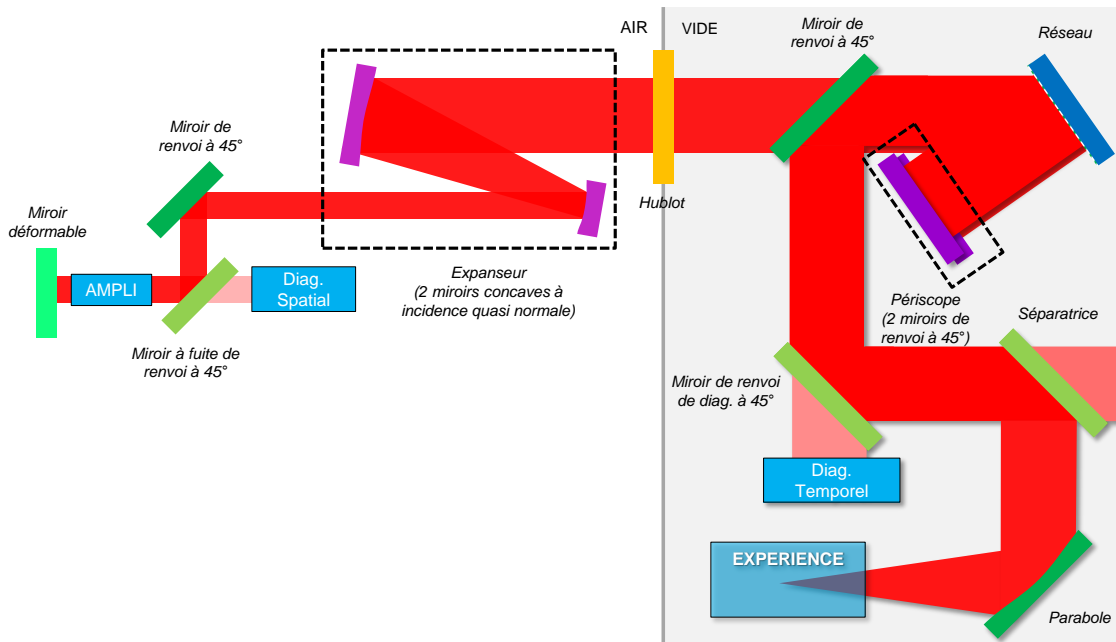


FIGURE 5.2 – Représentation schématique de la fin d'une chaîne laser de puissance avec les principaux composants optiques à réaliser.

Dans le contexte de ces travaux, on qualifie une optique de grande dimension lorsque qu'une de ses longueurs caractéristiques (diamètre, diagonale, etc.) excède 300mm. En effet, sauf cas particulier, au delà de cette dimension il devient indispensable d'utiliser des évaporateurs de taille métrique pour atteindre des niveaux d'uniformité requis d'une part et d'autre part les phases de préparation de surface avant traitement et d'inspection après traitement requièrent un savoir faire tout particulier. De plus la manutention de ces objets nécessite un niveau de précaution et des moyens matériels très spécifiques et maîtrisés.

Au delà du choix de la formule, la fabrication du composant fait intervenir les notions de stabilité des performances dans le temps ainsi que de compatibilité des technologies étudiées avec l'environnement direct. Enfin, étant aux limites physiques des technologies actuelles en termes de tenue au flux laser, il est indispensable d'être en mesure de traiter des pièces de grande dimension pour transporter les faisceaux plus larges (pour réduire la fluence) des systèmes multi-petawatt.

Ce chapitre présente les résultats des mises au point des designs et procédés réalisés dans le cadre de la fabrication de composants pour des systèmes lasers à impulsions ultra-courtes dans le cadre de la fourniture de composants pour le système Apollon en particulier. Lorsque cela est possible, les performances obtenues sur des composants ou des démonstrateurs sont présentées. La première partie est consacré à la présentation des travaux menés sur les réflecteurs. La seconde partie développe les résultats de travaux spécifiques menés dans le cadre d'une large collaboration pour la fabrication de réseaux hybrides métal/diélectrique.



## 5.1 Optiques réfléchissantes et semi-réfléchissantes

Le premier objectif d'un composant réfléchissant est de changer la direction d'un faisceau laser sans altérer ses propriétés optiques et en conservant le maximum de photons. Le grand nombre de miroirs requis dans les infrastructures telles que celle d'Apollon 10P pour le transport du faisceau impose des spécifications drastiques sur chaque propriété. En effet, une réduction des performances répétée sur une série d'optiques peu conduire à une dégradation considérable et définitive du faisceau. Chaque composant assure une fonction bien particulière : changement de direction uniquement (miroir plan), changement de hauteur (périscope), expansion du faisceau (système composé de plusieurs miroirs courbes), focalisation (parabole) ou système adaptatif (miroir déformable).

### 5.1.1 Traitements MLD et MMLD

#### 5.1.1.1 Conception

Précédemment, nous avons montré expérimentalement, la validité du modèle de prédiction de la tenue au flux laser de traitements multidielectrique et hybride métal/multidielectriques déposés par EBD et soumis à des impulsions de 500fs. L'hypothèse est faite ici que le modèle est également applicable à des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes et pour des spectres larges centrés autour de 820nm. En effet, les mécanismes d'interaction sont similaires, les calculs de la répartition du champ électrique dans les empilements sont proches et la hiérarchie des matériaux en terme de niveau de tenue au flux laser reste la même. Ce modèle de prédiction ouvre la porte à une stratégie de design très simple en théorie. En effet, il suffit pour chaque matériau utilisé de minimiser le rapport de l'intensité maximale du champ électrique sur son seuil de tenue au flux interne. La difficulté est surtout liée au nombre de contraintes que l'on souhaite ajouter au design (largeur spectrale, niveau de réflectivité, niveau de GDD, etc.).

Les seuils de tenue au flux laser internes des matériaux ont été extrapolé à 820nm en utilisant la loi empirique mesurée par Mero et al. sur des couches minces diélectriques ( $\tau^{0.3}$ ). Puis une série d' empilements réfléchissants une large bande spectrale et susceptible d'avoir un seuil de tenue au flux laser élevé ont été conçus et fabriqués grâce à deux associations de matériaux différentes (le *type 1* permettant d'atteindre des largeurs spectrale de réflectivité supérieures à 99% jusqu'à  $\Delta\lambda = 170\text{nm}$  à  $45^\circ$  en polarisation S et le *type 2* atteignant 250nm). Les conditions de fabrication de cette série d'échantillons sont les mêmes que celles qui avaient été appliquées pour la réalisations des couches élémentaires et des empilements réfléchissants de type MLD à 1030nm dans une évaporateur de type BAK760. Ces différents échantillons, ainsi que des miroirs d'autres fabricants, ont ensuite été testés sur la plateforme du LOA (cf. §2.2.2) à 40fs, 820nm,  $45^\circ$ , en polarisation et avec 5000 tirs/sites à 1kHz. Les résultats de ces tests (figure 5.3) mettent en évidence que la méthode d'optimisation de la répartition du champ électrique mise en place par Reosc à l'issu des travaux décrits au chapitre précédent, pour la fabrication des échantillons *type 1* et *type 2*, est adapté à ces nouvelles conditions d'irradiation et permet d'atteindre des seuils de tenue au flux laser bien plus élevés d'un facteur 2 à 4 que les "autres" miroirs laser disponibles sur le marché que nous avons pu acquérir.

A l'issue de ces tests préliminaires deux types de designs ont été mis au point pour répondre à l'ensemble des spécifications des miroirs de transport du laser Apollon 10P : un design totalement constitué de matériaux diélectriques (MLD) et un design hybride constitué de matériaux métalliques et diélectriques (MMLD). Les designs retenus sont ceux présentant le meilleur compromis entre la largeur de la gamme spectrale, le niveau de réflectivité, le niveau de GDD et le seuil de tenue au flux laser. D'ailleurs la répartition du champ électrique dans ces deux

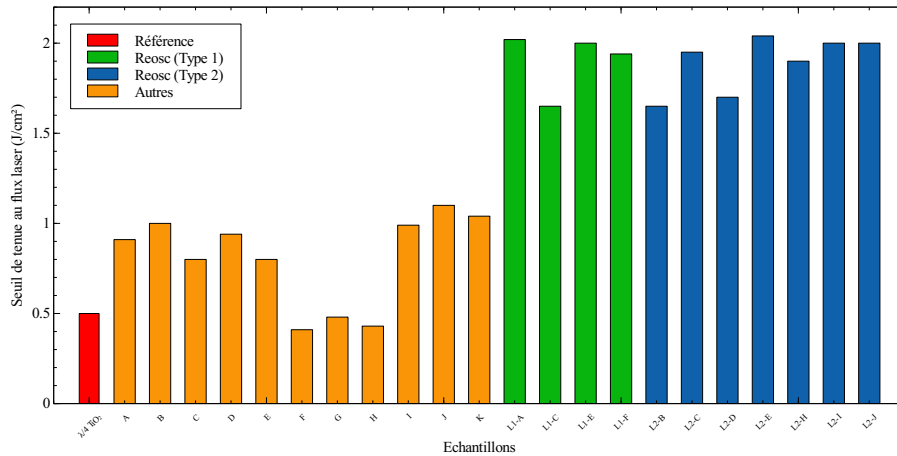


FIGURE 5.3 – Comparaison de la résistance au flux laser d'échantillons de différents designs à 40fs, 820nm, 45°, en polarisation et avec 5000 tirs/sites à 1kHz.

empilements est telle que leur tenue au flux laser en régime ultra-bref doit être identique. Ces designs permettent de couvrir la majorité des besoins en terme de traitements réfléchissants pour le faisceau comprimé du système Apollon 10P.

#### 5.1.1.2 Fabrication

Les composants à fabriquer étant exclusivement de grandes dimensions, la production des échantillons MLD et MMLD est réalisée dans l'évaporateur BAK1730 (cf. §3.2.2.4). La procédure de fabrication (de la préparation de la machine et des substrats jusqu'aux mesures après traitement) respecte les acquis des développements antérieurs pour la haute tenue au flux laser des traitements pour les optiques des systèmes à impulsions nanosecondes. L'innovation de ces nouveaux traitements est l'utilisation d'associations plus complexes de matériaux optimisées dans le cadre des procédures de traitement à haute tenue au flux laser sur des composants de grande taille.

Une fois que les paramètres d'évaporation sont maîtrisés, le principal challenge est la minimisation du défaut d'uniformité et son homogénéisation entre les matériaux. En fait, une inhomogénéité du traitement traduit une variation continue des épaisseurs des couches avec une symétrie de révolution autour de l'axe de rotation du porte-substrats. Si tous les matériaux ont le même profil d'uniformité, alors on observe radialement une simple homothétie de la formule de l'empilement. La fonction optique du composant est alors légèrement modifiée d'un décalage spectral, c'est à dire que le point sur la pièce qui aura vu le plus de matière aura une fonction optique dont le centrage sera décalé vers les hautes longueurs d'onde et inversement. Par contre, si les matériaux n'ont pas le même profil d'uniformité alors la fonction optique peut être modifiée de manière plus complexe.

Pour gérer l'uniformité de traitement, on travaille d'abord à l'amélioration de l'uniformité naturelle de l'évaporation optimisant la position des sources par rapport à la position des substrats. Puis, dans le cas où l'uniformité naturelle n'est pas suffisante, on utilise des masques d'uniformité. Pour les traitements dont cette étude fait l'objet, la configuration de l'évaporateur permet, sans masque, de limiter le défaut d'uniformité à 2.5% sur un diamètre de 1.2m (figure 5.4).

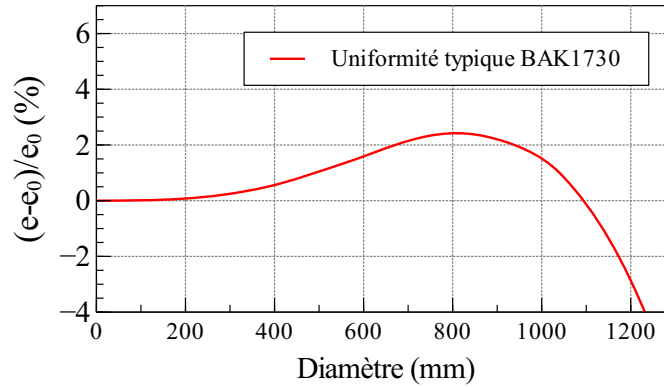


FIGURE 5.4 – Uniformité typique des traitements laser dans l'évaporateur BAK1730

### 5.1.1.3 Caractérisations

**Performances spectrales** La réflectivité des traitements MMLD et MLD est optimisée pour être maximale sur la gamme spectrale la plus large possible (figure 5.5). Le niveau de réflectivité des deux designs est équivalent en polarisation S. Par contre, bien que la largeur de la gamme spectrale soit toujours plus favorable pour le traitement MMLD, en polarisation P le niveau de réflectivité du MLD est plus élevé. En ce qui concerne la GDD, le traitement MLD est tout à fait honorable mais les performances du MMLD en font un choix privilégié pour les applications où une GDD extrêmement faible est requise. On notera que contrairement au MMLD, le traitement MLD est utilisable en transmission pour un prélèvement du faisceau. D'autre part, les procédés de dépôt différant entre les deux designs, le traitement MMLD possède un décalage spectral entre l'air et le vide proche de 3.5% alors que celui du traitement MLD est inférieur à 1%.

De même que les deux types de traitements diffèrent dans leur comportement à l'air et sous vide, ils présentent chacun leur propre niveau de contrainte (5.6). En effet le traitement diélectrique est fortement en compression au moment de la fabrication et continue d'évoluer en compression avec le temps. Le traitement hybride présente une contrainte quasi nulle juste après le dépôt et évolue légèrement en tension. La connaissance de ces lois d'évolution des contraintes est très importante pour gérer la planéité des optiques de grande dimension.

La tenue au flux laser de ces deux types de traitement a été mesurée sur la plateforme du LP3 dans les conditions décrites au paragraphe 2.2.3. Dans l'air, en polarisation S, à 45° et avec un faisceau focalisé de 11μm de diamètre à 1/e<sup>2</sup>, le seuil de tenue au flux laser de ces deux designs, a une durée d'impulsion inférieure à 11fs et pour un large spectre centré à 800nm, est de 600 ± 60 mJ/cm<sup>2</sup> en mode 1:1. Ce niveau de fluence est le plus élevé parmi les traitements, à performances spectrales équivalentes, décrits dans la littérature et disponible sur le marché.

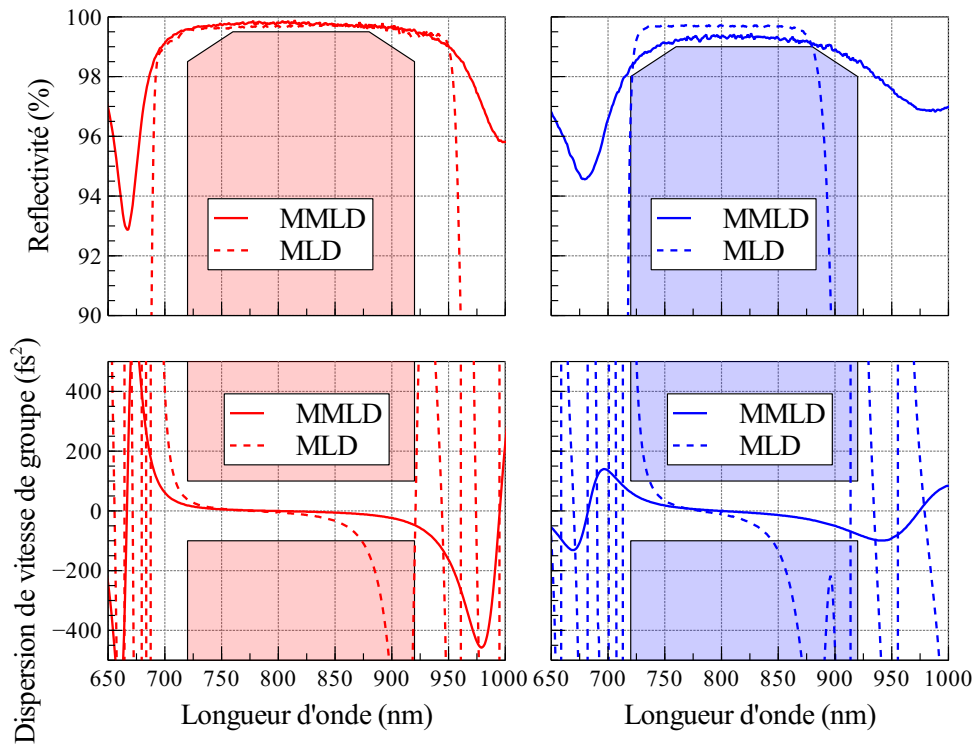


FIGURE 5.5 – Réflectivité et dispersion de vitesse de groupe mesurées sur des traitements MMLD et MLD. Les zones colorées permettent de situer les performances mesurées par rapport aux spécifications.

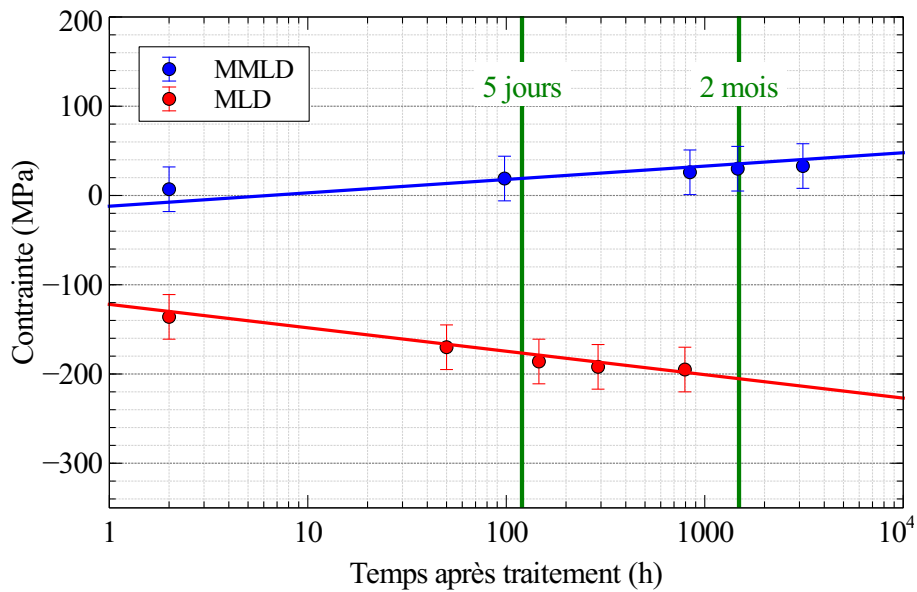


FIGURE 5.6 – Évolution des contraintes des traitements MMLD et MLD

### 5.1.2 Différentes formes de miroirs

Ces traitements sont destinés à être appliqués sur différentes optiques des chaînes laser (figure 5.2). Ces optiques présentent chacune leur spécificité qui nécessite parfois des ajustements particuliers.

Les **miroirs plans** sont utilisés pour modifier la direction du faisceau avec un certain angle d'incidence. L'incidence est de  $90^\circ$  dans le cas des **périscope** (figure 5.7) et pour la plupart des miroirs de transport. Les traitements appliqués sur ce type de composants doivent donc répondre aux contraintes de leur environnement (air ou vide), de l'angle d'incidence et de la polarisation pour répondre à une spécification que l'on peut simplifier ainsi : Réflexion maximale et dispersion minimale sur le plus large spectre et résistance maximal au flux laser pour des impulsions les plus courtes possibles. Ces optiques ne nécessitent pas d'ajustement particulier du traitement, mais une stratégie de gestion des contraintes du traitement doit être mise en place pour assurer la planéité de l'optique. Or, dans la mesure où l'on ne souhaite pas modifier le traitement ou le procédé pour gérer les contraintes (pour ne pas perdre les performances spectrales et de tenue au flux laser) il reste trois possibilités :

- traiter la face arrière de l'optique avec le même traitement qu'en face avant
- traiter la face arrière de l'optique avec un traitement introduisant la même déformation que le traitement de la face avant (ex : un antireflet spécifique)
- pré-déformer l'optique en sens inverse pour que la déformation induite par le traitement permette d'atteindre la planéité requise.

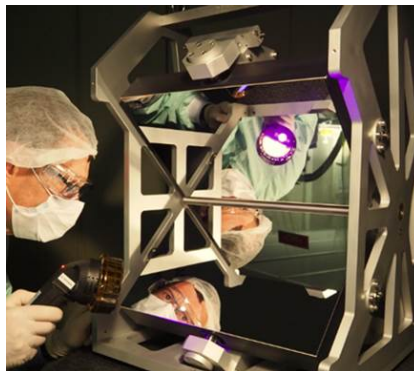


FIGURE 5.7 – Périscope du compresseur de la ligne 1PW du laser Apollon conçu et fabriqué par Reosc. Le traitement MMLD, mis au point au cours de ces développements, est appliqué sur les deux miroirs de dimension  $400 \times 260 \text{mm}^2$ .

Dans le cas du traitement de la **membrane d'un miroir actif** (figure 5.8), les contraintes sont gérées de manière un peu plus souple du fait de l'utilisation d'actuateurs pour déformer volontairement le miroir. Cependant, la spécificité de ces membranes réside dans leur très faible épaisseur qui nécessite d'utiliser un traitement aux contraintes les plus faibles possibles. D'autre part, le traitement doit également être compatible avec les déformations provoquées par les actuateurs (ce qui est généralement le cas des traitements faiblement contraints). Enfin, en cas de traitement de la face arrière, celui-ci doit être compatible avec la technologie utilisée pour le positionnement des actuateurs (ex. collage). Le traitement MMLD est le plus adapté à la fabrication de la membrane d'un miroir actif.

L'une des configurations possibles d'un **expandeur** associe deux miroirs concaves (figure 5.9). La particularité d'un tel système est que les miroirs fonctionnent avec une incidence proche

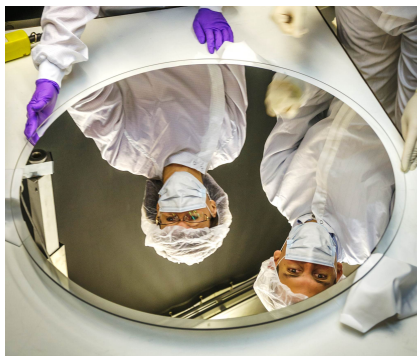


FIGURE 5.8 – Démonstrateur d'une membrane Ø800mm pour un miroir actif traité avec l'empilement MMLD mis au point au cours de cette étude.

de la normale. Il est donc indispensable de réoptimiser le design des empilements pour l'angle d'incidence de travail. Un ajustement des designs MLD et MMLD est possible pour le traitement de ces composants.



FIGURE 5.9 – Exemple d'un extenseur de faisceau fabriqué par Reosc

Le traitement d'une **parabole** hors d'axe extrême (grande dimension, courte focale) nécessite une gamme spectrale de réflectivité plus large que le spectre du faisceau à focaliser. En effet, il faut d'une part compenser le défaut d'uniformité généré par la flèche de la parabole. D'autre part il est nécessaire de compenser la variation de l'angle d'incidence sur la parabole. Les performances du traitement MMLD sont tout à fait adaptées au traitement des paraboles extrêmes pour les lasers de puissance.



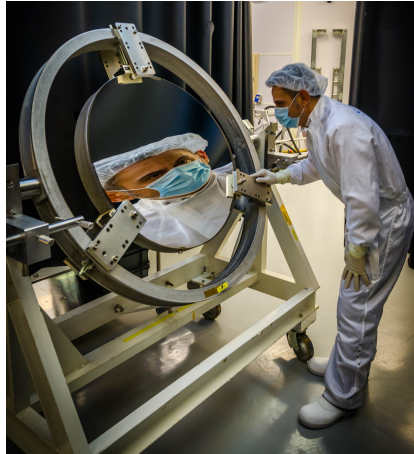


FIGURE 5.10 – Démonstrateur d'une parabole 90° hors d'axe de focale 1.25m avec un empilement MMLD, fabriquée à l'issue des ces travaux.

### 5.1.3 Lames séparatrices et miroirs de diagnostics

Pour transporter le faisceau laser vers différentes chambres d'expériences, des optiques semi-réfléchissantes doivent être utilisées (miroirs de diagnostic, lames séparatrices et atténuateurs). Les niveaux de transmission ou de réflexion requis peuvent aller de moins de 1% à 99%. La spécificité de ces composants dans les systèmes laser à durées d'impulsion ultra courtes est leur nécessité d'avoir un niveau de transmission ou de réflexion avec la plus faible variation possible autour de leur valeur moyenne sur un large spectre (Table 5.1) afin de conserver les propriétés de l'impulsion incidente à la fois sur la partie transmise et sur la partie réfléchie. Évidemment les traitements utilisés doivent également être en mesure de résister aux niveaux de flux laser équivalents à ceux auxquels sont soumis les miroirs de transport.

Composant	Niveau moyen	Dispersion	Gamme spectrale
<b>Miroir de diagnostic</b>	$T = 1.5\% \pm 0.5\%$ ; $R > 97\%$	$\Delta T = \pm 5\% \text{PtV}$	$\lambda \in [720 - 920] \text{nm}$
<b>Séparatrice 75/25</b>	$T = 25\% \pm 2\%$ ; $R = 75\% \pm 4\%$	$23\% < T < 27\%$ ; $71\% < R < 79\%$	$\lambda \in [720 - 920] \text{nm}$
<b>Atténuateur 50</b>	$R = 50\% \pm 5\%$	$\Delta R = \pm 20\% \text{PtV}$	$\lambda \in [720 - 920] \text{nm}$

TABLEAU 5.1 – Exemples de spécifications de composants semi-réfléchissants (PtV=Peak-to-Valley)

Bien qu'il existe plusieurs formules théoriques d'empilements qui satisfont chacune une dispersion minimale autour de leur valeur moyenne de transmission, il est en revanche moins évident de définir un design dont la sensibilité aux erreurs de fabrication aléatoires est suffisamment faible pour assurer la réalisation des performances théoriques d'une part et sa répétabilité d'autre part. La difficulté grandit d'autant plus si l'on contraint le niveau de la valeur moyenne de transmission et que l'on cherche à obtenir des valeurs de tenue au flux laser élevées.

Les erreurs aléatoires de fabrication sont principalement la conséquence de la qualité du système de contrôle in-situ des épaisseurs de couches, c'est à dire son implantation dans l'évaporateur, son paramétrage et son interprétation. Si on considère un évaporateur doté d'un système de contrôle in-situ standard (un quartz fixe en périphérie du porte-substrat), on estime à  $\pm 3\%$  l'erreur de fabrication aléatoire sur l'épaisseur des couches d'un empilement non-quart d'onde. Dans un évaporateur permettant de traiter des pièces de classe 1m, nous avons estimé qu'il serait possible d'abaisser à  $\pm 1.5\%$  l'erreur de fabrication aléatoire en utilisant une

combinaison de contrôle optique et quartz haute performance.

Afin d'estimer les valeurs de dispersion possibles, nous avons réalisé une minimisation de la sensibilité d'un design pour le traitement d'un miroir de diagnostic (selon les critères du tableau 5.1). Cette optimisation nous a permis de voir qu'il était indispensable de ne pas trop contraindre la valeur moyenne si l'on souhaite converger vers des solutions de design très peu sensibles aux erreurs de fabrication aléatoires.

Ensuite, nous avons réalisé 300 simulations en introduisant une erreur aléatoire de  $\pm 3\%$  puis de  $\pm 1.5\%$  sur l'ensemble des couches par rapport au design théorique. Les résultats de ces simulations sont tracés dans les graphes de la figure 5.11.

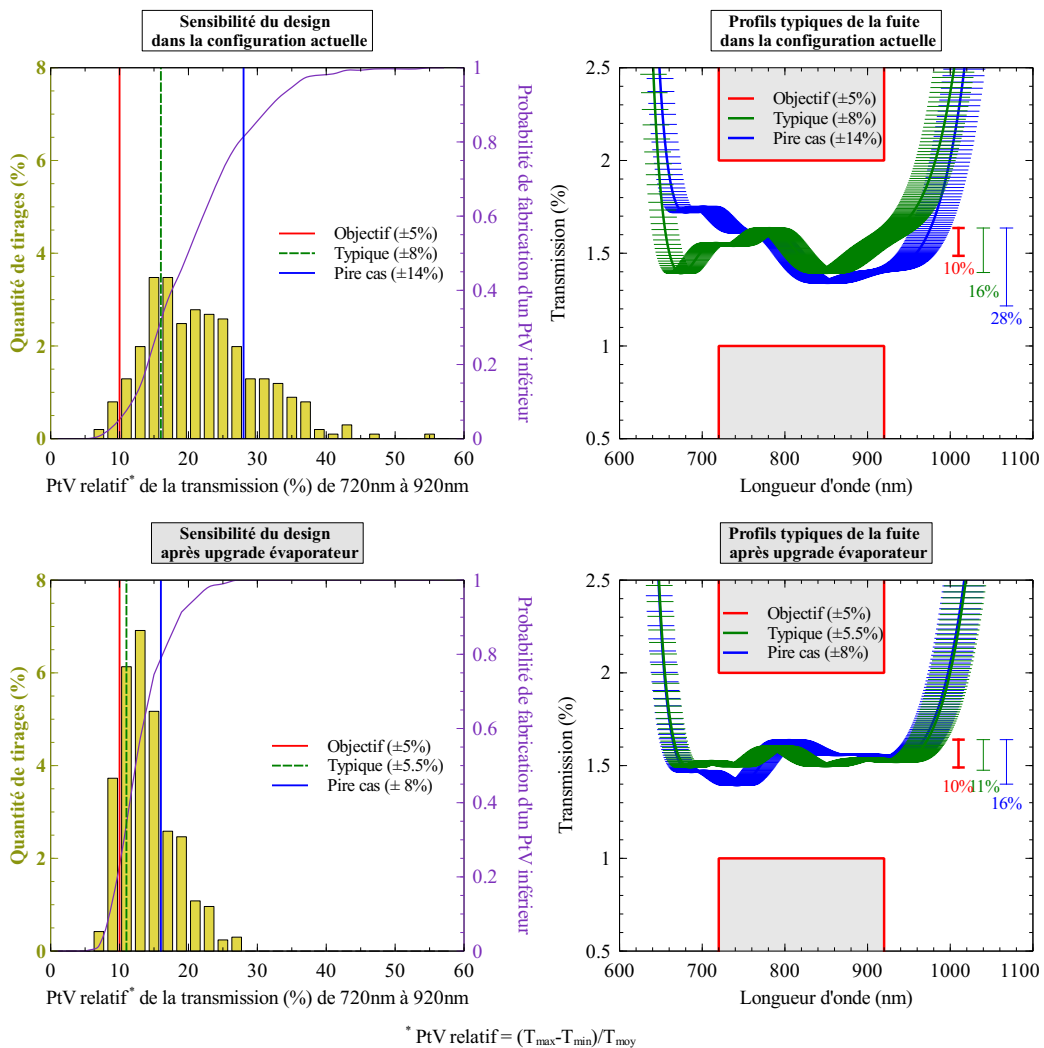


FIGURE 5.11 – Étude statistique de l'impact de l'erreur de fabrication sur la dispersion du niveau de transmission d'un miroir de diagnostic autour de son niveau moyen

Enfin, du point de vue de la tenue au flux laser, un niveau de résistance équivalent à celui des miroirs, dans les mêmes conditions d'utilisation, est attendu pour les optiques à faible niveau de transmission. Par contre plus la proportion d'énergie transmise augmente plus l'intensité du champ électrique augmente dans les couches profondes, c'est pourquoi les designs doivent être optimisés de manière différentes afin de répartir les surintensités du champ électrique situés en profondeur de l'empilement dans les matériaux les plus résistants.



## 5.2 Réseaux de diffraction

Dans un système laser ultra-intense, les réseaux de diffraction permettent la compression de l'impulsion avant son transport vers l'expérience. La structuration qui donne ses propriétés au réseau en fait l'un des composants les plus vulnérable en terme de résistance au flux laser. Les réseaux de diffraction limitent souvent la performance globale du système. Dans le cadre d'un projet intitulé REMED ("REseaux METallo- Diélectriques" pour la compression d'impulsions laser ultra-intenses) mené à l'aide d'un financement ASTRE (Action de Soutien à la Technologie et à la Recherche en Essonne) des travaux, pilotés par l'Equipe du projet Apollon 10P du Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intense (LULI) ont été menés conjointement avec l'Institut Fresnel, le Laboratoire d'Optique Appliqué (LOA), Horiba Jobin Yvon et Reosc autour de la fabrication de réseaux de diffraction de nouvelle génération. L'objectif de ce projet était de développer des réseaux de diffraction de grandes dimensions d'un type nouveau, destinés à proposer une alternative aux réseaux actuels recouverts d'or pour la compression d'impulsions intenses. Le but de ces nouveaux « designs » est d'augmenter les performances de ces réseaux en terme d'efficacité de diffraction, de tenue au flux laser, et de facilité de mise en œuvre (polarisation) tout en conservant une bande spectrale la plus large possible autour de 820nm (720-920nm) à partir d'un empilement hybride métal/multi-diélectrique et d'une structuration dans la couche supérieure de bas indice.

### 5.2.1 Conception

En plus des spécifications à obtenir, quel que soit le composant à concevoir, il faut tenir compte des contraintes de fabrication. C'est particulièrement le cas en ce qui concerne la conception d'un réseau de diffraction (cf. figure 5.12). En effet, non seulement les spécifications au niveau de l'utilisation finale sont à la limite de l'état de l'art mais les étapes de fabrication sont complexes et font intervenir des technologies spécifiques possédant leur propres exigences. Par exemple le processus de traitement impose certaines contraintes sur les épaisseurs des couches et sur le choix des matériaux, tandis que les procédés de structuration vont demander au traitement une résistance toute particulière à des environnement chimiques agressifs.

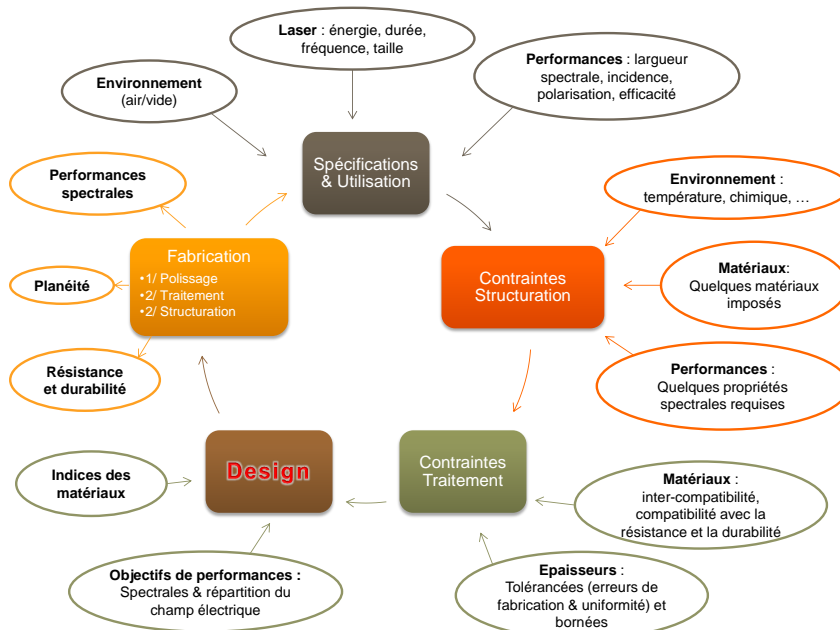


FIGURE 5.12 – Synthèse des paramètres à prendre en compte dans la conception d'un réseau de diffraction

Les propriétés finales souhaitées pour le réseau ont été définies par le LULI d'après des performances requises par le système *Apollon 10P*. A ces éléments se sont ensuite greffées les spécifications indispensables à la mise en œuvre des différentes étapes de fabrication (i.e. choix des matériaux) et à l'obtention des performances finales souhaitées en tenant compte des tolérances de fabrication (i.e. incertitudes sur la précision et répétabilité des épaisseurs de couches).

Environnement	Vide ( $10^{-7}$ )	Diamètre	>1000 mm
Spectre	720 – 920 nm	Incidence	56°
Durée d'impulsion	de 1.1 ns à 15 fs	Nombre de traits	1480 $\text{mm}^{-1}$
Fréquence	1 tir/min	Efficacité (ordre -1)	> 91 %
Polarisation	S	Tenue au flux laser	0.5 $\text{J}/\text{cm}^2$

TABLEAU 5.2 – Propriétés visée REMED

Une fois le besoin défini, la méthodologie de design décrite dans le brevet de BONOD et CHAMBARET [6] a pu être déroulée par l'Institut Fresnel à partir des propriétés des matériaux fournies par Reosc. Plusieurs itérations, entre le calcul de l'empilement et l'analyse de la fabricabilité, ont été nécessaires avant d'aboutir à un design compatible avec les spécifications du produit final et les tolérances de fabrication. Le calcul des performances théoriques du design retenu (figure 5.13) montre une efficacité moyenne de 96% (moyenne pondérée par l'intensité spectrale) et une distribution plutôt favorable du champ électrique puisque la surintensité maximale ne se situe pas la zone structurée (2), mais dans une couche profonde (1) moins sensible aux erreurs de fabrication et à l'environnement d'utilisation.

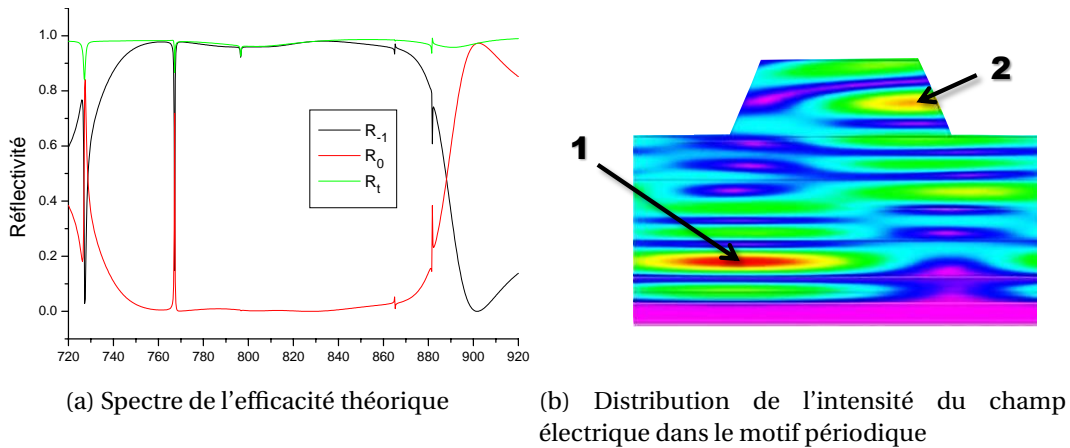


FIGURE 5.13 – Performance théorique du design retenu pour la fabrication des réseaux MMLD

### 5.2.2 Fabrication

La fabrication du réseau se déroule en deux étapes majeures : le dépôt de l'empilement puis sa structuration. La gravure des traits du réseau relevant exclusivement des compétences d'Horiba Jobin Yvon, l'intérêt est porté ici sur les développements menés par Reosc dans le cadre du dépôt de l'empilement. Pour Reosc, l'enjeu de la fabrication est ici particulier puisque le critère de succès ne correspond pas à l'obtention d'une fonction optique opérationnelle (miroir, antireflet, ...) mais à la réalisation du dépôt théorique (figure 5.14) ce qui ne laisse de place à aucune compensation

du design entre les couches.

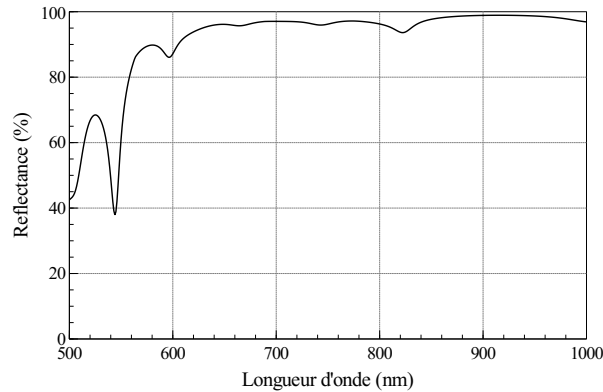


FIGURE 5.14 – Réflectivité théorique, à 56°, du traitement du réseau hybride métal/diélectrique.

Dans le but de travailler sur une quantité suffisante de substrats pour la validation de l'ensemble des étapes du processus de fabrication tout en gardant la représentativité d'un composant de classe 1m, il a été décidé de réaliser le dépôt de l'empilement du réseau sur une matrice de 16 substrats de dimension 120x140mm<sup>2</sup> en Silice et en BK7. Les substrats ont été traités dans l'évaporateur BAK1730 (cf. §3.2.2.4) selon le plan d'engagement représenté figure 5.15.

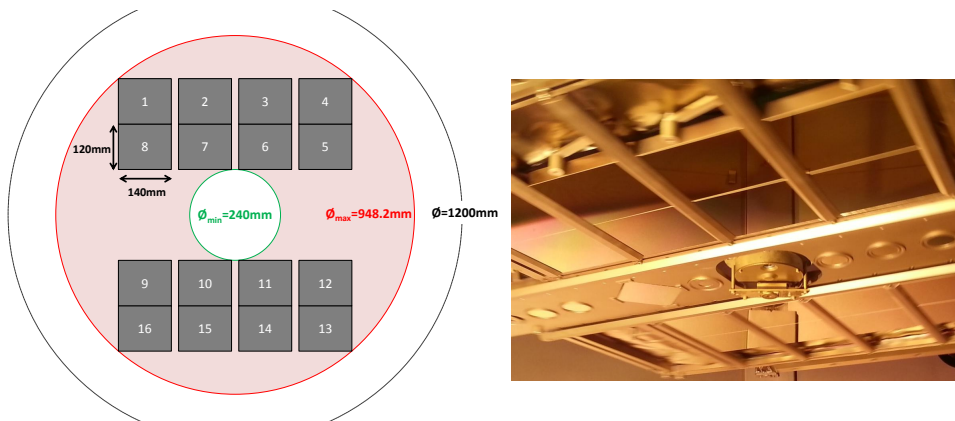


FIGURE 5.15 – Implantation des substrats dans l'évaporateur pour le traitement des réseaux MMLD

Le premier challenge technologique dans la réalisation d'un empilement hybride métal/diélectrique est l'obtention de la compatibilité des matériaux entre eux et particulièrement l'accroche du métal sur le substrat, puis de l'empilement multi-diélectriques sur le métal. La compatibilité d'accroche entre les matériaux est indispensable à la garantie du maintien de l'intégrité du traitement pendant tout le processus de fabrication et toute la durée de son utilisation. Après plusieurs évaporations d'ajustement, les paramètres ont pu être figés. Le traitement complet, réalisé au cours d'une évaporation de validation a passé avec succès le test d'adhérence selon la norme ISO 9211-4-02 avec le niveau de sévérité de degrés 02.

Les évaporations de validation ont montré qu'une amélioration du système de contrôle des couches in-situ était nécessaire afin de minimiser les erreurs de fabrication. En effet, la particularité du design établi est que les épaisseurs des couches à déposer sont d'une très

grande amplitude (de quelques dizaines de nanomètres à près d'un micron). Le challenge fixé était d'atteindre une précision sur l'épaisseur des couches meilleure que 5%, c'est à dire une précision de quelques nanomètres à moins de 50nm. L'une des contraintes particulières est la présence du métal qui rend impossible l'utilisation du contrôle optique en transmission qui permet habituellement d'atteindre des précisions proches de 1% sur l'épaisseur des couches.

### 5.2.3 Caractérisations de l'empilement non structuré

Les mesures spectrales du traitement réalisé (figure 5.16) montrent un léger écart par rapport à la théorie qui s'explique par les erreurs sur l'épaisseur des couches (bien qu'elles soient inférieures à 5%) et également l'écart de la dispersion des indices des matériaux entre les simulations et le réalisé. Le traitement déposé est compatible avec la phase de structuration pour l'obtention des performances finales. De plus, le défaut d'uniformité mesuré n'excède pas 2%. La mesure du décalage spectral air/vide de l'empilement est présenté sur la figure 5.17. Cette valeur de 3% est lié au design retenu et au procédé de dépôt utilisé.

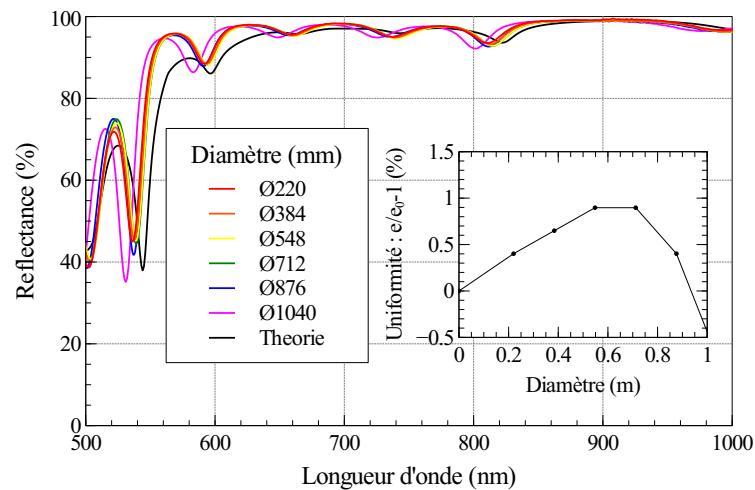


FIGURE 5.16 – Réflectivité mesurée, à 56°, du traitement du réseau hybride métal/diélectrique et uniformité avant le procédé de structuration

L'évaporation sous vide des matériaux génère des contraintes qui entraînent une déformation du substrat. De plus, la technologie de dépôt EBD ne permet pas de réaliser des dépôts totalement denses. C'est pourquoi on observe d'une part une évolution des contraintes au cours du temps et d'autre part une différence entre l'air et le vide. Or afin de maîtriser le front d'onde d'un composant optique sur toute la durée de son utilisation il est indispensable de connaître les propriétés du traitement en terme de contraintes. L'évolution des contraintes du traitement des réseaux MMLD est reporté sur la figure 5.18. Enfin, le traitement réalisé présente un aspect conforme à la norme NF ISO10110, Méthode 1 (5/17x0.25 L17x0.025), une adhérence conforme à la norme ISO 9211-4-02 ainsi qu'une résistance à l'abrasion et au nettoyage compatible des applications lasers.

L'intérêt de réaliser des test de tenue au flux sur l'empilement non structuré n'est pas d'une évidence absolue. En effet, la plupart des designs de réseaux construits à partir de matériaux diélectriques sont réalisés à partir d'un miroir dont la couche supérieure est structurée. Dans ce cas classique, la distribution du champ électrique fait apparaître le pic d'intensité maximale dans les couches supérieures du miroir et dans les piliers structurés dans le réseaux. Par contre, dans le cas de la solution retenue pour le projet REMED, la surintensité du champ électrique se situe dans

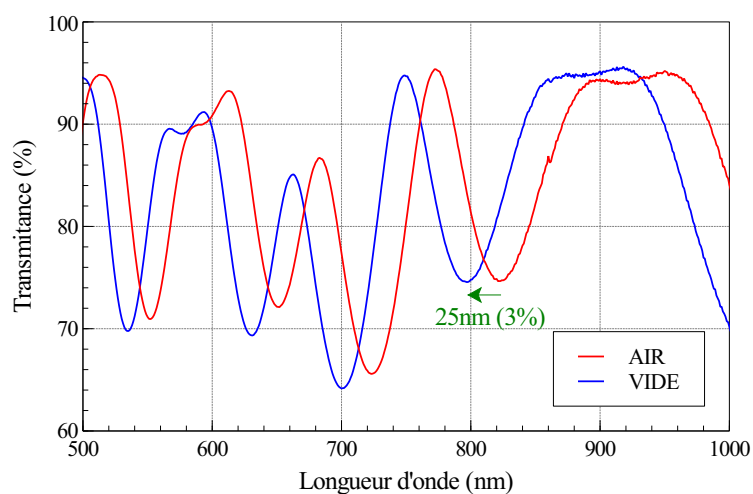


FIGURE 5.17 – Mesure du décalage spectral de l’air au vide de la partie diélectrique de l’empilement hybride du réseau (transmission à 0°). La mesure à l’air est réalisée juste avant le pompage dans le même dispositif que la mesure sous vide. La mesure sous vide est réalisée après 12h de pompage avec un vide de  $10^{-4}$  mbar.

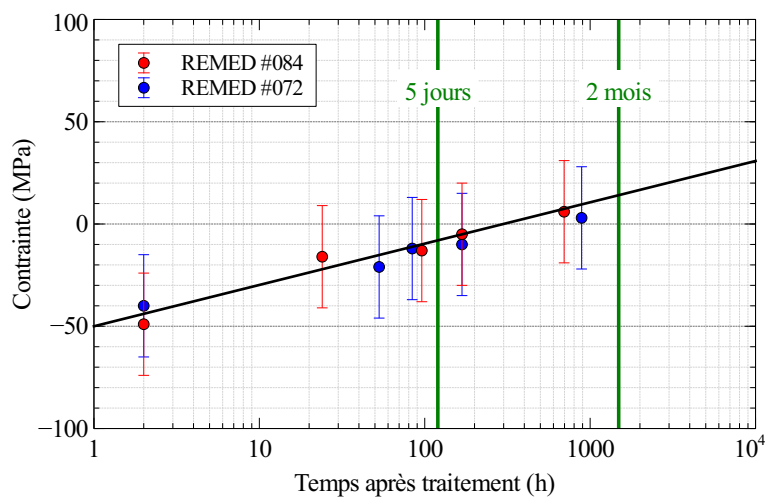


FIGURE 5.18 – Évolution des contraintes du traitement pour les réseaux MMLD

la même couche que ce soit dans l'empilement non structuré que dans le réseau avec un niveau équivalent. Or, comme nous l'avons montré dans le chapitre précédent, en régime femtoseconde il est possible de prédire la tenue au flux d'un empilement à partir de la tenue au flux des matériaux dans les mêmes conditions de test. Ainsi le seuil de tenue au flux du réseau est théoriquement comparable au seuil de tenue au flux de l'empilement non gravé. Cela présente l'avantage de pouvoir évaluer la résistance au flux laser du réseau très tôt dans le processus de fabrication et ainsi d'avoir la capacité d'identifier une éventuelle défaillance du traitement avant de procéder à la longue et risquée étape de structuration. Pour l'analyse, il faut prendre garde au fait que dans le cas de l'empilement non structuré, la distribution latérale du champ électrique est uniforme alors que dans le cas du réseau les surintensités (bien que de niveau équivalent) sont réparties périodiquement dans la direction perpendiculaire aux traits structurés.

Le test de tenue au flux laser sur l'empilement non structuré a été réalisé sur un échantillon de diamètre 50mm issu du même run de traitement que les pièces 120x140mm<sup>2</sup>. Ce test s'est déroulé sur la plateforme ASUR du LP3 dans les conditions décrites au chapitre 2.2.3 (1:1, 12fs, 800nm) sous l'incidence de travail du réseau soit 56° en polarisation S (figure 5.19). Un seuil de 210 ±42 mJ/cm<sup>2</sup> a été mesurée. La morphologie des dommages (figure 5.19) montre que l'endommagement se produit initialement en profondeur, ce qui est cohérent avec la répartition du champ électrique.

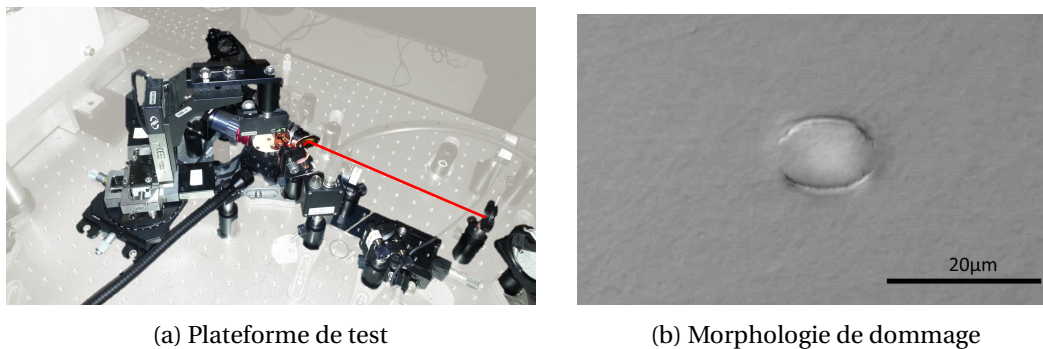


FIGURE 5.19 – Test d'endommagement laser du traitement hybride métal/diélectrique à 12fs, 800nm

#### 5.2.4 Caractérisations du réseau

Après plusieurs mois de mise au point, la structuration du traitement a été réalisé avec succès par Horiba Jobin Yvon. Quelques pièces 120x140mm<sup>2</sup> ont donc pu aller jusqu'au bout du processus de fabrication (figure 5.20). Une paire de ces réseaux est destinée au montage d'un compresseur pour une caractérisation en conditions opérationnelles de l'efficacité de compression. Les autres composants ont pu être caractérisés en terme d'efficacité de diffraction et tenue au flux laser.

Les mesures d'efficacité ont été réalisés au LOA en utilisant un oscillateur Ti:Sa. Les mesures donnent une efficacité voisine de 95.5% et font apparaître les pics d'absorption qui avait été calculés théoriquement apparaissent clairement sur les mesures.

Enfin, des tests de tenue au flux laser ont été réalisés au LP3 sur les réseaux finalisés. Ces tests ont été réalisés dans des conditions similaires à celles décrites au paragraphe 2.2.3. Pour que les résultats de ces tests soit plus convainquant qu'une valeur absolue tolérance, des tests ont été réalisés en parallèle sur un réseau or. Les résultats des tests sont reportés sur la figure 5.21. On notera que la tenue au flux laser du réseau MMLD est plus de trois fois supérieure à la tenue au

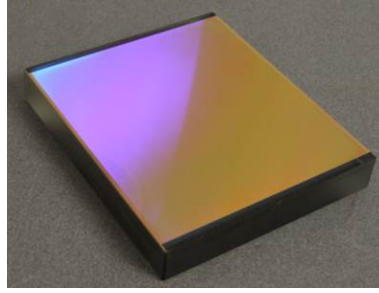
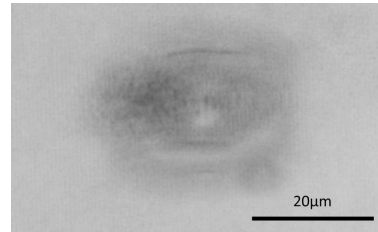
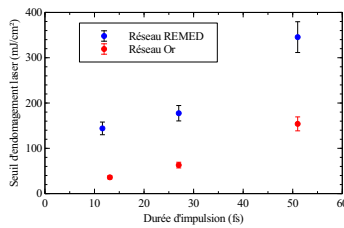


FIGURE 5.20 – Photo d'un réseau MMLD terminé

flux du réseau or. D'autre part la morphologie de l'endommagement montre que même si les traits structurés sont endommagés à fluence élevée (comme sur l'image), le premier dommage apparaît en profondeur comme c'était le cas pour l'empilement non structuré.



(a) TFL d'un réseau MMLD et d'un Réseau Or à différentes durées d'impulsion (b) Morphologie de dommage du réseau MMLD

FIGURE 5.21 – Résistance au flux laser d'un réseau hybride métal/diélectrique

## Conclusion

Une infrastructure laser de puissance contient de nombreuses optiques de transport dont la majorité sont des miroirs. Nous avons mis au point deux types de design capable de répondre aux spécifications de la plupart de ces optiques. Un traitement constitué intégralement de matériaux diélectriques (MLD) et un traitement hybride métal/diélectriques (MMLD). Si le traitement MLD est globalement plus performant sur le plan du niveau de réflectivité, le design MMLD permet d'adresser des spectres plus larges et garantit une dispersion de vitesse de groupe exceptionnellement basse. A performances spectrales équivalentes, ces deux traitements présentent le niveau de résistance au flux laser le meilleur du marché. Ces performances ont pu être atteintes grâce à des choix de design faisant suite à étude rigoureuse des performances individuelles des matériaux en couches élémentaires et dans des empilements, ainsi que la grande maîtrise des procédés de fabrication d'optique laser par Reosc.

Ces traitements ont déjà pu être appliqués sur différents types de composants réfléchissants comme des miroirs plans, un périscope, une membrane pour miroir actif ou encore une parabole hors d'axe à 90°. Par ailleurs, des designs d'optiques semi-réfléchissantes ont pu être étudiés afin de répondre aux spécifications uniques des séparatrices et des miroirs de diagnostics principalement liées à l'étendue du spectre des faisceaux laser.

Enfin, dans le cadre du projet REMED, nous avons pu participer, à travers la réalisation du traitement, au succès de la production de démonstrateurs de réseaux de diffraction de nouvelle génération.







# Conclusion générale

La motivation de ces travaux réside dans la volonté des trois partenaires que sont Reosc, l'Institut Fresnel et le LOA de réunir leurs compétences respectives (étude et métrologie de l'interaction laser matière, design et fabrication d'optiques, développeur et utilisateur de laser haute puissance), afin de répondre au besoin grandissant pour les lasers ultra-intenses de larges optiques de transport compatibles avec des impulsions comprimées ultra-courtes .

La nécessité de disposer d'un procédé de fabrication prêt à l'utilisation à l'issue des travaux nous a contraint à mener de front plusieurs aspects de l'étude et à développer tout à la fois le moyen de caractérisation, le procédé dans ces détails les plus opérationnels sur évaporateur de grandes dimensions, le design de divers composants et les études des matériaux. Plusieurs itérations ont été nécessaires avant de converger vers un procédé suffisamment performant.

Au niveau de la fabrication, nous nous sommes largement appuyés sur les acquis des développements couches minces réalisés en régime nanosecondes. Cependant des développements et des optimisations de procédés ont été nécessaires, d'une part pour les matériaux qui n'étaient pas utilisés en régime nanoseconde et d'autre part pour les matériaux nécessitant un transfert vers un grand évaporateur. Les principaux développements se sont portés sur le paramétrage des conditions d'évaporation et des systèmes de contrôles in-situ de l'épaisseur des couches.

D'un point de vue de la caractérisation des couches minces optiques c'est autour de la tenue au flux laser que nous nous sommes concentrés.

En effet, d'une part, nous avons fait évoluer la plateforme "sub-fs" déjà complètement fonctionnelle de l'Institut Fresnel pour réaliser des mesures sous incidence et avec la polarisation souhaitée. Nous avons également mis à jour le logiciel de pilotage de la plateforme afin d'augmenter les possibilités de tests automatisés et de faciliter l'extraction des données. Du point de vu des caractérisations, avons essayé de mettre en évidence le type de défaut présent dans les traitements en testant leur dépendance en température. Enfin nous avons contribué à la mise en place d'une plateforme de test raster-scan utilisant la même source laser que la plateforme de tests standards et des miroirs galvanométriques pour le balayage.

D'autre part, nous avons installé une plateforme de test d'endommagement laser automatisée au LOA permettant des mesures dans des conditions plus proches (spectralement et temporellement) de l'application visée par les recherches. La plateforme sera prochainement déplacée dans le bâtiment du laser Apollon 10P afin d'améliorer les conditions de tests (laser et environnement).

Enfin, concernant les outils de simulation, un programme de calcul de la répartition du champ électrique en régime stationnaire par méthode matricielle a été amélioré afin de prendre en compte le calcul sur de larges bandes spectrales et un code de calcul de la répartition du champ électrique par méthode FDTD 1D a été implémenté. Il nous a ainsi été possible d'optimiser la répartition du champ électrique dans les différents empilements au stade de conception ou après fabrication.

Ces travaux nous ont permis de constituer une base de données conséquente sur la tenue au flux laser de matériaux diélectriques utilisés par Reosc avec des conditions de fabrication et de test entièrement maîtrisées. L'ensemble des tests de tenue au flux laser que nous avons réalisés nous a permis de gagner en expérience pour l'analyse et la comparaison des résultats de test d'endommagement ainsi que pour la communication des résultats et des extrapolations lors d'un appel d'offre par exemple. Les résultats obtenus dans cette étude nous ont finalement permis de mettre au point des traitements de haute réflectivité (design et procédé) compatibles avec le besoin des optiques de transport pour les lasers de puissance à impulsions femtosecondes (largeur spectrale, GDD, tenue au flux laser). Enfin, nous avons contribué à une avancée technologique majeure en participant à la conception et en réalisant le traitement couches minces d'un réseau hybride métal diélectrique à haute tenue au flux laser en impulsions ultra-brèves.

Les travaux réalisés au cours de cette thèse ont permis de montrer que les 40 ans de développement menés par Reosc pour la fabrication d'optiques par les programmes laser du CEA (Octal, Phebus, LIL, LMJ, ...) restent un acquis fondamental pour toutes les applications laser. En effet, le traitement dit "ARTHEMIS" reste d'un point de vue tenue au flux laser l'un des plus résistants au monde quelle que soit la durée des impulsions. De plus, bien que la plupart des investigations en régime femtoseconde soient menées sur des matériaux déposés par des procédés plus énergétiques, les résultats de ces travaux montrent que les technologies EBD et IAD sont tout à fait compatibles avec les applications lasers ultra-intenses avec des seuils de tenue au flux des empilements prédictifs à partir de la connaissance du design (répartition du champ électrique) et des propriétés intrinsèques des matériaux utilisés (indice, bandgap, tenue au flux laser). Les résultats de ces développements ont permis de mettre sur le marché international des traitements à la réflectivité supérieure à 99% et à GDD minimisée sur des largeurs spectrales supérieures à 200nm possédant une résistance au flux laser en régime femtoseconde 4 à 5 fois plus élevée que les traitements standards à largeur spectrale équivalente.

L'aboutissement de ces travaux est la production actuelle de composants laser. Au moment de la rédaction de la synthèse de ces travaux, une vingtaine de miroirs de dimension 300x200mm ont déjà été livrés, dont un périscope, et attendent leur installation dans le laser Apollon 10P. Une vingtaine d'autres sont en cours de production dont deux miroirs déformables ( $\phi 350mm$ ) et un hublot ( $\phi 500mm$ ).

La prochaine étape au niveau de la fabrication est la mise en production de pièces de classe métrique (miroirs et réseaux). D'un point de vue des tests, des études de tenue au flux laser avec des faisceaux de taille centimétriques et sous vide doivent encore être menées. Enfin, ces travaux ont été centrés sur les impulsions comprimées, cependant l'étude de la tenue au flux laser des couches minces en régime étiré est un axe de recherche qui doit être envisagé pour éventuellement accroître la performance des lasers de puissance.

# Bibliographie

- [1] ABROMAVICIUS, G., R. BUZELIS, R. DRAZDYS, A. MELNINKAITIS et V. SIRUTKAITIS. 2007, «Influence of electric field distribution on laser induced damage threshold and morphology of high reflectance optical coatings», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 6720, Proc. SPIE, p. 67 200Y–8. [24](#)
- [2] ANGELOV, I. B., A. VON CONTA, S. A. TRUSHIN, Z. MAJOR, S. KARSCH, F. KRAUSZ et V. PERVAK. 2011, «Investigation of the laser-induced damage of dispersive coatings», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 8190, Proc. SPIE, p. 81 900B–1–7. [22](#)
- [3] BIEN-AIMÉ, K. 2009, *Impact de l'environnement sur l'endommagement laser des optiques de silice du Laser MégaJoule*, thèse de doctorat, Université Bordeaux I. [33](#)
- [4] BIEN-AIMÉ, K., C. BELIN, L. GALLAIS, P. GRUA, E. FARGIN, J. NÉAUPORT et I. TOVENA-PECAULT. 2009, «Impact of storage induced outgassing organic contamination on laser induced damage of silica optics at 351 nm», *Optics Express*, vol. 17, n° 21, p. 18 703–18 713. [40](#)
- [5] BLOEMBERGEN, N. 1974, «Laser-induced electric breakdown in solids», *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 10, n° 3, p. 375–386. [20](#)
- [6] BONOD, N. et J.-P. CHAMBARET. 2011, «Optimized Dielectric Reflective Diffraction Grating», WO2011/073554A1. [117](#)
- [7] BONSE, J., A. ROSENFELD et J. KRÜGER. 2011, «Implications of transient changes of optical and surface properties of solids during femtosecond laser pulse irradiation to the formation of laser-induced periodic surface structures», *Applied Surface Science*, vol. 257, n° 12, p. 5420 – 5423. [40](#)
- [8] BORN, M. et E. WOLF. 1999, *Principles of Optics*, Cambridge University Press. [19](#)
- [9] BUSSIÈRE, B. 2007, *Etude des mécanismes d'endommagement par laser impulsif des cristaux de Saphir dopé Titane*, thèse de doctorat, Université de la Méditerranée Aix-Marseille II. [39](#)
- [10] CHMEL, A. 1997, «Fatigue laser-induced damage in transparent materials», *Materials Science and Engineering : B*, vol. 49, n° 3, p. 175 – 190. [40](#)
- [11] DAI, Y., M. HE, H. BIAN, B. LU, X. YAN et G. MA. 2012, «Femtosecond laser nanostructuring of silver film», *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, vol. 106, n° 3, p. 567–574. [22](#)

- [12] DIDDAMS, S. et J.-C. DIELS. 1996, «Dispersion measurements with white-light interferometry», *Journal of Optical Society of America B*, vol. 13, n° 6, p. 1120–1129. [73](#)
- [13] DIELS, J.-C. M., J. J. FONTAINE, I. C. MCMICHAEL et F. SIMONI. 1985, «Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy», *Applied Optics*, vol. 24, n° 9, p. 1270–1282. [29](#)
- [14] DOUTI, D.-B., L. GALLAIS et M. COMMANDRÉ. 2014, «Laser-induced damage of optical thin films submitted to 343, 515, and 1030 nm multiple subpicosecond pulses», *Optical Engineering*, vol. 53, n° 12, p. 122 509. [40](#)
- [15] DU, D., X. LIU et G. MOUROU. 1996, «Reduction of multi-photon ionization in dielectrics due to collisions», *Applied Physics B*, vol. 63, p. 617–621. [24](#)
- [16] EFIMOV, O. M., K. GABEL, S. V. GARNOV, L. B. GLEBOV, S. GRANTHAM, M. RICHARDSON et M. J. SOILEAU. 1998, «Color-center generation in silicate glasses exposed to infrared femtosecond pulses», *Journal of Optical Society of America B*, vol. 15, n° 1, p. 193–199. [40](#)
- [17] EMMERT, L. A., D. N. NGUYEN, M. MERO, W. RUDOLPH, D. RISTAU, K. STARKE, M. JUPE, C. S. MENONI, D. PATEL et E. KROUS. 2009, «Fundamental processes controlling the single and multiple femtosecond pulse damage behavior of dielectric oxide films», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7504, Proc. SPIE, p. 75 040P–10. [82](#)
- [18] FELLGETT, P. B. 1949, «On the ultimate sensitivity and practical performance of radiation detectors», *Journal of Optical Society of America*, vol. 39, n° 11, p. 970–976. [73](#)
- [19] FIELD, E. S., J. C. BELLUM et D. E. KLETECKA. 2013, «Laser damage comparisons of broadbandwidth, high-reflection optical coatings containing TiO<sub>2</sub>, Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, or Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> high index layers», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 8885, Proc. SPIE, p. 88 851X–8. [24](#)
- [20] GALLAIS, L., E. BERGERET, B. WANG, M. GUERIN et E. BÈNEVENT. 2014, «Ultrafast laser ablation of metal films on flexible substrates», *Applied Physics A*, vol. 115, n° 1, p. 177–188. [22](#)
- [21] GALLAIS, L. et M. COMMANDRÉ. 2014, «Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030nm, 500fs», *Applied optics*, vol. 53, n° 4, p. A186–96. [23](#), [41](#), [97](#)
- [22] GALLAIS, L., B. MANGOTE, M. ZERRAD, M. COMMANDRÉ, A. MELNINKAITIS, J. MIRAUSKAS, M. JESKEVIC et V. SIRUTKAITIS. 2011, «Laser-induced damage of hafnia coatings as a function of pulse duration in the femtosecond to nanosecond range», *Applied Optics*, vol. 50, n° 9, p. C178–C187. [23](#)
- [23] GALLAIS, L., J. NATOLI et C. AMRA. 2002, «Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses», *Optics Express*, vol. 10, n° 25, p. 1465–1474. [40](#)
- [24] GALLAIS, L. et J.-Y. NATOLI. 2003, «Optimized metrology for laser-damage measurement : application to multiparameter study», *Applied Optics*, vol. 42, n° 6, p. 960–971. [37](#)
- [25] GAMALY, E., A. RODE, B. LUTHER-DAVIES et V. TIKHONCHUK. 2002, «Ablation of solids by femtosecond lasers : Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics», *Physics of Plasmas*, vol. 9, n° 3, p. 949–957. [24](#), [40](#)

- 
- [26] GONTIER, Y. et M. TRAHIN. 1973, «Multiphoton Ionization Induced by Circularly Polarized Radiation», *Physical Review A*, vol. 7, p. 2069–2073. [24](#)
- [27] HILDENBRAND, A., F. R. WAGNER, H. AKHOUAYRI, J.-Y. NATOLI, M. COMMANDRÉ, F. THÉODORE et H. ALBRECHT. 2009, «Laser-induced damage investigation at 1064nm in  $\text{KTiOPO}_4$  crystals and its analogy with  $\text{RbTiOPO}_4$ », *Applied Optics*, vol. 48, n° 21, p. 4263–4269. [40](#)
- [28] HUE, J., J. DIJON, P. GARREC, G. RAVEL, L. POUPINET et P. LYAN. 1999, «Beam characterization : application to the laser damage threshold», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 3578, Proc. SPIE, p. 633–644. [37](#)
- [29] IACONIS, C. et I. A. WALMSLEY. 1998, «Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses», *Optics Letters*, vol. 23, n° 10, p. 792–794. [29](#)
- [30] IBRAHIM, W. M. G., H. ELSAYED-ALI, M. SHINN et C. E. BONNER. 2003, «Femtosecond damage threshold of multi-layer metal films», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 4932, Proc. SPIE, p. 55–65. [22](#)
- [31] INSTITUT D'OPTIQUE. 2012, «Front-end Apollon 10PW», URL [www.lcf.institutoptique.fr/Groupes-de-recherche/Lasers/Thematiques/Projet-Apollon-10-PW](http://www.lcf.institutoptique.fr/Groupes-de-recherche/Lasers/Thematiques/Projet-Apollon-10-PW). [15](#)
- [32] ITER. 2015, «Site web du projet», URL [www.iter.org](http://www.iter.org). [12](#)
- [33] ITINA, T. E., O. UTÉZA, N. SANNER et M. SENTIS. 2008, «Ultra-short laser interaction with metals and optical multi-layer materials : transport phenomena and damage thresholds», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7005, Proc. SPIE, p. 1–10. [22](#)
- [34] JACKSON, W. B., N. M. AMER, A. C. BOCCARA et D. FOURNIER. 1981, «Photothermal deflection spectroscopy and detection», *Applied Optics*, vol. 8, n° 1333. [72](#)
- [35] JASAPARA, J., A. NAMPOOTHIRI, W. RUDOLPH, D. RISTAU et K. STARKE. 2001, «Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films», *Physical Review B*, vol. 63, n° 4, p. 1–5. [23](#), [24](#)
- [36] JOGLEKAR, A. P., H. LIU, G. J. SPOONER, E. MEYHOFER, G. MOUROU et A. J. HUNT. 2003, «A study of the deterministic character of optical damage by femtosecond laser pulses and applications to nanomachining», *Applied Physics B*, vol. 77, p. 25–30. [24](#)
- [37] JUPE, M., M. LAPPSCHIES, L. JENSEN, K. STARKE, D. RISTAU, A. MELNINKAITIS, V. SIRUTKAITIS, I. CRAVETCHI et W. RUDOLPH. 2007, «Mixed oxide coatings for advanced fs-laser applications», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 6720, Proc. SPIE, p. 67 200U–13. [25](#), [40](#), [99](#)
- [38] KITRIOTIS, D. et L. D. MERKLE. 1989, «Multiple pulse laser-induced damage phenomena in silicates», *Applied Optics*, vol. 28, n° 5, p. 949–958. [40](#)
- [39] KITTEL, C. 2005, *Introduction to Solid State Physics*, Wiley. [19](#)
- [40] KOLDUNOV, M. F., A. A. MANENKOV et I. L. POKOTILO. 1998, «Thermoelastic and ablation mechanisms of laser damage to the surfaces of transparent solids», *Quantum Electronics*, vol. 28, n° 3, p. 269. [40](#)
- [41] KOVÁCS, A. P., R. SZIPÖCS, K. OSVAY et Z. BOR. 1995, «Group-delay measurement on laser mirrors by spectrally resolved white-light interferometry», *Optics Letters*, vol. 20, n° 7, p. 788–790. [73](#)

- [42] KRÜGER, J., D. DUFFT, R. KOTER et A. HERTWIG. 2007, «Femtosecond laser-induced damage of gold films», *Applied Surface Science*, vol. 253, n° 19, p. 7815 – 7819. [22](#)
- [43] LAMAIGNÈRE, L., S. BOUILLET, R. COURCHINOX, T. DONVAL, M. JOSSE, J.-C. PONCETTA et H. BERCEGOL. 2007, «An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials», *Review of scientific instruments*, vol. 78, n° 10. [34](#)
- [44] LE BLANC, C., D. PAPADOPOULOS, G. CHÉRIAUX, P. GEORGES, J. ZOU, G. MENNERAT, F. DRUON, A. PELLEGRINA, P. RAMIREZ, F. GIAMBRUNO, A. FRÉNEAUX, F. LECONTE, D. BADARAU, J. BOUDENNE, P. AUDEBERT, D. FOURNET, T. VALLOTON, C. GREVERIE, J. PAILLARD, J. VERAY, M. PINA, P. MONOT, P. MARTIN, F. MATHIEU, J. CHAMBARET et F. AMIRANOFF. 2013, «The Apollon-10P project : Design and diagnostics challenges», . [15](#)
- [45] LEE, C. S., N. KOUMVAKALIS et M. BASS. 1983, «A theoretical model for multiple-pulse laser-induced damage to metal mirrors», *Journal of Applied Physics*, vol. 54, n° 10, p. 5727–5731. [40](#)
- [46] LEPLAN, H. 1992, *Les contraintes dans les couches minces optiques*, thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble. [74](#)
- [47] LISSBERGER, P. H. 1970, «Optical applications of dielectric thin films», *Reports on Progress in Physics*, vol. 33, n° 197. [19](#)
- [48] LMJ. 2014, «Site web du projet», URL [www-lmj.cea.fr](http://www-lmj.cea.fr). [12](#)
- [49] MAGLIONE, M. et R. DECOURT. 2010, *Matériaux diélectriques*, Techniques de l'ingénieur. [19](#)
- [50] MANGOTE, B. 2011, *Tenue au flux des couches minces optiques en régime subpicoseconde*, thèse de doctorat, Université Paul Cézanne – Aix Marseille III. [41](#), [92](#)
- [51] MANGOTE, B., L. GALLAIS, M. COMMANDRÉ, M. MENDE, L. JENSEN, H. EHLERS, M. JUPÉ, D. RISTAU, A. MELNINKAITIS, J. MIRAUSKAS, V. SIRUTKAITIS, S. KIČAS, T. TOLÉNIS et R. DRAZDYS. 2012, «Femtosecond laser damage resistance of oxide and mixture oxide optical coatings», *Optics Letters*, vol. 37, n° 9, p. 1478–80. [82](#), [97](#)
- [52] MANGOTE, B., L. GALLAIS, M. ZERRAD, F. LEMARCHAND, L. H. GAO, M. COMMANDRÉ et M. LEQUIME. 2012, «A high accuracy femto-/picosecond laser damage test facility dedicated to the study of optical thin films», *Review of scientific instruments*, vol. 83, n° 1, p. 013 109. [42](#)
- [53] MARTIN, L. P., M. A. NORTON et G. THOMAS. 2001, «Ultrasonic monitoring of laser damage in fused silica», *Applied Physics Letters*, vol. 78, n° 22, p. 3403–3405. [37](#)
- [54] MELNINKAITIS, A., D. MIKSYS, T. BALCIUNAS, O. BALACHNINAITE, T. RAKICKAS, R. GRIGONIS et V. SIRUTKAITIS. 2006, «Automated test station for laser-induced damage threshold measurements according to iso 11254-2 standard», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 6101, Proc. SPIE, p. 61 011J–61 011J–10. [37](#)
- [55] MELNINKAITIS, A., T. TOLÉNIS, L. MAŽULĖ, J. MIRAUSKAS, V. SIRUTKAITIS, B. MANGOTE, X. FU, M. ZERRAD, L. GALLAIS, M. COMMANDRÉ, S. KIČAS et R. DRAZDYS. 2011, «Characterization of zirconia– and niobia–silica mixture coatings produced by ion-beam sputtering», *Applied Optics*, vol. 50, n° 9, p. C188–C196. [23](#)
- [56] MENDE, M., S. SCHRAMEYER, H. EHLERS, D. RISTAU et L. GALLAIS. 2013, «Laser damage resistance of ion-beam sputtered Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> mixture optical coatings», *Applied Optics*, vol. 52, n° 7, p. 1368–76. [23](#), [88](#)

- 
- [57] MENG, Z.-Y., S.-L. HUANG, Z. LIU, C.-H. ZENG et Y.-K. BU. 2012, «Design and fabrication of a novel high damage threshold HfO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> multilayer laser mirror», *Optoelectronics Letters*, vol. 8, n° 3, p. 190–192. [24](#)
- [58] MERKLE, L. D., N. KOUMVALALIS et M. BASS. 1984, «Laser-induced bulk damage in SiO<sub>2</sub> at 1.064, 0.532, and 0.355 μm», *Journal of Applied Physics*, vol. 55, n° 3, p. 772–775. [40](#)
- [59] MERO, M., B. CLAPP, J. C. JASAPARA, W. RUDOLPH, D. RISTAU, K. STARKE, J. KRÜGER, S. MARTIN et W. KAUTEK. 2005, «On the damage behavior of dielectric films when illuminated with multiple femtosecond laser pulses», *Optical Engineering*, vol. 44, n° 5, p. 051 107. [40](#)
- [60] MERO, M., L. A. EMMERT et W. RUDOLPH. 2008, «The role of native and photoinduced defects in the multi-pulse subpicosecond damage behavior of oxide films», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7132, Proc. SPIE, p. 713 209–713 209–10. [82](#)
- [61] MERO, M., J. LIU, W. RUDOLPH, D. RISTAU et K. STARKE. 2005, «Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films», *Physical Review B*, vol. 71, n° 11, p. 1–7. [23](#), [39](#)
- [62] MOUROU, G. et T. TAJIMA. 2012, «Exploring fundamental physics at the highest-intensity-laser frontier», *SPIE Newsroom*, p. 10–11. [13](#)
- [63] MOUROU, G. A., G. KORN, W. SANDNER et J. L. COLLIER. 2011, «Whitebook ELI – Extreme Light Infrastructure; science and technology with ultra-intense lasers», URL [www.extreme-light-infrastructure.eu](http://www.extreme-light-infrastructure.eu). [12](#), [14](#)
- [64] NEAUPOURT, J., E. LAVASTRE, G. RAZÉ, G. DUPUY, N. BONOD, M. BALAS, G. DE VILLELE, J. FLAMAND, S. KALADGEW et F. DESSEROUER. 2007, «Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings», *Optics Express*, vol. 15, n° 19, p. 12 508–12 522. [24](#), [31](#)
- [65] NF EN ISO 21254-1. 2011, «Méthodes d’essai du seuil d’endommagement provoqué par laser – partie 1 : Définitions et principes de base», . [28](#), [29](#), [30](#), [31](#), [34](#)
- [66] NF EN ISO 21254-2. 2011, «Méthodes d’essai du seuil d’endommagement provoqué par laser – partie 2 : Détermination du seuil», .
- [67] NF EN ISO 21254-3. 2011, «Méthodes d’essai du seuil d’endommagement provoqué par laser – partie 3 : Possibilités de traitement par puissance (énergie) laser», .
- [68] NF EN ISO 21254-4. 2011, «Méthodes d’essai du seuil d’endommagement provoqué par laser – partie 4 : Inspection, détection et mesurages», . [28](#)
- [69] NGUYEN, D. N., L. EMMERT, M. MERO, W. G. RUDOLPH, D. PATEL, E. KROUS et C. S. MENONI. 2008, «The effect of annealing on the subpicosecond breakdown behavior of hafnia films», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7132, Proc. SPIE, Boulder, Colorado, USA, p. 71 320N–7. [23](#)
- [70] NGUYEN, D. N., L. A. EMMERT, W. RUDOLPH, D. PATEL et C. S. MENONI. 2010, «The vacuum effect of femtosecond LIDT measurements on dielectric films», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7842, Proc. SPIE, p. 78 420V–9. [39](#), [84](#)
- [71] NIF. 2015, «Site web du projet», URL [lasers.llnl.gov](http://lasers.llnl.gov). [12](#)



- [72] O'CONNELL, R. M., T. F. DEATON et T. T. SAITO. 1984, «Single- and multiple-shot laser-damage properties of commercial grade PMMA», *Applied Optics*, vol. 23, n° 5, p. 682–688. [40](#)
- [73] OLIVER, J. B., J. BROMAGE, C. SMITH, D. SADOWSKI, C. DORRER et A. L. RIGATTI. 2014, «Plasma-ion-assisted coatings for 15 femtosecond laser systems.», *Applied optics*, vol. 53, n° 4, p. A221–8. [24](#)
- [74] ORZI, D., F. ALVIRA et G. BILMES. 2013, «Determination of femtosecond ablation thresholds by using laser ablation induced photoacoustics (LAIP)», *Applied Physics A*, vol. 110, n° 3. [37](#)
- [75] PALMIER, S. 2007, *Etude de la pollution particulaire d'une chaîne laser de puissance*, thèse de doctorat, Université Bordeaux I. [33](#)
- [76] PETZOLDT, S., A. P. ELG, M. REICHLING, J. REIF et E. MATTHIAS. 1988, «Surface laser damage thresholds determined by photoacoustic deflection», *Applied Physics Letters*, vol. 53, n° 21, p. 2005–2007. [37](#)
- [77] PORTEUS, J. O., C. J. SPIKER et J. B. FRANCK. 1986, «Correlation between he–ne scatter and 2.7 $\mu$ m pulsed laser damage at coating defects», *Applied Optics*, vol. 25, n° 21, p. 3871–3879. [37](#)
- [78] POULINGUE, M. 1999, *Le rôle des nodules dans l'endommagement laser de miroirs à 1,06 $\mu$ m*, thèse de doctorat, INP Grenoble. [82](#)
- [79] RIEDE, W., H. SCHROEDER, G. BATAVICIUTE, D. WERNHAM, A. TIGHE, F. PETTAZZI et J. ALVES. 2011, «Laser-induced contamination on space optics», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 8190, Proc. SPIE, p. 81 901E–81 901E–14, doi :10.1117/12.899190. [33](#), [39](#), [40](#)
- [80] ROSENCWAIG, A. et J. B. WILLIS. 1980, «Photoacoustic study of laser damage in thin films», *Applied Physics Letters*, vol. 36, n° 8, p. 667–669. [37](#)
- [81] ROSENFELD, A., M. LORENZ, R. STOIAN et D. ASHKENASI. 1999, «Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation», *Applied Physics A*, vol. 69, n° 1, p. S373–S376. [40](#)
- [82] RP-PHOTONICS. 2012, «Chromatic dispersion», URL [www.rp-photonics.com/chromatic\\_dispersion.html](http://www.rp-photonics.com/chromatic_dispersion.html). [73](#)
- [83] SALA, K., G. KENNEY-WALLACE et G. HALL. 1980, «Cw autocorrelation measurements of picosecond laser pulses», *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 16, n° 9, p. 990–996. [29](#)
- [84] SHEEHAN, L. M., M. R. KOZLOWSKI et D. W. CAMP. 1998, «Application of total internal reflection microscopy for laser damage studies on fused silica», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 3244, Proc. SPIE, p. 282–295. [37](#)
- [85] SHEEHAN, L. M., M. R. KOZLOWSKI et F. RAINER. 1995, «Diagnostics for the detection and evaluation of laser-induced damage», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 2428, Proc. SPIE, p. 13–22. [37](#)
- [86] SHEIK-BAHAE, M., A. A. SAID, D. J. HAGAN, M. J. SOILEAU et E. W. VAN STRYLAND. 1991, «Nonlinear refraction and optical limiting in thick media», *Optical Engineering*, vol. 30, n° 8, p. 1228–1235. [31](#)

- 
- [87] SOMOSKOI, T., C. VASS, M. MERO, R. MINGESZ, Z. BOZOKI et K. OSVAY. 2013, «A unified optical damage criterion based on the probability density distribution of detector signals», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 8885, Proc. SPIE, p. 88 850N–7. [37](#)
- [88] STARKE, K., T. GROB, D. RISTAU et L. ZENTRUM. 2000, «Laser-induced damage threshold of optical components for ultrashort pulse laser systems», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 3902, Proc. SPIE, p. 408–417. [24](#)
- [89] STARKE, K., D. RISTAU, H. WELLING et L. ZENTRUM. 2003, «Standard measurement procedures for the characterization of fs-laser optical components», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 4932, Proc. SPIE, p. 482–491. [24](#)
- [90] STOLZ, C. J., D. RISTAU, M. TUROWSKI et H. BLASCHKE. 2009, «Thin film femtosecond laser damage competition», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7504, Proc. SPIE, p. 75 040S–6. [23](#), [24](#), [88](#)
- [91] STOLZ, C. J., M. D. THOMAS et A. J. GRIFFIN. 2008, «BDS thin film damage competition», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 7132, Proc. SPIE, p. 71 320C–7. [88](#)
- [92] STUART, B. C., M. D. FEIT, S. HERMAN, A. M. RUBENCHIK, B. W. SHORE et M. D. PERRY. 1996, «Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics», *Physical Review B*, vol. 53, n° 4, p. 1749–1761. [33](#), [39](#)
- [93] TEMPLE, P. A. 1979, «Examination of laser damage sites of transparent surfaces and films using total internal reflection microscopy», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 568, Natl. Bur.Stand. U.S. Spec. Publ., p. 333–341. [37](#)
- [94] THEOCARIS, P. S. 1997, «Light scattering from laser-damaged speckled surfaces», *Applied Optics*, vol. 36, n° 33, p. 8775–8784. [37](#)
- [95] TREBINO, R., K. DELONG, D. FITTINGHOFF, J. SWEETSER, M. KRUMBÜGEL, B. RICHMAN et D. KANE. 1997, «Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating», *Review of scientific instruments*, vol. 68, n° 9, p. 3277–3295. [29](#)
- [96] TRUBETSKOV, M. K., M. VON PECHMANN, I. B. ANGELOV, K. L. VODOPYANOV, F. KRAUSZ et V. PERVAK. 2013, «Measurements of the group delay and the group delay dispersion with resonance scanning interferometer», *Optics Express*, vol. 21, n° 6, p. 6658–6669. [73](#)
- [97] UTÉZA, O., R. CLADY, M. LEBUGLE, N. SANNER, M. SENTIS, Y. LI et Y. L. SHEN. 2013, «Laser damage and ablation with femtosecond pulses : recent measurements and applications», dans *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, vol. 8786, Proc. SPIE, p. 878 607–10. [51](#)
- [98] VAN STRYLAND, E. W., M. J. SOILEAU, A. L. SMIRL et W. E. WILLIAMS. 1981, «Pulse-width and focal-volume dependence of laser-induced breakdown», *Physical Review B*, vol. 23, p. 2144–2151. [40](#)
- [99] WAGNER, F. R., A. HILDENBRAND, H. AKHOUAYRI, C. GOULDIEFF, L. GALLAIS, M. COMMANDRÉ et J.-Y. NATOLI. 2012, «Multipulse laser damage in potassium titanyl phosphate : statistical interpretation of measurements and the damage initiation mechanism», *Optical Engineering*, vol. 51, n° 12, p. 121 806–121 806. [40](#)
- [100] WANG, B. et L. GALLAIS. 2013, «A theoretical investigation of the laser damage threshold of metal multi-dielectric mirrors for high power ultrashort applications», *Optics Express*, vol. 21, n° 12, p. 2686–2689. [22](#)

- [101] WELLERSHOFF, S.-S., J. HOHLFELD, J. GÜDDE et E. MATTHIAS. 1999, «The role of electron–phonon coupling in femtosecond laser damage of metals», *Applied Physics A*, vol. 69, n° 1, p. S99–S107. [22](#)
- [102] WIKIPEDIA. 2015, «List of fusion experiments», URL [en.wikipedia.org/wiki/List\\_of\\_fusion\\_experiments](http://en.wikipedia.org/wiki/List_of_fusion_experiments). [12](#)
- [103] YEE, K. S. 1966, «Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media», *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, vol. 14, n° 3, p. 302–307. [60](#)
- [104] YUAN, L., Y. ZHAO, G. SHANG, C. WANG, H. HE, J. SHAO et Z. FAN. 2007, «Comparison of femtosecond and nanosecond laser-induced damage in HfO<sub>2</sub> single-layer film and HfO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> high reflector», *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 24, n° 3, p. 538. [23](#)
- [105] ZOU, J., C. LE BLANC, D. PAPADOPOULOS, G. CHÉRIAUX, P. GEORGES, G. MENNERAT, F. DRUON, L. LECHERBOURG, A. PELLEGRINA, P. RAMIREZ, F. GIAMBRUNO, A. FRÉNEAUX, F. LECONTE, D. BADARAU, J. BOUDENNE, D. FOURNET, T. VALLOTON, J. PAILLARD, J. VERAY, M. PINA, P. MONOT, J. CHAMBARET, P. MARTIN, F. MATHIEU, P. AUDEBERT et F. AMIRANOFF. 2015, «Design and current progress of the Apollon 10 PW project», *High Power Laser Science and Engineering*, vol. 3. [15](#)