



**HAL**  
open science

# Etude de l'endommagement laser de composants réfléchissants en régime sub-piscoseconde

Martin Sozet

► **To cite this version:**

Martin Sozet. Etude de l'endommagement laser de composants réfléchissants en régime sub-piscoseconde. Optique [physics.optics]. Ecole Centrale Marseille, 2016. Français. NNT : 2016ECDM0011 . tel-01525034

**HAL Id: tel-01525034**

**<https://theses.hal.science/tel-01525034>**

Submitted on 19 May 2017

**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.

# ÉCOLE CENTRALE DE MARSEILLE

---

École Doctorale – ED 352 Physique et Sciences de la Matière

Institut Fresnel / UMR 7249  
CEA CESTA

## THÈSE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'ÉCOLE CENTRALE de MARSEILLE

Discipline : Optique, Photonique et Traitement d'Images

### **Etude de l'endommagement laser de composants réfléchissants en régime sub-picoseconde**

Par

**SOZET Martin**

**Directeurs de thèse : GALLAIS Laurent et LAMAIGNERE Laurent**

*Soutenue le 1<sup>er</sup> décembre 2016*

*devant le jury composé de :*

CANIONI Lionel	Professeur, CELIA – Talence	Rapporteur
COURVOISIER François	Chargé de recherche, FEMTO-ST – Besançon	Rapporteur
UTEZA Olivier	Directeur de recherche, LP3 – Marseille	Examineur
AUDEBERT Patrick	Directeur de recherche, LULI – Palaiseau	Examineur
NEAUPORT Jérôme	Ingénieur chercheur, CEA-CESTA – Le Barp	Encadrant de thèse
GALLAIS Laurent	Maître de conférence, Institut Fresnel – Marseille	Directeur de thèse
LAMAIGNERE Laurent	Ingénieur chercheur, CEA-CESTA – Le Barp	Directeur de thèse

---

*À ma famille,*

*À mes amis.*

---

# Remerciements

C'est lors de la rédaction de ce manuscrit que j'ai pu me rendre compte de l'ensemble des rencontres et des collaborations que j'ai pu faire pendant ces trois années de thèse. Elles m'ont également aidé à construire la suite de mon projet professionnel et je souhaite ici remercier toutes les personnes concernées.

Tout d'abord, je souhaiterais remercier mes trois encadrants et directeurs de thèse : Laurent L., Jérôme N. et Laurent Gallais qui m'ont accompagné tous les jours (sauf les week-ends, quoique...) afin de mener à bien cette thèse. Votre aide et vos encouragements ont été précieux. Professionnellement, vous faites preuve d'un savoir et d'un investissement extraordinaires. Vous avez réussi à me transmettre votre passion et une partie de vos connaissances et je vous en suis très reconnaissant. Humainement, ça a été un plaisir de vous rencontrer et j'espère pouvoir continuer régulièrement à travailler avec vous.

Je suis également très reconnaissant envers Denis P. d'avoir accepté ma candidature en thèse et de m'avoir accordé les financements nécessaires au bon déroulement de la thèse. Avec Bernard C., Geneviève C. et Jérôme D., vous avez toujours eu un regard très pertinent et critique sur mes travaux. Je souhaitais donc vous remercier pour tout cela et également de m'avoir soutenu pour la suite de ma carrière.

Je n'oublierai pas de remercier sincèrement Nadja R. et Thierry D. pour tout ce que vous m'avez apporté. J'ai eu la chance de travailler quasiment au quotidien à vos côtés et vous m'avez transmis votre savoir-faire expérimental. Thierry, tu as toujours été là pour me dépanner, et ce avec la bonne humeur qui te caractérise. Nadja, tu as toujours fait preuve d'énormément de patience et de curiosité : de grandes qualités. Je me souviendrai de ces longues journées que nous avons passées sur DERIC à tout installer, à tout régler et du lendemain où je te disais : « ça ne va pas, il faut tout recommencer » : tu acceptais de m'aider à tout refaire et toujours avec le sourire. Pour tout ça, merci. Evidemment, je pense à Sébastien Verge. Durant ma dernière année, j'ai également eu la chance et le plaisir d'encadrer ton stage : tu as toi aussi connu les difficultés de l'alignement optique lors de la mise en place du Top-Hat mais ta persévérance a permis d'aboutir à de très bon résultats. Tu les retrouveras dans ce manuscrit. Je te souhaite une très bonne continuation. Merci également à Odile B., Romain P., Roger C., Gérard R., Christophe L. et Matthieu B. pour votre aide et vos conseils avisés.

Ces travaux n'auraient pu pas non plus voir le jour sans l'aide d'Eric L. et de Stéphane B.. Eric, accompagnateur de ma première mission à l'étranger : j'ai adoré travailler avec toi. Ton savoir, ton enthousiasme et ta bonne humeur m'ont fortement motivé et aidé tout au long de ces trois ans. Stéphane, je suis aujourd'hui forcé de reconnaître que tu es compétent ! Merci pour ton aide et ces discussions très fructueuses de fin d'après-midi. Je voulais souhaiter bonne chance et surtout bon courage à Florian (il va t'en falloir pour supporter Stéphane !).

---

Je souhaite également remercier l'équipe PETAL et plus particulièrement Nathalie B., Christelle D., Mélanie M. et Jacques L. : vous m'avez permis de participer activement à ce projet, ce qui m'a fortement motivé lors de mes travaux de recherche. Les résultats que nous avons obtenus sont très excitants pour la suite et à ce titre, je souhaite bon courage à mon successeur Alexandre Ollé : ne t'inquiète pas, tu es très bien entouré et tu pourras t'appuyer sur des personnes très compétentes et toujours à l'écoute. De façon similaire, Matthieu Veinhard, nous avons passé un peu moins d'un an dans le même bureau. Merci pour ta bonne humeur et bonne chance pour la suite : tout comme Alexandre, profite de ce très bon cadre de travail.

A ce sujet, je souhaitais remercier l'ensemble des personnes qui ont contribué de près ou de loin au bon déroulement de mon doctorat. Merci donc à Gaël G., Sandrine F., Sandy C., Laure E., Christel A., Frédéric Audo, Marc P., Sébastien M., Maxime Chambonneau, Philippe C., Claude R., Thomas L., Daniel T., Servane F., Michel G., Olivier S., Cédric M., Bertrand B.. Un merci tout spécial à ma Zazounette : effectivement, pendant ces trois ans où nous jouions aux docteurs, je ne l'étais pas encore... Mais maintenant, oui ! Un grand merci aux super secrétaires Nadège M., Virginie G. et Isabelle C.-J. pour votre soutien durant ces trois ans. Isabelle, je n'oublierai pas cette précieuse aide que tu m'as donnée lors de la relecture du manuscrit. Je remercie également Jean-Yves Natoli, Frank Wagner, Guillaume Demésy, Mireille Commandré, Nicolas Bonod, Dam-Bé Douti et Thomas Doualle avec qui j'ai pu avoir des discussions très intéressantes lors de mes voyages à Marseille à l'Institut Fresnel. Je suis également reconnaissant envers Vincent Clet et Cédric Adam d'Amplitude Systèmes. J'ai été très heureux de vous voir le jour de ma soutenance. Je voulais vous remercier pour la pédagogie dont vous avez fait preuve lors de vos passages au CEA : j'en apprenais à chaque fois un peu plus sur le fonctionnement des lasers et cela m'a été très utile pour comprendre la problématique sur laquelle j'ai travaillé.

A ma famille et mes amis de Lyon, Marseille ou Bordeaux : merci beaucoup pour votre soutien. Petite dédicace aux vieux morts et aux deux morues avec qui j'ai noblement fêté cette thèse. A mes amis bordelais aussi : Mathias, Thibault et plus particulièrement Anaïs, championne des pâtes au coca. Bien sûr, je ne manquerai pas de remercier Mathilde, Nicolas et Romain : mes trois compères bordelais toujours là pour décompresser. Mathilde, je n'oublierai pas ce super voyage aux Etats-Unis et je me demande encore comment nous sommes parvenus à ne pas nous étripier ! Je te souhaite une très bonne fin de thèse et plein de réussite pour la suite. Romain : deux ans et demi dans un même bureau ! Heureusement que tu n'étais plus là pendant ma dernière année sinon ce manuscrit n'aurait jamais été fini. Et Nicolas : ton amour pour Philippe Katerine et d'autres musiques bizarres a toujours été d'un grand réconfort. Vous êtes tous les trois de chouettes personnes. Et plus tardivement, j'ai été heureux de vous avoir rencontré Carole, Clémence, et Marine et Mélanie. Enfin je voulais remercier mes colocataires Etienne et Camille pour m'avoir épaulé et supporté (surtout en cette fin de thèse) : je garderai un excellent souvenir de cette coloc !

Pour finir cette section, je remercie chaleureusement les deux rapporteurs de ce manuscrit Lionel Canioni du Centre des Lasers Intenses et Applications et François Courvoisier de l'institut FEMTO-ST d'avoir évalué ces travaux de thèse. Je remercie aussi Patrick Audebert du Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses d'avoir accepté de présider le jury de thèse et Olivier Uteza du laboratoire Lasers, Plasmas et Procédés Photoniques d'avoir pris part à cette commission d'examen.

# Tables des matières

<b>Remerciements.....</b>	<b>iii</b>
<b>Tables des matières .....</b>	<b>v</b>
<b>Introduction générale .....</b>	<b>10</b>
<b>Chapitre 1        Le laser PETAL et la problématique de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde. ....</b>	<b>13</b>
1.A    Présentation du laser PETAL. ....	15
1.A.1 Qu'est-ce que PETAL ? .....	15
1.A.2 Génération des impulsions laser sub-picoseconde avec PETAL. ....	16
1.A.3 Le dimensionnement des composants. ....	21
1.B    Limitation des performances d'un système : l'endommagement induit par laser en régime sub-picoseconde. ....	22
1.B.1 Propagation d'un faisceau intense. ....	22
1.B.2 De l'excitation des matériaux à l'endommagement. ....	25
1.B.3 Quelles solutions pour limiter l'endommagement des optiques ? .....	35
<b>Conclusion du Chapitre 1.....</b>	<b>39</b>
<b>Chapitre 2        Conception d'optiques réfléchives. ....</b>	<b>41</b>
2.A    Présentation des couches minces optiques.....	43
2.A.1 Principe de fonctionnement d'un empilement multicouche interférentiel.....	43
2.A.2 Les techniques de fabrication des couches minces optiques.....	45
2.B    Principes de fonctionnement des optiques réfléchives. ....	50
2.B.1 Les miroirs diélectriques à haute réflectivité. ....	50
2.B.2 Description des réseaux diélectriques en réflexion.....	54
2.C    Application à la conception d'optiques réfléchives.....	59
2.C.1 Lien entre le champ électrique et l'endommagement laser. ....	59
2.C.2 Conception et test d'un nouveau miroir pour les applications Petawatts.....	61
2.C.3 Vers la conception de réseaux de compression. ....	63
<b>Conclusion du Chapitre 2.....</b>	<b>67</b>
<b>Chapitre 3        Moyens expérimentaux mis en œuvre pour la mesure de l'endommagement laser : développement du banc DERIC. ....</b>	<b>69</b>

3.A	Le banc d'endommagement laser DERIC.....	71
3.A.1	Généralités de l'optique gaussienne.....	71
3.A.2	Caractéristiques énergétiques.....	73
3.A.3	Caractéristiques spatiales.....	74
3.A.4	Incertitude sur la détermination de la fluence.....	76
3.A.5	Propagation d'impulsions intenses : estimation de l'intégrale B.....	76
3.A.6	Méthode de détection de dommages.....	77
3.B	Caractérisation des impulsions laser de l'installation DERIC.....	77
3.B.1	Description de la source laser.....	78
3.B.2	Mesure du spectre des impulsions.....	78
3.B.3	Mesure des caractéristiques temporelles des impulsions.....	80
3.C	Synthèse des caractéristiques du banc DERIC.....	89
<b>Conclusion du Chapitre 3.....</b>		<b>91</b>
<b>Chapitre 4</b>	<b>Méthode de qualification des composants optiques en régime sub-picoseconde.</b>	<b>93</b>
4.A	Présentation des procédures de test existantes.....	95
4.A.1	Définition de la méthode 1-on-1.....	95
4.A.2	Définition de la méthode S-on-1.....	97
4.B	Méthode de détermination du seuil d'endommagement par tir unique.....	98
4.C	Méthode de détermination de la qualité d'une optique.....	105
<b>Conclusion du Chapitre 4.....</b>		<b>112</b>
<b>Chapitre 5</b>	<b>Etude de la croissance des dommages sous flux laser en régime sub-picoseconde.</b>	<b>113</b>
5.A	Etude expérimentale de la croissance des dommages.....	115
5.A.1	Dispositif expérimental utilisé pour l'étude de la croissance des dommages. ....	115
5.A.2	Résultats expérimentaux de la croissance des dommages en régime sub-picoseconde. .....	116
5.B	Modélisation numérique de la croissance des dommages.....	124
5.B.1	Présentation du miroir considéré pour la simulation.....	124
5.B.2	Modélisation numérique de la croissance des dommages.....	127
5.B.3	De la modélisation à l'expérience.....	129
5.B.4	Comparaison avec des observations réalisées sur PETAL.....	142
<b>Conclusion du Chapitre 5.....</b>		<b>146</b>
<b>Conclusion générale et perspectives.....</b>		<b>147</b>
<b>Annexe 1 : Mesure des profils temporels.....</b>		<b>151</b>

<b>Annexe 2 : Mise en forme spatiale Top-Hat.....</b>	<b>154</b>
<b>I. Première partie : Premier montage et effets non-linéaires.....</b>	<b>154</b>
a. Obtention du profil top-hat .....	154
1. La lame de phase .....	154
2. Montage de la voie top-hat .....	155
3. Le profil top-hat.....	156
b. Impact des effets non-linéaires .....	158
1. Observation de la défocalisation .....	158
2. Quantification de la défocalisation sur la caméra .....	159
c. Correspondance échantillon-caméra.....	160
1. Intérêt du silicium.....	160
2. Comparaison avec la caméra et conclusion .....	161
<b>II. Deuxième partie : Nouveau montage et premiers tests.....</b>	<b>161</b>
a. Le nouveau montage .....	161
1. Quelques tentatives de résolution .....	161
2. La nouvelle configuration .....	161
b. Programmation en amont des premiers tests.....	162
c. Premiers tests sur miroir.....	162
1. Tirs monoshots .....	163
<b>Annexe 3 : Microscopie résolue en temps. ....</b>	<b>164</b>
<b>Bibliographie .....</b>	<b>170</b>



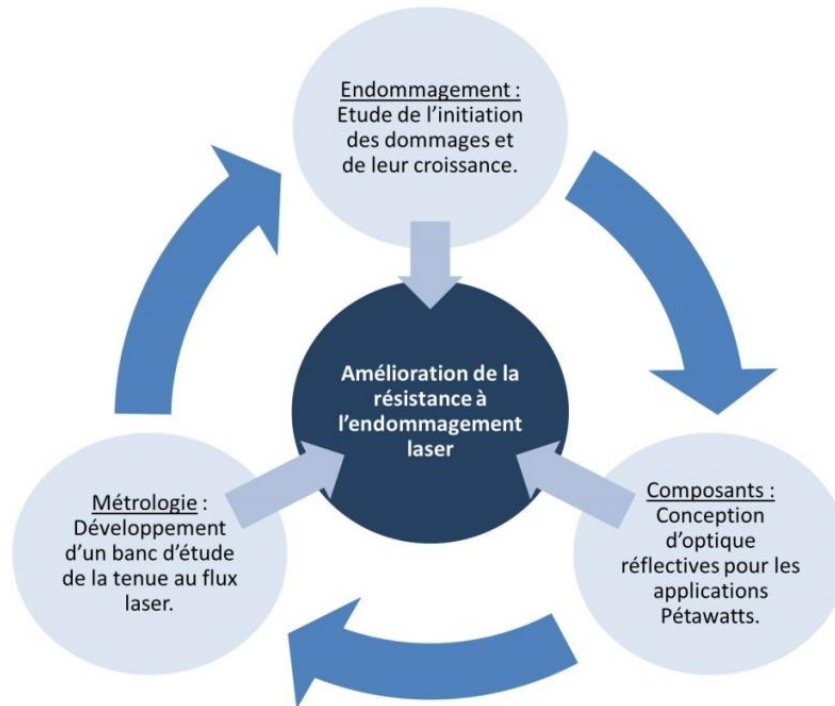




---

# Introduction générale

Durant ces quinze dernières années, plusieurs générations de lasers de puissance ont vu le jour. Dans l'ordre chronologique, on peut citer L5, Janus, Shiva jusqu'à aujourd'hui le National Ignition Facility (NIF, Etats-Unis) [1] ou le Laser MégaJoule (France) [2]. Les puissances atteintes par ces lasers n'ont cessé d'augmenter pour passer de quelques gigawatts à plusieurs centaines de terawatts. La technique d'amplification par pompage flash de matériaux amplificateurs en verre dopé Néodyme permet d'obtenir de hautes énergies dans le régime nanoseconde. En 1985, la technique d'amplification proposée par Strickland et Mourou a permis de développer une autre génération de lasers ultra-intenses délivrant des impulsions de fortes énergies. Cette technique appelée amplification à dérive de fréquence (Chirped Pulse Amplification, CPA) a ouvert la voie au développement de lasers délivrant des impulsions de durée inférieure à la picoseconde et d'énergie de l'ordre de plusieurs centaines de joules. Parmi les grandes installations laser ultra-intenses, on peut citer PETAL (France), OMEGA-EP (Etats-Unis), NIF ARC (Etats-Unis), FIREX (Japon), PHELIX (Allemagne) ou le projet ELI (Hongrie, Roumanie et République Tchèque) [3]. En France, le Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, sur le Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CEA-CESTA), est le maître d'œuvre du laser PETAL [4], installation composée d'un faisceau, délivrant des impulsions de durée minimale 500fs et visant des énergies supérieures à 3kJ. Cette thèse a été réalisée sur ce centre. Ce laser est installé dans la même enceinte que le LMJ, laser pour la fusion nucléaire. A terme, il sera prévu de réaliser des expériences couplées LMJ-PETAL. Aujourd'hui PETAL est le laser le plus puissant dans la catégorie des lasers énergétiques. Ces installations cherchent à atteindre des énergies toujours plus élevées, afin d'apporter la puissance qui permettrait d'accéder à des conditions de température et de pression toujours plus extrêmes. Le principal facteur limitant la montée en énergie de ce type d'installation est l'endommagement laser des optiques. Un dommage laser est une modification irréversible de la surface et/ou du volume d'un composant optique. Lorsqu'un dommage est amorcé à la surface d'un composant, il peut dégrader sa fonction optique jusqu'à la rendre inutilisable. Ainsi, pour maintenir et améliorer les performances d'un système laser, il faudrait pouvoir pallier ce phénomène d'endommagement laser ou le cas échéant, être en mesure de le prévoir afin d'estimer la durée de vie des optiques. En d'autres termes, une attention particulière doit être portée à la conception d'optiques résistantes au flux laser, au contrôle de ces optiques dans le but d'évaluer leurs performances et à la compréhension des phénomènes d'endommagement. Cette thèse s'articule autour de ces thématiques.



Dans un premier temps, nous présenterons le laser PETAL et la technique CPA qui permet l'amplification des impulsions courtes. Ceci nous permettra d'introduire les différents éléments optiques nécessaires à la manipulation d'impulsions courtes. La problématique de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde ainsi que les mécanismes physiques impliqués dans le processus de dépôt d'énergie et de relaxation de la matière sont également présentés. Les études menées jusqu'à aujourd'hui sur la structure électronique des matériaux diélectriques ont permis d'améliorer notre compréhension sur la résistance au flux laser des optiques soumises à des irradiations intenses. Ces concepts posent les bases pour ce manuscrit puisque le phénomène d'endommagement résulte d'une interaction entre la lumière et la matière : il sera donc intéressant d'étudier les caractéristiques de la lumière et la nature des composants qu'elle rencontre. Pour finir ce premier chapitre, nous présentons également les solutions qui sont aujourd'hui envisagées pour pallier le phénomène d'endommagement.

Dans une seconde partie, nous allons donc nous intéresser aux caractéristiques des composants optiques. Fort des études qui ont été menées au préalable, nous nous attacherons à concevoir des optiques réfléchives destinées aux lasers intenses. Ce chapitre nous permettra d'introduire la problématique des couches minces optiques. Nous introduirons leur principe de fonctionnement et les techniques de fabrication de ces composants. Egalement, le lien très fort qui existe entre endommagement laser et renforcement du champ électrique sera présenté. Ce lien sera le fil conducteur de ce manuscrit. En partant de cette considération, des miroirs ont été conçus et fabriqués. Des expériences menées directement sur le laser PETAL seront présentées : elles permettront de confronter les mesures réalisées laboratoire avec le comportement des optiques sur chaîne laser. Nous présenterons également des études portant sur la conception des optiques diffractives pour les applications Petawatt.

Dans la logique de la conception de nouvelles optiques réfléchives pour les applications Petawatt, il est nécessaire de pouvoir tester leur tenue au flux laser. C'est dans cette perspective qu'a été développé un banc d'endommagement laser adapté au régime sub-picoseconde au CEA-CESTA. En début d'année 2013, le Laboratoire de Métrologie Optique s'est doté d'une source laser Amplitude Systèmes. Cette source a

servi au développement du banc d'endommagement nommé DERIC qui sera présenté dans le troisième chapitre de ce manuscrit. Les différents dispositifs et diagnostics mis en place sur ce banc seront caractérisés afin de vérifier la justesse des mesures. Une attention particulière sera portée à la mesure précise du profil temporel des impulsions laser grâce à l'utilisation de diagnostics développés en interne au CEA-CESTA. Ils permettront de valider la pertinence des études qui seront menées sur ce banc.

Le quatrième chapitre est dédié à réalisation des expériences de tenue au flux laser d'optiques dans le régime d'impulsions courtes. En s'appuyant sur le caractère déterministe de l'endommagement laser dans ce régime, une nouvelle procédure de caractérisation des optiques sera développée. Nous verrons qu'il est possible de déterminer avec une bonne précision le seuil de tenue au flux d'un composant à l'aide d'une seule impulsion laser. Cet aspect déterministe de l'endommagement sera mis en opposition à l'aspect probabiliste, encore peu considéré dans ce régime (par rapport au régime nanoseconde). Afin d'apporter une nouvelle dimension à la caractérisation des optiques, une procédure permettant l'évaluation de la densité de dommages sera présentée. Nous verrons dans quels cas ces deux nouveaux tests peuvent être utilisés et les informations qu'ils apportent sur la résistance à l'endommagement des composants optiques réfléchives.

Lorsqu'un dommage se forme à la surface d'une optique, il est fondamental de pouvoir prévoir son évolution lors d'irradiations supplémentaires. Ce phénomène est appelé phénomène de croissance laser. La problématique de la croissance des dommages sous irradiations laser est un thème de grande importance. Qu'il s'agisse de grandes installations nanosecondes telles que le NIF ou le LMJ, sub-picosecondes et picosecondes telles que PETAL, OMEGA-EP, ou NIF-ARC ou même de lasers commerciaux, comprendre le phénomène de croissance des dommages sur leurs optiques permet de garantir et fiabiliser le fonctionnement des systèmes laser. Dans le cinquième chapitre, nous aborderons cette thématique dans le régime des impulsions courtes sur les composants optiques réfléchifs. Une approche expérimentale et numérique du phénomène de croissance sera faite. Des dommages « modèles » finement caractérisés seront réalisés sur un miroir afin d'étudier et de modéliser numériquement le phénomène de croissance. Il apparaîtra que la surface des dommages évolue de façon linéaire avec le nombre d'irradiations et que cette évolution est fortement corrélée à la modification du champ électrique dans les structures réfléchives. Le but de ces études sera *in fine* de développer de nouveaux outils pour l'optimisation des composants optiques utilisés dans les lasers de puissance.

# Chapitre 1 Le laser PETAL et la problématique de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde.

Pour commencer ce manuscrit, nous allons tout d'abord présenter le contexte dans lequel s'inscrit cette thèse : le développement d'un laser Petawatt en Aquitaine, le laser PETAL [4]. La présentation du mode de fonctionnement de cette installation délivrant des impulsions laser courtes (de l'ordre de la picoseconde) va nous amener à un concept limitant ses performances : la résistance au flux laser des optiques utilisées dans cette installation. La thématique de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes a déjà fait l'objet de nombreuses études. Nous rappellerons les principaux résultats concernant la physique de l'endommagement laser, de l'absorption photonique à la dégradation des matériaux.



## 1.A Présentation du laser PETAL.

### 1.A.1 Qu'est-ce que PETAL ?

En 2005 a été lancé officiellement le programme PETawatt Aquitaine Laser (PETAL) : il s'agit d'un laser fonctionnant dans le régime sub-picoseconde et picoseconde, financé par le Conseil régional d'Aquitaine, l'Etat français et l'Union européenne, et dont la maîtrise d'œuvre a été confiée au Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA). Ce laser a été construit sur le Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CESTA) et cette thèse s'inscrit donc dans le contexte d'amélioration des performances des composants optiques de cette installation laser. PETAL a été installé et développé dans la même enceinte que le Laser MégaJoule (LMJ) [2], illustré dans la Figure 1-1. Le LMJ est un ensemble de 176 faisceaux laser alors que PETAL est constitué d'une unique ligne laser. Ces deux installations partagent la même chambre d'expérience, présentée dans la Figure 1-2 : il s'agit d'une sphère dans laquelle un vide poussé est réalisé. Des édifices cibles sont introduits dans cette sphère au moyen d'un bras mécanique afin de réaliser des expériences avec uniquement les faisceaux LMJ ou le faisceau PETAL, ou des expériences couplées LMJ-PETAL.

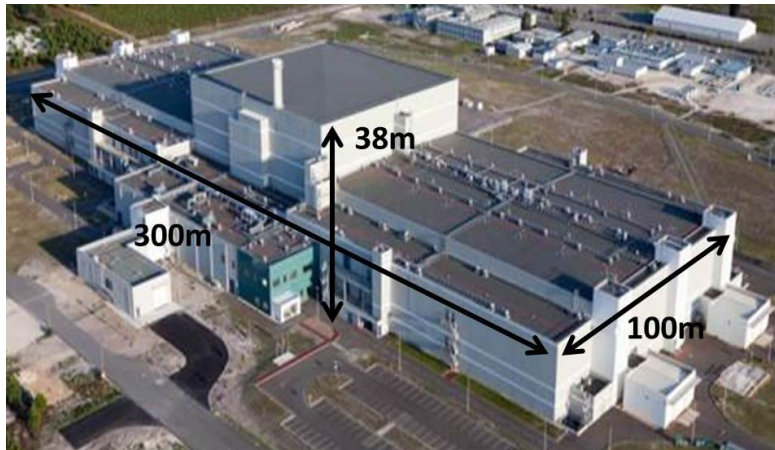


Figure 1-1 : Vue aérienne de l'installation laser LMJ-PETAL. Au centre du bâtiment se situe une chambre d'expérience de 10 mètres de diamètre.

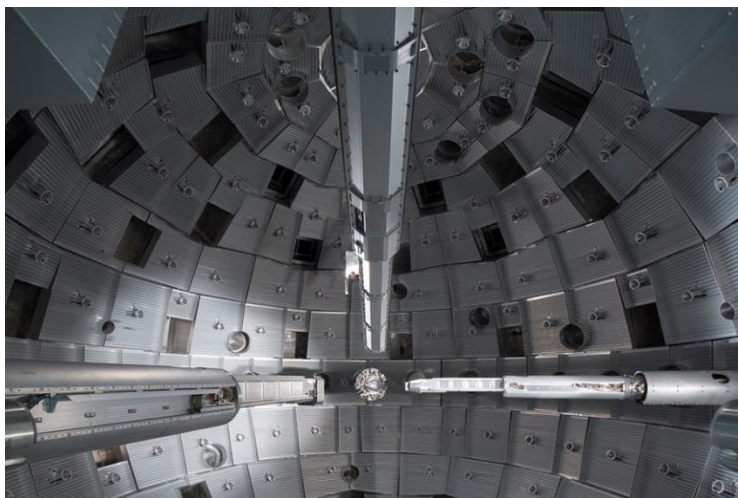


Figure 1-2 : Photographie de l'intérieur de la chambre d'expérience commune à l'installation PETAL et LMJ. Elle mesure 10m de diamètre. Le faisceau PETAL arrive dans le plan équatorial de la chambre alors que les faisceaux LMJ pénètrent dans la chambre via des hublots répartis dans les deux hémisphères (rectangles sombres sur la photographie). Des systèmes de bras mécaniques articulés permettent l'introduction de diagnostics et de cibles pour les expériences, sans casser le vide.



Le laser PETAL a été conçu pour délivrer des impulsions laser de durée minimale 500fs. L'énergie de ces impulsions est d'environ 3kJ et leur longueur d'onde est de 1053nm, identique à celle du LMJ. En effet, les deux installations utilisent le même matériau amplificateur, le verre laser néodyme phosphate, qui impose la longueur d'onde. Les puissances des impulsions laser délivrées par PETAL sont supérieures à 6PW, justifiant ainsi son nom. La fréquence de tir de PETAL est aujourd'hui limitée par le temps de refroidissement des bancs d'énergie et de thermalisation des milieux amplificateurs, utiles à l'amplification de l'impulsion, et par le temps d'alignement du faisceau. Elle est classiquement de 1 tir par jour.

Le développement de ce laser a pour but de fournir à la communauté scientifique un outil permettant d'atteindre des conditions de température et de pression extrêmes. Parmi les champs de recherche visés avec PETAL, on peut citer :

- La physique fondamentale et nucléaire, grâce à la production de champs électromagnétiques intenses.
- L'étude de l'allumage rapide en vue de la production d'énergie par fusion thermonucléaire.
- L'astrophysique avec la reproduction de conditions de pression et de température semblables à celles rencontrées à l'intérieur des étoiles.
- Le médical avec la production de protons très énergétiques, accélérés par un laser Petawatt.

### 1.A.2 Génération des impulsions laser sub-picoseconde avec PETAL.

L'amplification des impulsions longues (nanosecondes) est généralement réalisée grâce à un système d'amplification régénérative ou multi-passages. Dans le cas d'une amplification régénérative, l'impulsion est piégée dans une cavité au moyen d'une porte optique (typiquement, une cellule de Pockels). Dans cette cavité se trouve un milieu amplificateur. Tant que la porte optique est fermée, l'impulsion réalise des allers-retours dans cette cavité. A chaque aller-retour, elle traverse le milieu amplificateur et donc accumule de l'énergie. Lorsque l'énergie de l'impulsion est suffisante, l'actionnement de la porte optique permet de laisser sortir l'impulsion amplifiée. Dans le cas d'une amplification multi-passages, c'est la géométrie de la cavité amplificatrice qui impose le nombre de passages dans le milieu amplificateur. Un système de miroirs permet de replier le faisceau pour qu'il traverse plusieurs fois un milieu amplificateur (on peut citer par exemple la cavité Papillon). Le nombre de passages dans le milieu amplificateur est donc imposé par la géométrie de la cavité. L'amplification des impulsions courtes (femtoseconde et picoseconde) ne peut pas être réalisée comme celle des impulsions longues (nanosecondes). L'impulsion courte ne peut pas être injectée telle quelle dans ce type d'amplificateur : de fortes puissances dans les milieux amplificateurs peuvent entraîner l'apparition d'effets non-linéaires. Ces effets non-linéaires peuvent modifier les profils spatiaux et temporels des impulsions et également endommager les milieux amplificateurs. Un autre schéma d'amplification a donc été développé : l'amplification à dérive de fréquence (ou CPA, Chirped Pulse Amplification). En 1969, Treacy a découvert le principe de compression temporelle d'impulsion laser en utilisant une paire de réseaux diffractifs [5]. En 1985, ce système a été mis en place par Strickland et Mourou [6], permettant pour la première fois la génération d'impulsions courtes énergétiques par la technique CPA. Le principe de cette amplification est donné dans la Figure 1-3. Elle consiste à abaisser la puissance d'une impulsion initiale en l'étirant temporellement grâce à un déphasage de ses différentes composantes spectrales. L'impulsion étirée est ensuite amplifiée classiquement grâce à un système d'amplification régénérative ou multi-passages. Une dernière étape consiste à recomprimer temporellement l'impulsion en compensant le déphasage introduit par l'étireur. Une description plus détaillée est donnée dans la suite de ce chapitre. La technique CPA est rendue possible grâce à la grande

largeur spectrale des impulsions courtes. En effet, la largeur spectrale d'une impulsion est reliée à sa durée via la relation d'incertitude d'Heisenberg donnée dans Équation 1-1.

$$\Delta\nu\Delta t \geq K$$

Équation 1-1 : Relation d'incertitude d'Heisenberg reliant la largeur spectrale  $\Delta\nu$  à la durée de l'impulsion  $\Delta t$ .  $K$  est un facteur qui dépend de la forme temporelle de l'impulsion. Les deux formes temporelles communément rencontrées sont les gaussiennes et les sécantes hyperboliques carrées. Pour ces deux types,  $K$  vaut respectivement 0,441 et 0,315.

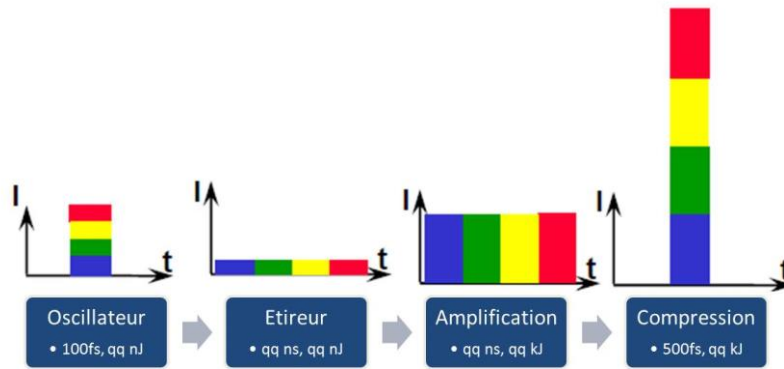


Figure 1-3 : Principe de la technique d'amplification à dérive de fréquence (CPA, Chirped Pulse Amplification). On représente sur ce schéma l'intensité en fonction du temps. Les différentes étapes sont décrites plus en détails dans la section 1.A.2.

Dans ce paragraphe, nous expliquons comment cette technique est mise en œuvre dans le laser PETAL pour générer des impulsions sub-picosecondes. La Figure 1-4 identifie les différentes sections nécessaires à la génération de ces impulsions.

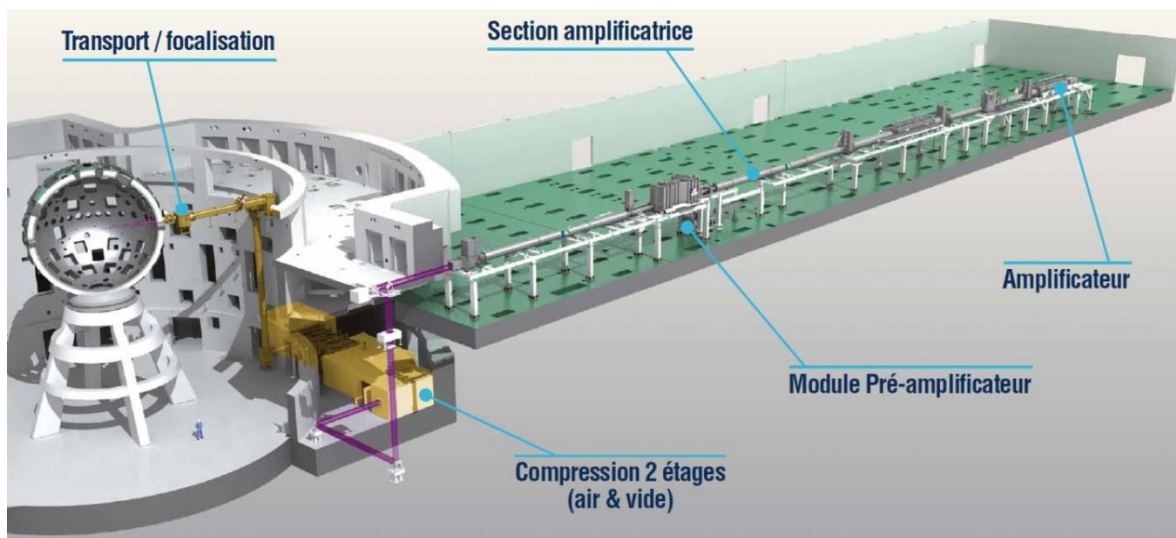


Figure 1-4 : Schéma de la chaîne laser PETAL. La partie de droite correspond à la partie « génération de l'impulsion laser, étirement et amplification » et la partie de gauche correspond à la partie « compression et focalisation de l'impulsion laser dans la chambre d'expérience ».

La première étape du laser PETAL consiste à générer l'impulsion laser. Pour cela, un oscillateur Ti:Saphir à mode bloqué est utilisé. Il fournit une impulsion « mère » de durée 100fs et d'énergie 3nJ avec un spectre de largeur 16nm centré à 1053nm. Cette impulsion courte est ensuite injectée dans un Module Pré-Amplificateur (MPA) qui permet d'augmenter l'énergie d'un facteur  $10^7$ . Les étapes du MPA sont les suivantes :

- L'impulsion est étirée temporellement dans un étireur de type Öffner. Un étireur est un système composé d'éléments dispersifs, qui sont classiquement une paire de réseaux. (Il existe également des étireurs à base de prismes ou de fibres optiques). Le principe est donné dans la Figure 1-5. Au passage du premier réseau, les longueurs d'onde de l'impulsion sont dispersées angulairement. Le deuxième réseau a pour rôle de re-collimer le faisceau. L'utilisation d'une seule paire de réseaux introduit un défaut de dispersion chromatique latérale. L'utilisation d'un miroir permet de corriger ce défaut de chromatisme (en pratique, il s'agit d'un système périscopique qui permet de mettre à deux hauteurs différentes le chemin aller et le chemin retour et donc de distinguer le faisceau incident du faisceau étiré). Du fait de la dispersion angulaire, les différentes longueurs d'onde vont parcourir des chemins optiques différents. Ceci se traduit par une variation de phase entre les différentes composantes chromatiques de l'impulsion : elles sont retardées les unes par rapport aux autres, impliquant un élargissement temporel de l'impulsion. L'impulsion en sortie de l'étireur de PETAL a une durée de 9ns. L'élargissement temporel est défini par la distance entre les 2 réseaux, comme cela est visible sur la Figure 1-5. Dans le cas de la Figure 1-5, la dispersion introduite est dite négative. Un système d'imagerie, placé entre les deux éléments dispersifs, permet au contraire d'introduire une dispersion positive, comme illustré sur la Figure 1-6.

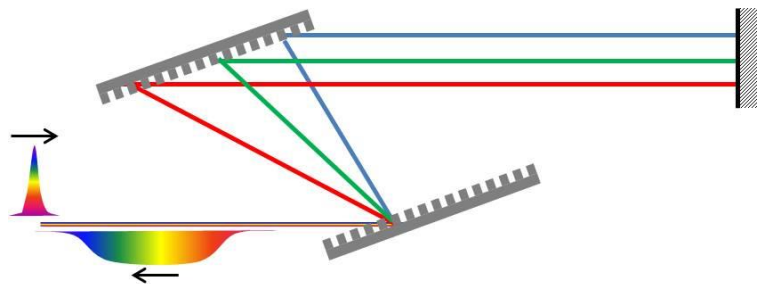


Figure 1-5 : Principe d'un étireur à dispersion négative. Les courtes longueurs d'onde sont en avance par rapport aux grandes longueurs d'onde.

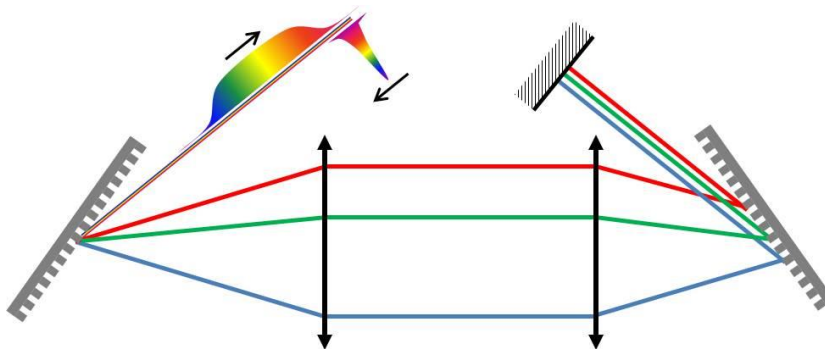


Figure 1-6 : Etireur à dispersion positive : l'utilisation d'un système d'imagerie permet d'inverser le signe de la dispersion imposée par les réseaux par rapport au montage présenté dans la Figure 1-5. Les grandes longueurs d'onde sont donc en avance par rapport aux courtes longueurs d'onde.

- L'impulsion laser est ensuite amplifiée une première fois dans un Module Pré-Amplificateur (MPA). Le but est d'atteindre une énergie de 100mJ. La technique d'amplification utilisée est une amplification optique paramétrique (OPA) dont le principe est donné dans la Figure 1-7. Des cristaux non-linéaires de types LBO et BBO sont traversés simultanément par un signal à amplifier de fréquence  $\nu_1$  et un signal pompe de fréquence  $\nu_2 = 2\nu_1$ . L'énergie des photons de la pompe est transférée au signal à amplifier grâce aux propriétés non-linéaires des cristaux. Le principal avantage de cette technique d'amplification est qu'elle ne nécessite pas de stockage d'énergie puisque le transfert d'énergie entre la pompe et le signal est instantané. Les cristaux ne sont donc

pas échauffés et il n'y a pas de bruit généré en dehors du temps de recouvrement entre signal et pompe. Egalement, elle est tolérante en longueur d'onde : les composantes chromatiques du signal source sont amplifiées de la même façon. La combinaison d'une technique d'amplification optique paramétrique et d'amplification par dérive de fréquence est appelée OPCPA.

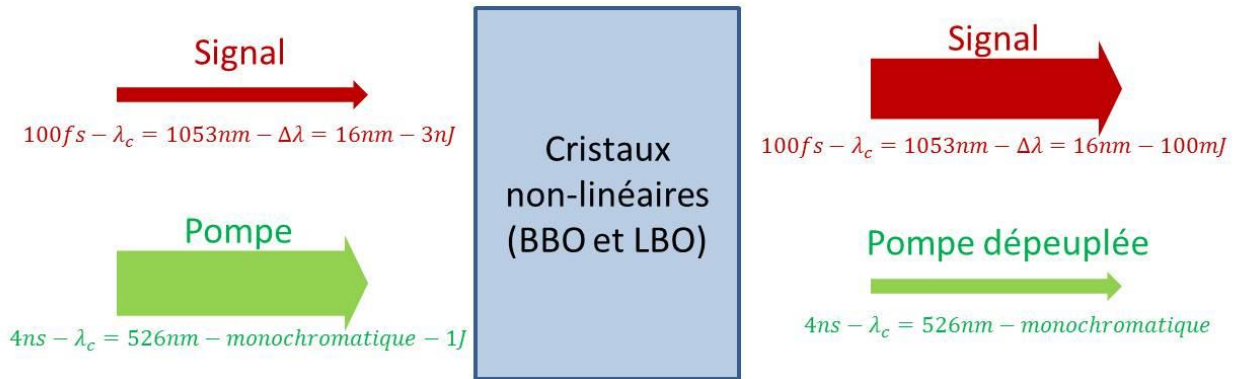


Figure 1-7 : Principe de l'amplification optique paramétrique (OPA) : l'énergie d'une impulsion pompe nanoseconde est transférée instantanément au signal femtoseconde à amplifier dans les cristaux non-linéaires, moyennant un respect d'accord de phase entre ces deux impulsions.

- En sortie du MPA, le diamètre du faisceau est millimétrique. Il est ensuite mis en forme pour obtenir un profil carré plat (i.e. une répartition homogène de l'énergie sur sa surface) et élargi pour atteindre une taille de 37 x 35,6 cm<sup>2</sup> et injecté dans une nouvelle section amplificatrice, identique à celles utilisées pour les faisceaux du LMJ. Cette section est composée de plaques de verre de Phosphate dopé au Néodyme. Ces plaques sont pompées par lampes flash qui sont alimentées par des bancs d'énergies. Le faisceau va traverser 4 fois cette section afin d'atteindre des énergies de l'ordre du kilojoule. Le verre de Phosphate dopé au Néodyme a un spectre d'amplification centré à 1053nm mais dont la largeur spectrale est limitée (cet inconvénient qui n'est pas rencontré dans le cas d'une OPA). Cette limitation va faire subir un rétrécissement au spectre de l'impulsion. Après cette étape d'amplification, la largeur spectrale de l'impulsion est d'environ 3nm et la durée d'impulsion est toujours de 9ns.
- La dernière étape permettant d'obtenir des impulsions courtes énergétiques est l'étape de compression. Elle est symétrique à l'étape d'étirement et elle est également réalisée au moyen de paires de réseaux, que nous appellerons dans la suite de cette thèse réseaux de compression. On préfèrera généralement utiliser un système étireur introduisant une dispersion positive compensée par un compresseur introduisant une dispersion négative. En effet, nous avons vu que l'introduction d'une dispersion positive est réalisée en utilisant un système d'imagerie avec des lentilles. A forte énergie, l'utilisation d'optiques de transmission est propice aux effets non-linéaires. Elles sont donc à placer préférentiellement dans le système dispersif où les énergies sont les plus faibles : l'étireur. La compression de PETAL est réalisée en deux étapes. La première étape est une compression sous air ambiant, permettant d'obtenir des impulsions de quelques centaines de picosecondes. A ce niveau, l'intensité des impulsions n'est pas assez grande pour générer des effets de propagations non-linéaires dans l'air (effets décrits dans la section suivante). La deuxième étape est une compression temporelle de l'impulsion sous vide. A la fin de cette étape, l'impulsion laser a une durée de l'ordre de la picoseconde et une puissance de plusieurs Petawatt. Le transport sous air n'est plus possible, le faisceau risquant d'ioniser l'air. La suite du transport et de la focalisation est donc réalisée sous vide. Un schéma de ces sections de compression est donné dans

la Figure 1-8. Une photographie de l'intérieur du caisson permettant la compression de l'impulsion sous vide est donnée dans la Figure 1-9.

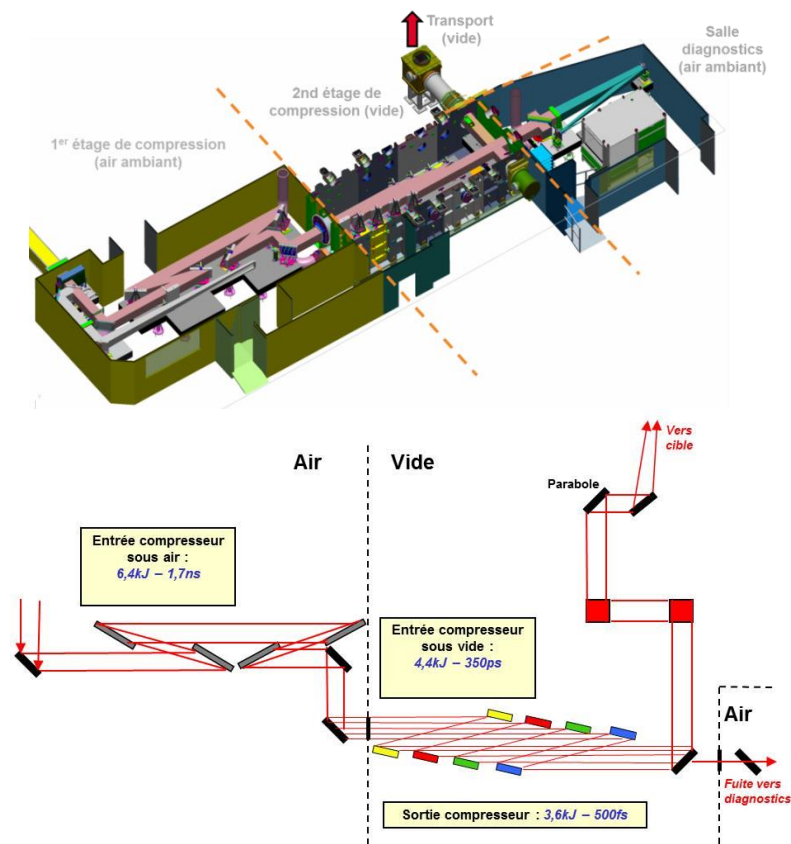


Figure 1-8 : Vue 3D et 2D de la section de compression de l'installation PETAL. Elle est composée de deux étages : un étage sous air qui permet une pré-compression et un étage sous vide qui permet d'atteindre des durées d'impulsion de l'ordre de 500fs. A partir de ce second étage de compression, l'intégralité du transport du faisceau et sa focalisation sont réalisées sous vide afin de limiter l'accumulation d'effets non-linéaires liés aux fortes intensités. Elles auraient pour conséquence une importante déformation du faisceau laser, voire un claquage du faisceau. L'évolution de l'énergie et de la durée d'impulsion lors de la propagation est donnée sur la figure 2D : ces valeurs correspondent aux caractéristiques nominales de PETAL définies lors de sa conception. La diminution de l'énergie est essentiellement due à l'utilisation des réseaux, qui possèdent une efficacité de diffraction d'environ 95%.



Figure 1-9 : Photographie de l'intérieur du caisson de compression sous vide de l'installation PETAL. Quatre paires de réseaux permettent, dans ce second étage de compression, d'obtenir des impulsions laser de durées inférieures à 1ps. Les réseaux de compression sont bien évidemment positionnés sur des montures motorisées permettant un réglage fin à distance et sous vide. La taille des réseaux est de 450x420mm<sup>2</sup>.

### 1.A.3 Le dimensionnement des composants.

Comme annoncé dans le paragraphe précédent, la taille du faisceau à partir de l'étape d'amplification par plaques laser est de  $37 \times 35,6 \text{ cm}^2$ . Cette grande taille de faisceau permet de limiter les densités d'énergie sur les différentes optiques de fin de chaîne laser, et ainsi éviter le potentiel endommagement induit par un flux laser intense, tout en maintenant une grande quantité d'énergie transportée. Dans la Figure 1-8, on donne l'énergie dans le faisceau ainsi que la durée d'impulsion en différents points de la fin de chaîne PETAL.

Les optiques susceptibles de s'endommager dans le laser PETAL sont celles irradiées par les plus grandes densités de puissance : il s'agit des réseaux de compression sous vide (premières optiques à être illuminées par des impulsions énergétiques de courtes durées), les miroirs de transports sous vide et l'optique de focalisation (parabole hors axe). Comme on peut le constater sur la Figure 1-8, les réseaux de compression dans la section sous vide sont utilisés à de forts angles d'incidence ( $>77^\circ$ ), afin de compenser le déphasage induit par l'étireur et obtenir des durées d'impulsion finales de l'ordre de 500fs. L'utilisation d'un unique réseau de compression n'est à ce jour pas possible, faute d'être capable de fabriquer un composant de cette dimension (il faudrait un réseau d'une longueur d'environ 1m80). Pour pallier cette limite technologique, le faisceau est subdivisé en 4 sous-pupilles en entrée du compresseur sous vide par un miroir segmenté qui permet en outre de synchroniser les différentes pupilles et de corriger les défauts d'alignement entre les quatre chemins parcourus par les quatre sous-faisceaux.

Du fait des fortes densités de puissance rencontrées, il est nécessaire d'utiliser des matériaux diélectriques qui présentent des résistances au flux laser importantes. Ainsi, miroirs et réseaux en réflexions sont obtenus à partir d'empilements interférentiels qui leur confèrent leur fonction optique. Nous reviendrons sur cette notion de structure interférentielle dans le Chapitre 2.

Le Tableau 1-1 donne les différentes configurations d'utilisation de ces optiques ainsi que leurs spécifications en termes de tenue au flux laser. Les fluences seuil sont exprimées en section droite, i.e. dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau.

Composants	Angle d'incidence	Longueur d'onde	Durée d'impulsion	Spécifications de seuil d'endommagement (fluence en section droite, dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau)
Réseaux de compression (sous vide)	$77,2^\circ$	1053nm	500fs	4 J/cm <sup>2</sup>
Miroirs et parabole	$45^\circ$			

Tableau 1-1 : Tableau récapitulatif des conditions d'utilisation des optiques PETAL. La fluence seuil d'endommagement a été définie afin de prendre en compte les modulations spatiales du faisceau. Elle correspond à la fluence maximale susceptible d'irradier les optiques.

Enfin, malgré les grandes dimensions des optiques, celles-ci doivent être d'excellente qualité afin de garantir une grande qualité de faisceau tout au long de la propagation jusqu'au centre de la chambre d'expérience. Aujourd'hui, il existe peu d'industriels capables de réaliser des optiques de cette taille. Le projet PETAL peut donc être vu comme un challenge, auquel participent des industriels qui doivent être capables de maîtriser une technologie de pointe.

## 1.B Limitation des performances d'un système : l'endommagement induit par laser en régime sub-picoseconde.

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons aux mécanismes d'endommagement laser en régime sub-picoseconde, et plus particulièrement à l'endommagement des matériaux diélectriques qui présentent une forte résistance au flux laser par rapport aux métaux. C'est la raison pour laquelle ils sont largement utilisés dans les systèmes à haute puissance.

### 1.B.1 Propagation d'un faisceau intense.

#### 1.B.1.i Qu'est-ce qu'un matériau diélectrique ?

On trouve principalement trois types de matériaux : les métaux, les matériaux semi-conducteurs et les matériaux dits diélectriques. Dans cette thèse, nous nous intéresserons plus particulièrement à ces derniers, qui possèdent des propriétés très intéressantes pour le domaine de l'optique.

Les matériaux diélectriques peuvent être solides, liquides ou gazeux. On peut citer comme exemple les verres, céramiques et plastiques, les huiles et l'eau pure déionisée ou même l'air sec. Ils ont la propriété de ne pas avoir de charges électriques capables de se déplacer macroscopiquement et sont donc isolants électriques. C'est la principale différence avec les métaux qui eux possèdent des charges susceptibles de se déplacer sous l'effet d'un courant électrique. Nous reviendrons plus en détails sur leur structure électronique dans le paragraphe 1.B.2. A l'échelle atomique, un matériau diélectrique possède toutefois la capacité de se polariser sous l'effet d'un champ électrique. Les charges positives et négatives en équilibre vont se déplacer et s'aligner au champ électrique formant ainsi un dipôle. Dans le cas d'intensités faibles, la polarisation  $\vec{P}$ , qui quantifie cet effet dipolaire s'écrit de façon simplifiée :

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

Équation 1-2 : Polarisation  $\vec{P}$  d'un milieu sous l'effet d'un champ électrique  $\vec{E}$ .  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide,  $r$  le vecteur position et  $\chi^{(1)}$  le tenseur de susceptibilité d'ordre 1 du matériau diélectrique.

La combinaison des équations de Maxwell avec l'équation constitutive conduit à l'équation de propagation du champ électrique, donnée dans la référence [7].

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(\vec{r}, t)$$

Equation 1-3 : Equation de propagation.  $c$  est la célérité de la lumière dans le vide.

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

Equation 1-4 : Equation de propagation.

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

Équation 1-5 : Définition de l'indice de réfraction  $n_0$  d'un matériau.  $\epsilon_r$  est la permittivité relative du matériau.

Pour des intensités lasers importantes, le vecteur de polarisation ne peut plus s'exprimer linéairement comme dans l'Équation 1-2 et il est nécessaire de considérer les ordres supérieurs de sa décomposition en série de puissance du champ  $\vec{E}$  :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \sum_1^i \chi^{(i)} [\vec{E}(r, t)]^i$$

Équation 1-6 : Vecteur de polarisation d'ordre multiple avec  $\chi^{(i)}$  le tenseur de susceptibilité d'ordre  $i$ .

Aux intensités considérées dans les études menées lors de cette thèse, les effets considérés sont des effets non-linéaires du 3<sup>ème</sup> ordre, type effet Kerr ou automodulation de phase. Nous reviendrons sur ces effets dans la suite du chapitre. Egalement dans le cas de matériaux diélectriques amorphes et isotropes, la symétrie du matériau impose des tenseurs de susceptibilité d'ordre pair nuls. De l'Équation 1-6, le vecteur de polarisation peut être réduit à :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \left[ \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E|^2 \right] \vec{E}(\vec{r}, t)$$

Équation 1-7 : Vecteur de polarisation à l'ordre 3.

En l'injectant dans l'Equation 1-3, on obtient :

$$\Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{1 + \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E|^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) = \Delta \vec{E}(\vec{r}, t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) = 0 \text{ avec } n = \sqrt{1 + \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E|^2}$$

Équation 1-8 : Equation de propagation et définition de l'indice du matériau pour un vecteur de polarisation d'ordre 3.

En définissant  $I$  l'intensité du champ  $\vec{E}$ ,  $n_2$  l'indice non-linéaire du matériau et en faisant l'approximation que  $\chi^{(3)}$  est petit devant  $\chi^{(1)}$ , on obtient :

$$n \approx n_0 + n_2 I \quad \text{avec} \quad I = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c n_0 |E|^2 \quad \text{et} \quad n_2 = \frac{3 \chi^{(3)}}{4 \varepsilon_0 c n_0^2}$$

Équation 1-9 : Indice du matériau en fonction de l'intensité du champ électrique.

A forte intensité, l'indice du matériau dépend de l'intensité du champ électrique, ce qui va entraîner une modification de la propagation du faisceau, d'autant plus importante que le  $n_2$  du matériau est grand.

### 1.B.1.ii La propagation non linéaire d'une impulsion.

Compte tenu de cette polarisation non-linéaire d'ordre 3 dans les matériaux isotropes amorphes, plusieurs phénomènes non-linéaires peuvent être rencontrés par le faisceau lors de sa propagation. On a cité le phénomène d'automodulation de phase qui se manifeste spectralement et le phénomène d'autofocalisation dont la manifestation est spatiale. Nous donnons dans ce paragraphe de rapides considérations sur ces effets non-linéaires. Pour de plus amples informations, le lecteur peut se rapporter à l'ouvrage [8].

Concernant l'automodulation de phase :

L'expression de la phase du champ électrique se propageant selon l'axe  $z$  est donnée par :

$$\Phi = \Phi_0 + kz \text{ avec } k = nk_0 = n \frac{2\pi}{\lambda} \text{ le vecteur d'onde}$$

Équation 1-10 : Phase du champ électrique.  $\Phi_0$  est la phase à l'origine



En considérant l'Équation 1-9, l'Équation 1-10 devient :

$$\Phi \approx \Phi_0 + n_0 k_0 z + n_2 k_0 z I(t, z)$$

Équation 1-11 : Phase non-linéaire

Si on introduit la pulsation instantanée  $\omega$  de l'onde par :

$$\omega(z, t) = \frac{\partial \Phi}{\partial t} = \omega_0 - n_2 k_0 z \frac{dI(z, t)}{dt}$$

Équation 1-12 : Pulsation instantanée de l'onde Electromagnétique en fonction de l'intensité.

Après avoir traversé une distance L de matériau d'indice n, la pulsation instantanée de l'onde devient :

$$\omega(t) = \omega_0 - n_2 k_0 L \frac{dI(t)}{dt}$$

Équation 1-13 : Pulsation instantanée de l'onde Electromagnétique en fonction de l'intensité, après avoir traversé une épaisseur L de matériau.

L'Équation 1-13 montre que la pulsation instantanée varie en fonction de la dérivée de l'intensité du champ : la fréquence instantanée du front montant de l'impulsion (pour lequel la dérivée de l'intensité est positive) va être déviée vers le rouge (pulsations courtes) alors que la fréquence instantanée du front descendant va être déviée vers le bleu (pulsations longues). D'un point de vue spectral, cela signifie que durant sa propagation, de nouvelles fréquences vont être ajoutées au spectre de l'impulsion.

Concernant l'autofocalisation :

Si on considère un faisceau spatialement gaussien, la répartition de l'énergie dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau n'est pas homogène. D'après l'Équation 1-9, il est donc possible d'exprimer l'indice en fonction de sa distance  $r$  par rapport au centre du faisceau gaussien ( $\omega_0$  étant le rayon de faisceau à  $1/e^2$ ) :

$$n(r) = n_0 + n_2 I_0 e^{-\frac{2r^2}{w_0^2}}$$

Équation 1-14 : Variation de l'indice pour un faisceau spatialement gaussien intense.  $r$  est la coordonnée radiale et  $w_0$  étant le rayon de faisceau à  $1/e^2$

L'indice d'un matériau est donc modifié à la traversée d'un flux intense. Le matériau se comporte comme une lentille qui focalise le faisceau sur lui-même, jusqu'à son effondrement. Ce phénomène est également appelé lentille de Kerr. Il a été montré que l'autofocalisation se produit lorsque la puissance du faisceau atteint une puissance critique  $P_c$ , puissance pour laquelle l'autofocalisation compense totalement la diffraction [9]:

$$P_c = 0,931 \frac{\lambda^2}{2\pi n_0 n_2}$$

Équation 1-15 : Définition de la puissance critique d'autofocalisation à une longueur d'onde  $\lambda$  dans un matériau d'indice linéaire  $n_0$  et non-linéaire  $n_2$ .

Pour une impulsion laser à 1053 nm se propageant dans l'air ( $n_0 = 1$  et  $n_2 = 3,2 \cdot 10^{-23} \text{ m}^2/\text{W}$ ),  $P_c = 5,5 \text{ GW}$ . A titre d'exemple, durant cette thèse, un banc d'endommagement laser a été développé, utilisant

une source laser qui délivre des impulsions de durée 720fs, d'énergie 2,5mJ à 1053nm. La puissance maximale est donc  $P = 2,8 \text{ GW}$ , soit 2 fois sous le seuil d'autofocalisation. Il est donc essentiel de manipuler les impulsions intenses avec précaution afin de limiter les effets non-linéaires qui sont susceptibles de modifier les caractéristiques du faisceau, entraînant une mauvaise interprétation des résultats. Nous reviendrons plus en détails sur le dispositif expérimental développé durant cette thèse dans le Chapitre 3.

### 1.B.2 De l'excitation des matériaux à l'endommagement.

Cette thèse portant sur l'endommagement laser en régime sub-picoseconde, nous redonnons dans cette section les principaux mécanismes menant de l'excitation d'un matériau diélectrique à son endommagement.

#### 1.B.2.i Principe d'excitation des électrons dans un matériau.

Lors de la description des matériaux diélectriques, nous avons parlé des aspects macroscopiques de ces derniers et de leur comportement face à un champ électromagnétique. Il est intéressant de les définir à l'échelle microscopique par leur structure électronique. Elle repose sur la résolution de l'équation de Schrödinger dont les solutions sont des fonctions de Bloch. Ce formalisme permet de décrire les états électroniques d'un matériau sous forme d'alternance de bandes d'énergie et de bandes interdites [10, 11]. Une bande interdite correspond à une absence d'orbitale ondulatoire d'électrons : il s'agit d'états énergétiques interdits aux électrons. Les électrons sont répartis dans ces bandes d'énergie. On appelle niveau de Fermi le niveau d'énergie le plus haut peuplé en électrons à une température de 0K.

On distingue alors trois principaux types de matériaux :

- les matériaux diélectriques, pour lesquels le niveau de Fermi est dans une bande interdite : la bande d'énergie peuplée inférieure à la bande interdite est alors appelée bande de valence (BV). La bande d'énergie vide supérieure à la bande interdite est la bande de conduction (BC). Une énergie supérieure à la largeur de la bande interdite doit être fournie aux électrons pour passer de la BV à la BC. L'énergie apportée par un photon à une fréquence  $\nu$  est  $E = h\nu$ ,  $h$  étant la constante de Planck. A titre d'exemple, l'énergie d'un photon à 1053nm est de 1,18eV. Elle est très faible par rapport à la largeur de la bande interdite d'une couche de silice (matériau très largement utilisé en optique dont la largeur de la bande interdite est typiquement de 7,5eV).
- les métaux pour lesquels le niveau de Fermi est dans une bande d'énergie : les électrons peuvent facilement passer d'un état énergétique à un autre par simple agitation thermique par exemple.
- les semi-conducteurs : c'est un cas intermédiaire qui possède une fine bande interdite (<3eV).

Nous allons nous intéresser plus particulièrement aux matériaux diélectriques et à l'excitation de leurs électrons. La représentation choisie [12] est une représentation schématique pour laquelle on a fixé le vecteur d'onde des électrons. Elle est donnée dans la Figure 1-10.

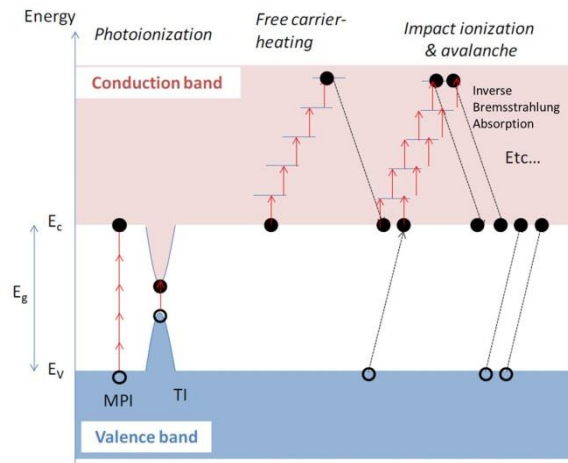


Figure 1-10 : Processus d'excitation électronique non linéaire. Les électrons de la bande de valence sont tout d'abord promus dans la bande de conduction par des processus de photoionisation (multiphotonique (MPI) ou Tunnel (TI)). Par processus « Inverse Bremsstrahlung », ces électrons sont amenés à des niveaux énergétiques plus élevés. Ensuite, s'ils sont suffisamment énergétiques, ils peuvent céder leur énergie à des électrons de la bande valence par collision avec les atomes de la matière. Les électrons promus à la bande de conduction peuvent à leur tour absorber l'énergie par processus Inverse Bremsstrahlung [12].

Chronologiquement, plusieurs étapes mènent à l'excitation des électrons :

- La première étape est la photoionisation. Elle permet de générer des électrons germes dans la BC. L'énergie à apporter aux électrons de la BV doit être supérieure à la largeur de la bande interdite. Dans le cas des diélectriques, une absorption linéaire correspondrait à l'absorption d'un photon très énergétique (typiquement un photon X). Dans le cas d'impulsions intenses, deux principaux phénomènes d'absorption non-linéaire peuvent être présents : l'ionisation multi-photonique (MPI) ou absorption multi-photonique et l'effet Tunnel (TI). L'occurrence de ces phénomènes a été étudiée par Keldysh en 1965 et est décrite par un paramètre  $\gamma$  appelé paramètre de Keldysh [13]. Ce paramètre est inversement proportionnel à l'intensité du champ électrique (dans le cas d'un champ électrique polarisé linéairement) et pour  $\gamma \ll 1$ , l'effet Tunnel est prédominant sur l'absorption multi-photonique. Pour  $\gamma \gg 1$ , c'est l'inverse. Lors d'une ionisation multi-photonique, un électron est excité grâce à l'absorption de plusieurs photons dont l'énergie totale est supérieure à la largeur de la bande interdite. Lors d'une ionisation par effet Tunnel, un champ électrique fort contribue à abaisser la barrière de Coulomb qui lie l'électron à son atome et facilite son excitation avec un seul photon. Plusieurs modèles permettent de simuler le phénomène d'excitation et de calculer le taux de photoionisation (en  $s^{-1}cm^{-3}$ ) [14]. Ils sont illustrés dans la Figure 1-11. Une fois excité, l'électron laisse dans la BV une lacune électronique appelée « trou ».
- Une fois les électrons germes dans la bande de conduction, ils ont la possibilité d'absorber à nouveau des photons, ce qui les mène à des états énergétiques accessibles supérieurs. Ce phénomène est appelé processus « inverse Bremsstrahlung ». L'électron est accéléré et possède une très forte énergie.
- Par un effet de collision avec les atomes de la matière, cet électron très énergétique peut céder son énergie à un électron de valence et le promouvoir dans la bande de conduction. Cet effet est appelé ionisation par impact (II, *Impact Ionization*) Les électrons promus à la bande de conduction peuvent à leur tour absorber l'énergie par processus inverse Bremsstrahlung. La répétition de ce phénomène est appelé « avalanche électronique » [15].

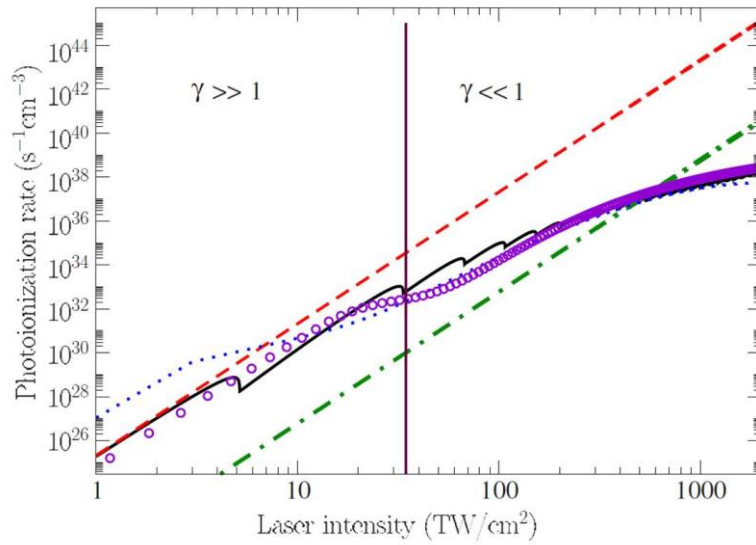


Figure 1-11 : Taux de photoionisation par MPI et TI de la silice, pour des impulsions laser de durée 28fs à 800nm, calculés à partir du modèle de Keldysh (trait plein noir), du modèle de Sudrie (tirets rouges), du modèle de Lenzner (tirets-points verts), du modèle de Petrov (pointillés bleus) et du modèle de Perelomov et al. (cercles violets) [14].

En prenant en compte les différents effets qui viennent d'être cités, il est possible de décrire l'évolution de la densité d'électrons  $N$  dans la bande de valence par l'Équation 1-16, appelée équation de taux. Un exemple de solution de l'équation de taux est donné dans la Figure 1-12.

$$\frac{dN}{dt} = W_{PI} + W_{II} - W_{relax}$$

Équation 1-16 : Equation de taux.  $N$  est la densité d'électrons.  $W_{PI}$  est le taux d'électrons générés par photoionisation.  $W_{II}$  est le taux d'électrons générés par avalanche électronique (*Impact Ionization*) et  $W_{relax}$  est le taux d'électrons perdus par relaxation vers des états énergétiques plus stables.

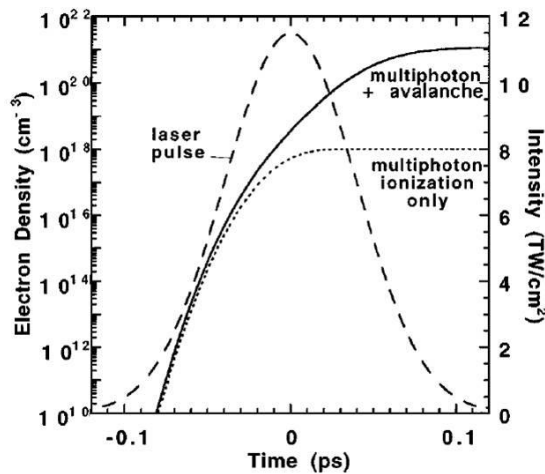


Figure 1-12 : Exemple d'évolution de la densité d'électronique en fonction du temps. Expérimentalement, il est montré que cette impulsion laser endommage le matériau considéré pour l'étude. Le calcul a été réalisé avec et sans la considération du phénomène d'avalanche électronique [16].

Dans l'Équation 1-16, on voit qu'il apparaît un terme concernant la relaxation des électrons. En effet, les électrons dans la bande de conduction sont dans un état énergétique instable. Ce terme traduit donc le processus qui se met en place afin que le matériau retrouve son équilibre thermodynamique.

### **1.B.2.ii Principe de relaxation des électrons.**

Parmi les phénomènes de relaxation, on trouve les phénomènes de relaxation intrabandes et interbandes. Concernant les processus intrabandes, on répertorie :

- les relaxations électron-électron : l'énergie d'un électron excité est transférée à un autre électron sans perte de population électronique dans la BC et sans perte d'énergie (processus de conduction de l'électricité dans les métaux, où la densité d'électrons dans la bande de conduction est très élevée)
- les relaxations électron-phonon : un phonon est un quanta de vibration (il correspond aux oscillations harmoniques dans le réseau d'ions qui constitue le matériau). Les phonons transportent une énergie faible qui est transférée au réseau et conduit à l'échauffement du matériau. Les autres électrons dans la BC sont susceptibles d'écranter ce phénomène d'interaction électron-ion. Toutefois, la faible densité d'électrons dans la BC dans un diélectrique rend ce phénomène de relaxation électron-phonon très présent.

Ces processus intrabandes sont très rapides (quelques centaines de femtosecondes) et peuvent donc avoir lieu pendant une impulsion laser sub-picoseconde.

Concernant les relaxations interbandes, on peut citer :

- des relaxations radiatives par recombinaisons directes : l'électron excité redescend en énergie en se recombinant avec un trou et en émettant un photon. C'est sur ce processus long (~1ns) que repose typiquement le fonctionnement d'un laser solide.
- Les relaxations par recombinaison indirecte : les électrons se désexcitent dans des niveaux électroniques situés à l'intérieur de la bande interdite : on parle alors de piégeage de charges. Ces niveaux intermédiaires peuvent être d'origine naturelle, introduits par des défauts cristallins (défaut lacunaire par exemple), ou être le résultat d'une excitation du matériau. En effet, lors de l'excitation d'un électron, celui-ci laisse dans la BV une charge positive appelée trou. La localisation d'un trou et d'un électron sur des sites voisins peut entraîner une déformation de la maille cristalline qui rend stable un état électronique intermédiaire et donc propice au piégeage d'un électron. Ce phénomène d'auto-piégeage des électrons est appelé STE (Self Trapped Exciton, Exciton auto-piéagé) [17]. Les états intermédiaires permettant le piégeage de charges peuvent se trouver proches en énergie de la BC ou de la BV : on parle respectivement de Shallow Traps (ST) ou de Deep Traps (DT). Les temps caractéristiques de ces processus varient de la femtoseconde à la centaine de picosecondes et dépendent des matériaux [18].

La formation de STE est favorable à l'ionisation de matériaux. Les niveaux intermédiaires créés facilitent l'accès des électrons à la bande de conduction en diminuant l'énergie nécessaire à leur excitation et donc en facilitant l'absorption de photons. Ce phénomène, qui apparaît après plusieurs irradiations correspond au phénomène de fatigue ou d'incubation.

### **1.B.2.iii Le phénomène d'endommagement laser.**

#### **1.B.2.iii.a Les mécanismes d'endommagement.**

La norme ISO 21254 définit un dommage laser comme étant une modification irréversible en surface ou en volume d'un composant observable en microscopie DIC (*Differential Interference Contrast*, microscope à contraste). Dans les régimes nanoseconde et picoseconde, l'endommagement laser résulte de l'absorption

de l'énergie par les rares défauts des optiques, même en faible concentration. L'absorption conduit à une élévation de la température pendant toute la durée de l'impulsion laser. Dans le cas des impulsions courtes, la probabilité d'absorption des photons via des transitions multiphotoniques prévaut sur l'absorption par les défauts rares et localisés dans la matière [19]. Les différents mécanismes d'excitation présentés dans le paragraphe 1.B.2.i mènent à une augmentation de la densité d'électrons dans la BC et à la formation d'un gaz d'électrons et d'ions appelé plasma. On peut alors définir une valeur critique telle que la fréquence du plasma est égale à la fréquence du laser. Cette valeur critique est de l'ordre de  $10^{20}$ - $10^{23}$   $\text{cm}^{-3}$ . Lorsqu'elle est atteinte, il se produit un fort couplage de l'énergie transportée par le faisceau vers le plasma d'électrons, pouvant conduire à un endommagement de la matière. Pendant une impulsion subpicoseconde, la durée de l'impulsion étant bien plus courte que la durée caractéristique de thermalisation de la matière, le phénomène d'absorption est dissocié du phénomène de transfert de l'énergie au réseau cristallin. Une fois l'énergie de l'impulsion absorbée par le matériau, il s'ensuit un endommagement résultant de :

- Un mécanisme d'explosion Coulombienne : la neutralité des charges dans le matériau n'est pas maintenue. La charge d'espace près de la surface du matériau est très importante et ce volume chargé positivement va exploser [20].
- Un phénomène thermique : Lors du dépôt d'énergie, on a un chauffage quasi instantané du gaz d'électrons alors que le réseau est peu perturbé. L'énergie ensuite transmise au réseau va l'échauffer et provoquer une fusion explosive du matériau [21].
- La détente du plasma qui s'est formé dans la zone absorbante du matériau et qui va générer une onde de choc [21].
- Les contraintes thermomécaniques : la formation d'un gradient élevé de température au sein du matériau après le passage de l'impulsion peut contraindre le matériau et l'endommager [22].

En régime d'impulsion longue (supérieur à la dizaine de picoseconde), la thermalisation du système d'électron a lieu en même temps que le dépôt d'énergie par l'impulsion laser. Si l'énergie apportée est suffisamment importante, le transfert d'énergie des électrons au réseau permet de produire un changement de phase dans toute la zone où l'énergie thermique a été transférée. Le dommage résultant est lié à la fusion et à la vaporisation de la matière dans une zone relativement large autour du point focal. En régime d'impulsions courtes, les électrons sont donc très rapidement excités et la densité critique d'électrons est atteinte même pour de faibles énergies (comparé aux impulsions longues) : l'endommagement est beaucoup plus localisé puisque la zone impactée thermiquement sera plus restreinte [16]. Dans la Figure 1-13, on illustre cet endommagement typique obtenu en régime d'impulsions courtes avec un faisceau spatialement gaussien de diamètre environ  $150\mu\text{m}$ . Il s'agit de différents composants optiques : des matériaux déposés en couche mince sur des substrats et des miroirs diélectriques. Ils sont observés avec un microscope DIC (modèle Axio Imager.A2, Zeiss, objectif  $\times 100$  0.90NA).

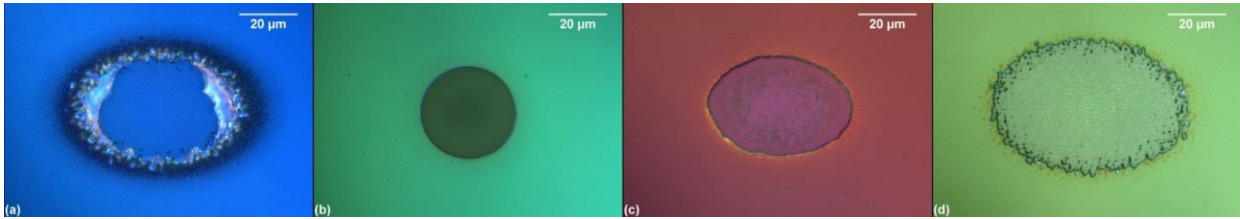


Figure 1-13 : Observation de dommages réalisés sur divers matériaux au microscope DIC. L'installation utilisée pour réaliser ces tests d'endommagement est le banc DERIC, qui sera décrit dans le Chapitre 3. Pour chaque composant, on donne entre parenthèses l'angle d'incidence, la polarisation du faisceau et la fluence d'irradiation (ou densité d'énergie) mesurée dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau : (a) monocouche de silice ( $45^\circ / P / 6,68\text{J}/\text{cm}^2$ ), (b) monocouche de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  ( $15^\circ / S / 5,28\text{J}/\text{cm}^2$ ), (c) miroir diélectrique obtenu par un procédé e-beam ( $45^\circ / P / 3,23\text{J}/\text{cm}^2$ ) et (d) miroir diélectrique obtenu par un procédé e-beam + assistance ionique ( $45^\circ / P / 2,94\text{J}/\text{cm}^2$ ).

### 1.B.2.iii.b L'influence de la durée d'impulsion.

La nature de l'endommagement laser dépend donc de la durée d'impulsion. Expérimentalement, des fluences seuils d'endommagement laser  $F^{th}$ , appelées également LIDT (Laser Induced Damage Threshold), ont été déterminées en fonction de la durée d'impulsion  $\tau$  pour différents matériaux. Il en est ressorti que pour des impulsions supérieures à quelques picosecondes, le seuil d'endommagement est proportionnel à  $\tau^{\frac{1}{2}}$ , comme cela est illustré sur la Figure 1-14 [16]. Ce phénomène est caractéristique de la diffusion thermique par relaxation électron-phonon. Cette loi d'échelle temporelle n'est plus valide pour des impulsions plus courtes : on trouve des facteurs proportionnels en  $\tau^k$  avec  $k$  variant entre 0,1 et 0,35 [23].

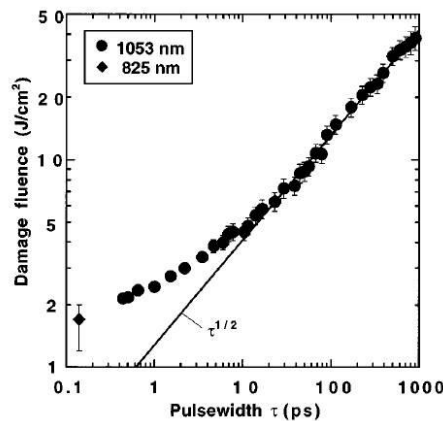


Figure 1-14 : Evolution de la fluence seuil d'endommagement de la silice en fonction de la durée d'impulsion [16].

### 1.B.2.iii.c Effet d'irradiation multiple.

Nous l'avons évoqué dans le paragraphe 1.B.2.ii : après son excitation, la présence d'un électron à proximité d'un trou peut entraîner la formation de niveaux intermédiaires à l'intérieur de la bande interdite par déformation du réseau cristallin. Ces niveaux photo-induits sont appelés STE. Ceci implique une dépendance de la résistance au flux laser d'un matériau en fonction du nombre de tirs : ce phénomène est appelé effet de fatigue ou « incubation effect » [24, 25, 26, 27]. Il est illustré sur une monocouche de  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  sur la Figure 1-15.

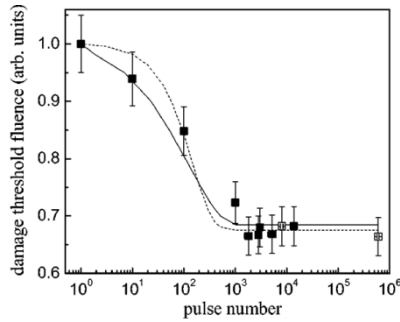


Figure 1-15 : Effet de fatigue : évolution de la fluence seuil d'endommagement en fonction du nombre d'impulsions [26]. La durée d'impulsion lors de ces expériences est de 30fs, la fréquence de répétition 1kHz et la longueur d'onde 800nm. Le matériau étudié est une monocouche de Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> déposée sur un substrat de silice. Les points représentent les données expérimentales. Le trait plein est le résultat d'une simulation numérique prenant en compte les effets de relaxations et de piégeages électroniques. Le trait pointillé est un paramétrage des données expérimentales par un modèle analytique simplifié décrit dans la référence [26].

#### 1.B.2.iii.d Effet de la fréquence de répétition.

Des études concernant l'influence de la fréquence de répétition du laser ont également été menées dans le régime impulsions courtes [26, 28]. Pour des fréquences allant jusqu'à 1kHz, le taux de répétition du laser n'a pas d'influence avérée sur le seuil de tenue au flux du matériau. Cela a été mesuré pour plusieurs matériaux diélectriques et reporté sur la Figure 1-16.

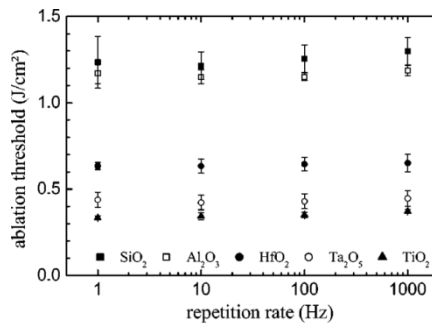


Figure 1-16 : Influence de la fréquence de répétition sur le seuil d'endommagement de plusieurs matériaux déposés en monocouches. Le seuil d'endommagement ici considéré correspond au seuil d'ablation des monocouches. Pour des fréquences inférieures à 1kHz, la fréquence de répétition n'a pas d'effet sur le seuil. La durée d'impulsion lors de ces expériences est de 30fs [26].

Pour des fréquences plus élevées (typiquement de l'ordre du MHz), des effets thermiques surviennent. En effet, si la durée entre chaque impulsion est trop courte, la diffusion thermique n'a pas le temps de s'effectuer et la température du réseau augmente tir à tir, jusqu'à la fusion du matériau comme cela est représenté sur la Figure 1-17 [29]. Ce phénomène est identique à celui observé dans le cas d'impulsions longues.

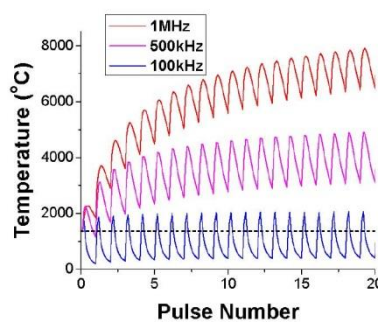


Figure 1-17 : Modélisation de l'évolution de la température dans du verre borosilicate en fonction du nombre de tirs et de la fréquence de répétition [29].



Une étude menée par Nagy et al. montre une forte diminution de la tenue au flux laser d'un miroir lorsque la fréquence de répétition passe de 1kHz à 4,3MHz (diminution d'un facteur 2,7) [28].

La norme ISO 21254-2:2011 [30] suggère d'exprimer la fluence seuil  $F_{th}$  pour  $S$  tirs par l'Équation 1-17 suivante :

$$F_{th}(S) = F_{th,\infty} + \frac{F_{th,1} - F_{th,\infty}}{1 + \frac{1}{\Delta} \log_{10}(S)} - d$$

Équation 1-17 : Evolution du seuil d'endommagement en fonction du nombre d'irradiations laser.

avec  $F_{th,1}$  le seuil d'endommagement 1-on-1,  $F_{th,\infty}$  la valeur asymptotique du seuil d'endommagement (i.e., la tenue au flux laser à une infinité d'impulsions) et  $\Delta$  et  $d$  des variables d'ajustement du modèle. Ce modèle permet de donner une bonne tendance du comportement d'un composant mais il est très empirique et donc à manier prudemment. Des modèles qui prennent davantage en considération la physique mise en jeu sont plus difficiles à mettre en place mais sont mieux adaptés au régime femtoseconde, tels que ceux décrits par Mero et al. [26].

#### 1.B.2.iii.e Phénomène de croissance.

Sous l'effet d'irradiations successives, un dommage déjà amorcé peut également croître. Son évolution lors de tirs successifs peut rendre l'utilisation du composant impossible (détérioration de la fonction optique, effet diffusant...). Ainsi lorsqu'un dommage est amorcé sur une optique d'un système laser, la modification de la surface du composant peut entraîner une forte déformation du front d'onde. Les modulations spatiales du faisceau générées peuvent être préjudiciables pour les composants optiques en aval, les pics d'intensité engendrant un endommagement précoce de leur surface. Ces modulations spatiales sont aujourd'hui calculables grâce à des codes numériques, tels que Miró [31], connaissant l'état de surface des composants optiques.

Dans le domaine nanoseconde, la problématique de la croissance des dommages a déjà fait l'objet de plusieurs études [32]. Dans ce régime temporel, les études de croissance ont principalement été réalisées sur des composants de silice massive. La croissance des dommages sur silice est notamment due à l'absorption du flux laser par les fractures sous-surfaciques qui ont été générées lors de l'amorce du dommage. Des comportements en croissance différents ont été constatés lorsque les dommages sont situés sur la face d'entrée ou sur la face de sortie des composants. Face incidente, l'évolution du diamètre des dommages est linéaire avec le nombre de tirs [33]. Face de sortie, l'évolution du diamètre des dommages est exponentielle [34]. Un exemple d'évolution d'un dommage initié sur la face arrière d'un composant en silice est donné dans la Figure 1-18 [35]. La croissance du dommage a été réalisée à une longueur d'onde de 1064nm.

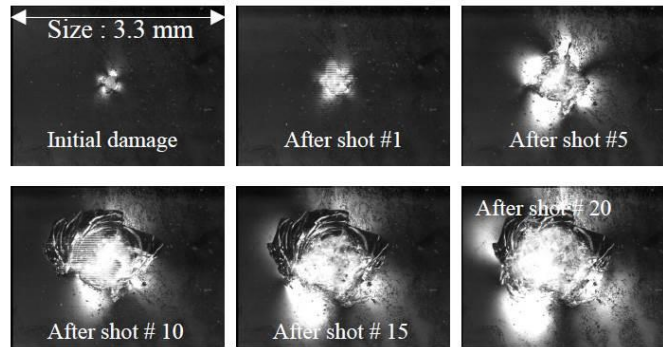


Figure 1-18 : Évolution de la surface d'un dommage lors d'irradiations successives de durée 9ns à 1064nm et 11J/cm<sup>2</sup>. Le dommage initial est situé sur la face arrière d'un composant de silice d'épaisseur 5mm. La croissance du dommage est exponentielle [35].

Egalement, des approches probabilistes de la croissance ont été menées sur la silice massive, avec des probabilités de croissance en fonction de la fluence dépendant de la taille initiale des dommages et qui peuvent être paramétrées par des sigmoïdes [36].

Concernant les études de la croissance de dommages sur les composants réfléchissants, elles ont été principalement menées dans le régime nanoseconde. Les dommages amorcés dans ce régime sont dus à la présence de défauts particuliers dans le traitement réfléchissant générant des nodules qui sont éjectés lors d'une première irradiation. Ils laissent derrière eux des surfaces délaminiées, appelées dommages à fond plat (Flat Bottom pit), ou encore des cônes dus à l'éjection de nodules (Nodule-ejected pit) (voir Figure 1-19). Génin et al. [37] ont observé une forte croissance des dommages délaminiés à partir de 20J/cm<sup>2</sup> à 3ns et 1064nm (à 25J/cm<sup>2</sup>, le diamètre des dommages est doublé en environ 10 tirs). Concernant les dommages dus à l'éjection de nodules, la croissance est faible voire inexistante pour des fluences de 40J/cm<sup>2</sup>. Taniguchi et al. [38] ont observé en 2001 l'évolution linéaire de la taille des dommages en réalisant plusieurs RasterScan sur un composant miroir à 10ns et 1064nm. En 2011, Shan et al. [39] ont étudié l'interaction d'une impulsion laser de 12ns à 1064nm avec des dommages induits par l'éjection de nodules et des dommages à fond plat et ont montré un rôle important de défauts absorbants sur le phénomène de croissance. Enfin, plus récemment, des séquences de croissance ont été réalisées à 30ps sur des dommages initiés sur des miroirs R<sub>max</sub> [40]. Des coefficients de croissance d'environ 20-30µm/50tirs sont rapportés pour des fluences de croissance comprises entre 5,5J/cm<sup>2</sup> et 7,5 J/cm<sup>2</sup>. En revanche, à notre connaissance, aucune étude n'a été menée sur la croissance en régime sub-picoseconde et cette problématique est fondamentale pour le développement des lasers de puissance.

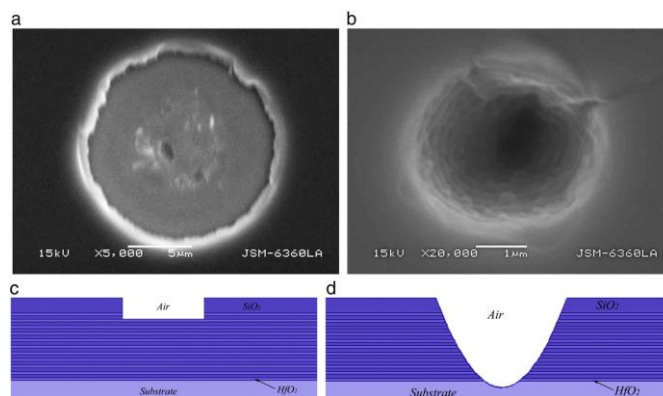


Figure 1-19 : Morphologie typique des dommages initiés sur des miroirs diélectriques en régime nanoseconde : il s'agit (a)&(c) de dommages à fond plat et (b)&(d) de cônes dus à l'éjection d'un nodule [39].

### ***1.B.2.iv Comment évaluer la résistance au flux d'une optique ?***

Tester la tenue au flux laser des surfaces optiques permet de qualifier leurs procédés de fabrication en vue de les améliorer. L'objectif est d'atteindre une résistance laser optimale des surfaces optiques. Ces mesures sont réalisées en laboratoire, sur des bancs optiques destinés aux expériences d'endommagement laser. Le CEA-CESTA s'est pour cela doté d'un parc de bancs d'endommagement laser :

- Quatre bancs permettent de tester les optiques en régime nanoseconde. Les sources laser utilisées sont des lasers Nd:YAG cadencées à 10Hz. Les longueurs d'onde disponibles sont 1064nm, 532nm et 355nm (les deux dernières sont obtenues par conversion de fréquence). Ils sont destinés à la qualification des optiques du LMJ et à l'étude de l'endommagement laser en régime nanoseconde.
- Un banc femtoseconde, développé pour répondre aux problématiques de PETAL. En 2013, le CEA a remplacé une source laser de laboratoire par une nouvelle source développée par Amplitudes Système. Il s'agit d'un laser Yb:CaF<sub>2</sub> cadencé à 10Hz ou 100Hz, qui délivre des impulsions de durée minimale 720fs à 1053nm. Nous décrivons en détail cette source et son implémentation dans le Chapitre 3.

L'ensemble des bancs d'endommagement laser sont conçus sur le même schéma :

- L'énergie du faisceau en sortie de la source laser est contrôlée grâce à un système d'atténuation d'énergie.
- Le faisceau millimétrique délivré par la source laser est focalisé et atteint une dimension submillimétrique : cela permet d'obtenir les densités d'énergie souhaitées sur l'échantillon.
- Ces deux paramètres (dimension du faisceau focalisé et énergie incidente sur l'échantillon) sont enregistrés tir à tir afin de connaître les caractéristiques de l'irradiation.

Classiquement, ces bancs d'endommagement sont utilisés afin de tester des échantillons représentatifs de grands composants et permettent ainsi de valider ou de rejeter un procédé de fabrication. Des systèmes d'observations sont installés afin de détecter le phénomène d'endommagement. Pour les tests d'endommagement, un grand nombre d'illuminations peut être requis, démontrant l'utilité des grandes cadences (relativement à la cadence de tir de PETAL ou du LMJ de 1tir/jour). Les différentes procédures de tests permettant de qualifier la tenue au flux des optiques sont décrites dans le Chapitre 4.

Une fois un procédé qualifié et validé, il peut ensuite être adapté à des composants échelle 1:1.

### ***1.B.2.v Comment se manifeste l'endommagement sur PETAL ?***

A l'instar des bancs d'endommagement, l'observation de dommages laser sub-picoseconde sur PETAL n'est aujourd'hui pas une chose aisée. En effet, cette section est sous vide et l'observation n'est possible qu'à distance, à partir des hublots du caisson de compression. Seule une évaluation grossière du phénomène d'endommagement est possible. Dans la Figure 1-20, on illustre un exemple d'observation d'un miroir endommagé, faite au travers des hublots de la section sous vide de PETAL. Des traces blanches se forment à la surface du composant mais il est très difficile de caractériser de cette façon la nature et la morphologie de l'endommagement.

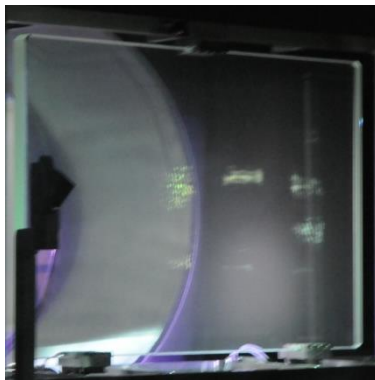


Figure 1-20 : Exemple d'observation de l'endommagement d'un miroir depuis un hublot du caisson de compression de PETAL. Des traces blanches se forment à la surface du composant.

Une observation fine des composants est réalisable à condition de casser le vide et de retirer le composant pour l'observer sur des bancs dédiés. Cette manutention est coûteuse en temps et en ressources humaines et financières. Durant cette thèse, nous avons eu l'opportunité de réaliser cette expérience : des observations seront rapportées dans le Chapitre 5.

### 1.B.3 Quelles solutions pour limiter l'endommagement des optiques ?

#### *1.B.3.i L'exemple du régime nanoseconde.*

La problématique de l'endommagement laser est également rencontrée dans le domaine nanoseconde. Le développement de grandes installations travaillant dans ce régime temporel (telles que le LMJ [2] ou le NIF [1]) ont fortement dynamisé la recherche sur cette thématique [41]. L'endommagement laser en régime nanoseconde dans l'UV est à ce jour le facteur principal limitant la montée en énergie de ce type d'installations. Il augmente le coût d'exploitation de l'installation et limite ses performances. Il est donc primordial d'étudier la problématique de l'endommagement laser afin d'en identifier les causes (par exemple les modulations spatiales ou temporelles des faisceaux et les défauts des optiques) [42, 43] et si possible d'apporter des solutions (amélioration du faisceau et optimisation des procédés de fabrication des composants [42, 44, 45]). Il est également intéressant pour une installation de pouvoir prévoir la durée de vie des composants optiques des chaînes laser et pouvoir estimer et limiter les coûts d'exploitation.

La silice est un matériau dont le comportement sous flux laser est largement étudié en régime nanoseconde [46]. En effet, on la retrouve comme substrat de nombreux composants optiques en transmission tels que des hublots, des lames de phase... Il a été montré que la formation des dommages en régime nanoseconde est majoritairement due à la présence de défauts dans la silice [47, 48]. Il peut s'agir de défauts structuraux dans la silice qui introduisent des niveaux d'énergie supplémentaires à l'intérieur de la bande interdite de cette dernière. Ces défauts structuraux sont par exemple situés près de la surface dans des micro-fractures issues des actions mécaniques lors des procédés de polissage [43]. D'autres défauts ont également été observés dans la silice, tels que des résidus d'abrasifs utilisés lors des étapes de polissage, des rayures ou des bulles de dimension macroscopique. L'énergie nécessaire à l'ionisation de ces défauts est bien plus faible que celle de la silice pure et parfaite [49] et ils favorisent l'endommagement laser en étant des centres privilégiés pour initier un processus de dépôt d'énergie très efficace. Pour prendre en compte le fait que l'endommagement démarre sur des défauts rares localisés en régime nanoseconde, il est préférable d'adopter une approche statistique plutôt qu'une approche déterministe en appliquant une technique dite Rasterscan. La technique Rasterscan [50] consiste à réaliser un balayage

d'une zone centimétrique d'un composant à l'aide d'un faisceau sub-millimétrique à de faibles fluences où la probabilité d'endommagement est de l'ordre de 0,01%. Le but est d'illuminer le maximum de surface afin de révéler les rares défauts qui abaissent la tenue au flux laser d'une optique. Le balayage est généralement réalisé à une fréquence de 10Hz avec un recouvrement entre les sites irradiés. Ces tests réalisés en laboratoire permettent de donner une tendance concernant l'endommagement laser des composants optiques en régime nanoseconde et de qualifier les optiques. Les résultats, exprimés en densités de dommages, sont extrapolés pour quantifier la densité de défauts d'une optique, puisqu'il a été fait l'hypothèse qu'un dommage résulte de la présence d'un défaut.

Au cours de ces dernières années, une attention particulière a été portée à l'amélioration des procédés de fabrication des optiques en se basant sur ces méthodes de test. Les travaux menés ont permis d'obtenir des composants de silice de très bonne qualité avec de rares défauts, comme montré sur la Figure 1-21 [45] reportant l'évolution des densités de dommages pour différents procédés de finition.

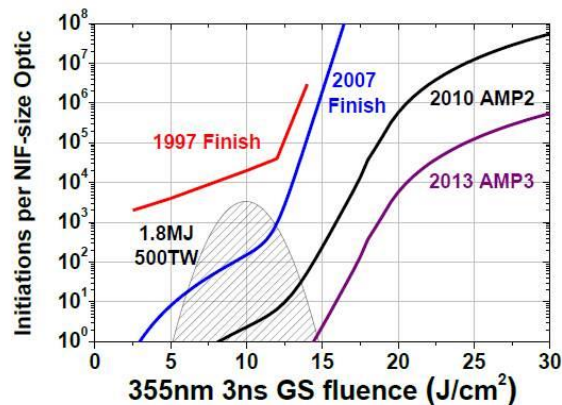


Figure 1-21 : Amélioration de la tenue au flux des optiques en silice via un travail sur les procédés de fabrication [45].

Des études similaires ont également été menées sur les composants réfléchissants tels que les miroirs dans le régime nanoseconde, menant à une amélioration très notable de leur tenue au flux. Dijon et al. ont ainsi atteint des seuils d'endommagement laser de miroirs diélectriques de l'ordre de 100J/cm<sup>2</sup> à 3ns et 1.06 μm grâce à un travail sur les procédés de dépôt permettant une forte diminution des défauts localisés [51]. Les optiques réfléchissantes ainsi réalisées possèdent une tenue au flux supérieure à celle des substrats nus et ne sont plus les points faibles des installations nanosecondes aujourd'hui.

### 1.B.3.ii Une adaptation au régime sub-picoseconde.

#### 1.B.3.ii.a Le rôle des matériaux.

Dans le paragraphe 1.B.2, nous avons décrit la structure électronique des matériaux et nous avons montré qu'ils étaient caractérisés par l'existence d'une bande interdite, dans laquelle aucun état électrique n'était accessible aux électrons. La largeur de cette bande interdite (ou bandgap) est caractéristique de chaque matériau et traduit sa facilité à être ionisé. En effet, lors d'un processus de photoionisation par absorption multiphotonique, le nombre de photons nécessaires à l'ionisation du matériau sera moins élevé pour un matériau présentant une faible bande interdite. Compte tenu des mécanismes d'endommagement fortement non-linéaires mis en jeu dans le régime d'impulsions courtes, cela traduit une forte dépendance entre la fluence seuil d'endommagement d'un matériau et la largeur de sa bande interdite. Mero et al. ont travaillé sur cette problématique, notamment pour des matériaux diélectriques déposés en couches minces selon des techniques similaires (épaisseurs de quelques centaines de nanomètres) [52].

Ils ont établi une loi empirique permettant de décrire l'évolution de la fluence seuil d'endommagement d'un matériau en fonction de son bandgap.

$$F_{th}(E_g, \tau_p) = (c_1 + c_2 E_g) \tau_p^k$$

Équation 1-18 : Relation entre fluence seuil d'endommagement  $F_{th}$  et bandgap  $E_g$  d'un matériau en fonction de la durée d'impulsion  $\tau_p$ . Les valeurs constantes sont  $c_1 = -0,16 \pm 0,02 \text{ J cm}^{-2} \text{ fs}^{-k}$  et  $c_2 = 0,074 \pm 0,004 \text{ J cm}^{-2} \text{ fs}^{-k} \text{ eV}^{-1}$  et  $k = 0,30 \pm 0,03$  [52]

Plus récemment, Gallais et al. ont réalisé une large étude sur la tenue au flux de matériaux diélectriques en fonction de leur bandgap. Quelques résultats sont donnés dans la Figure 1-22. Ils ont notamment étudié le cas des mixtures. Il s'agit d'une combinaison de deux matériaux diélectriques obtenue grâce à une forte maîtrise de la stœchiométrie lors de dépôts de couches minces optiques.

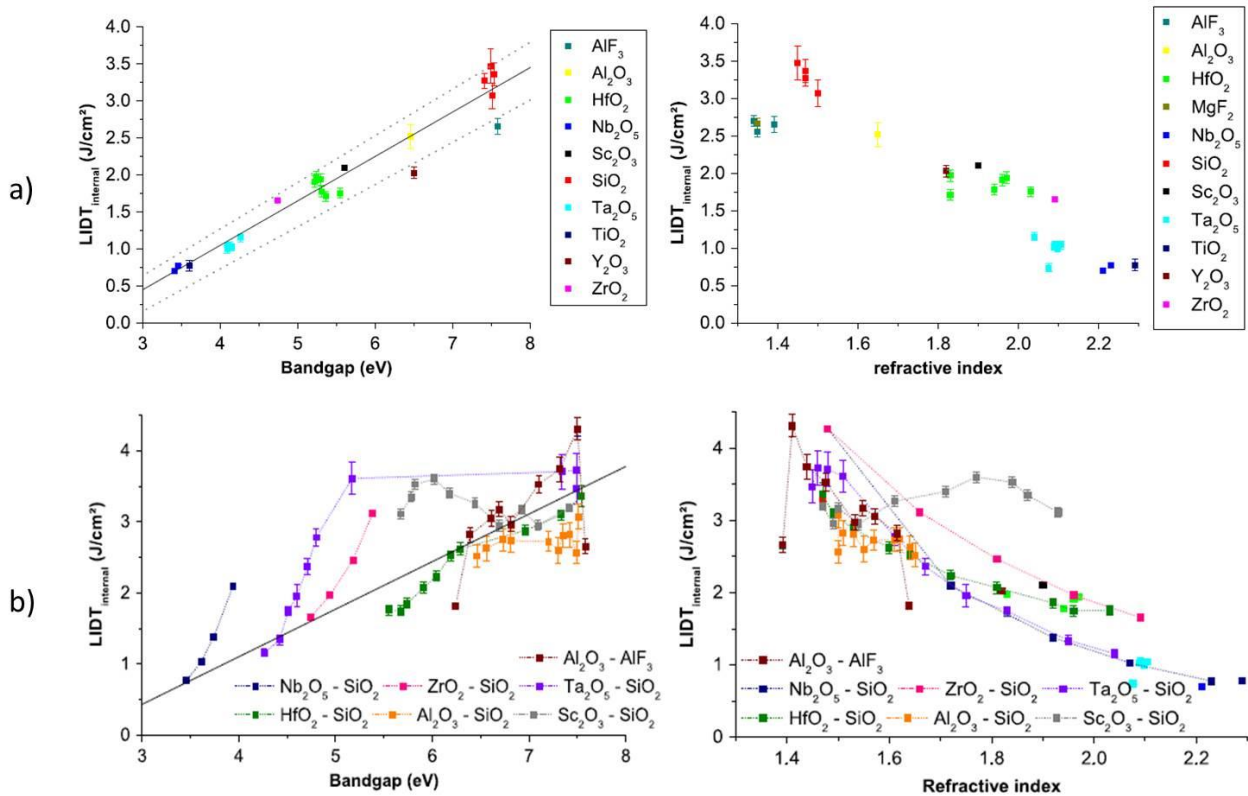


Figure 1-22 : Seuil d'endommagement (une irradiation à 500fs et à 1030nm) des matériaux optiques représenté en fonction de la largeur de la bande interdite et de l'indice de réfraction. (a) Matériaux purs. (b) Mixtures avec des concentrations variables de matériau bas indice [23].

Parmi ces mixtures, on peut remarquer les mixtures à base de Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub> / SiO<sub>2</sub> qui, pour certaines stœchiométries, présentent des propriétés optiques très intéressantes (fort indice de réfraction supérieur à 1,8) et une large bande interdite (forte tenue au flux laser supérieure à 3 J/cm²). Ces nouveaux matériaux peuvent être inclus dans les composants diélectriques réfléchissants utilisés pour les lasers de puissance. Ils ouvrent une nouvelle voie vers l'amélioration de la tenue au flux des optiques dans le régime d'impulsions courtes. Nous nous intéresserons plus particulièrement à ces matériaux dans le Chapitre 2.

### 1.B.3.ii.b Fabrication de composants optiques réfléchissants.

Le développement de nouvelles optiques fonctionnelles en régime d'impulsions courtes repose en majeure partie sur le fait que l'endommagement laser dans ce régime est déterministe, dépendant uniquement des propriétés électroniques des matériaux et répondant à un processus d'ionisation non-linéaire.

Ces optiques sont généralement des empilements de couches minces optiques. Nous reviendrons dans le chapitre suivant sur le fonctionnement de telles structures interférentielles. Des études ont montré une forte corrélation entre le renforcement du champ électrique dans les structures et la résistance au flux laser de ces dernières. Partant de ces résultats, des algorithmes d'optimisation d'empilements interférentiels ont été développés par différentes équipes [53, 54, 55].

De nouvelles structures originales sont également en train d'émerger. On peut citer les structures RISED (Refractive Index StEps Down) et Rugate, développées par le LZH (Laser Zentrum Hannover, laboratoire allemand), qui ont pour vocation d'abaisser le renforcement de champ électrique (miroir RISED) et également d'éliminer les effets d'interface en déposant de façon continue les différents matériaux (miroir Rugate) [56, 57]. Entre un miroir classique et un miroir RISED, des gains d'environ 100% sur la tenue au flux laser ont été mesurés, ouvrant de nouvelles perspectives pour le développement de lasers de puissance. Ces traitements doivent pouvoir être appliqués à de grandes surfaces pour les applications laser telles que PETAL (voir Figure 1-23). Un travail d'adaptation technologique est donc à réaliser.

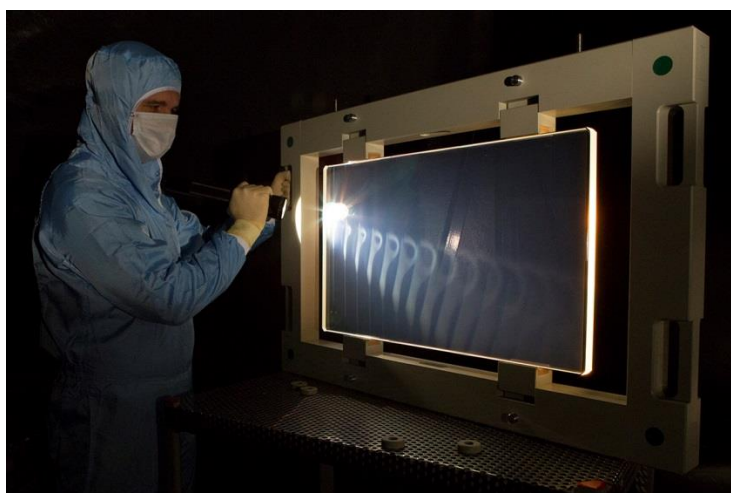


Figure 1-23 : Observation visuelle d'un miroir de taille 60x40cm<sup>2</sup> fonctionnant à une incidence de 45°.

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes attachés au caractère intrinsèque de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes. Un énorme travail a été effectué afin de réduire les densités de défauts sur les optiques. Il a porté sur l'amélioration des substrats et de leur nettoyage, permettant une nette réduction de la densité de défauts [58]. Egalement, des études ont été menées afin d'améliorer la qualité des matériaux déposés sur les substrats, notamment en limitant l'éjection de particules lors des dépôts. En particulier, on peut citer l'utilisation d'une technique de dépôt réactive a permis de nettes améliorations de la qualité des traitements [59].

## Conclusion du Chapitre 1

Dans ce premier chapitre, nous avons présenté le laser PETAL, laser conçu pour délivrer des impulsions très intenses (plusieurs Petawatt) en régime sub-picoseconde. Le principe de génération d'impulsions dans ce régime temporel a été décrit et les différents composants optiques clés permettant d'y arriver ont été ciblés. On a montré que la manipulation d'impulsions intenses était délicate : des phénomènes non-linéaires tels que l'autofocalisation ou l'automodulation de phase peuvent perturber la propagation d'un faisceau laser. Ces considérations seront prises en compte pour le développement d'un banc d'étude, qui sera développé dans le Chapitre 3. Egalement, dans ce régime d'impulsion, l'absorption photonique est contrôlée par des effets non-linéaires. Les principaux mécanismes ayant lieu lors de l'interaction laser-matière sont introduits. Ils contribuent à un processus d'excitation électronique et à la formation d'un plasma d'électrons libres. Les mécanismes menant à l'endommagement de matériaux ont également été décrits.

Les éléments limitant les performances du laser PETAL sont à ce jour les optiques de compression et transport situées en fin de chaîne laser : ils sont illuminés par les plus fortes densités de puissance. Il s'agit des réseaux de compression, des miroirs de transport et également de l'optique de focalisation. Au cours de cette thèse, nous nous sommes intéressés à l'étude de la résistance au flux laser de ces composants optiques dans des conditions d'irradiation proches de celles rencontrées sur PETAL. Le Chapitre 2 qui suit porte sur la conception d'optiques réfléchives destinées aux applications Petawatt. Nous montrerons comment sont conçues ces optiques et les possibles voies d'amélioration. Les chapitres suivants porteront sur le développement de moyens métrologiques permettant de caractériser finement leur résistance au flux laser. Le comportement des optiques en phase d'amorçage et de croissance sera étudié. *In fine*, il s'agit d'apporter des informations complémentaires pouvant aider à l'estimation de la durée de vie des composants optiques et au fonctionnement optimal des lasers de puissances.





## Chapitre 2 Conception d'optiques réfléchives.

Dans l'installation PETAL, miroirs et réseaux sont les deux types de composants optiques permettant la compression de l'impulsion laser, son transport ainsi que sa focalisation. Dans le chapitre précédent, il a été rapporté que l'utilisation de composants métalliques était difficile dans les installations de puissance. Le recours à des matériaux diélectriques est donc indispensable pour atteindre de hautes densités de puissance. Ils sont utilisés au sein d'empilements interférentiels. La structure de cet empilement confère une certaine fonction optique au composant. Les principes de fonctionnement et de fabrication d'empilements interférentiels sont rappelés dans ce chapitre. Durant cette thèse, au sein du CEA et également en collaboration avec l'Institut Fresnel, nous avons défini de nouvelles structures réfléchives pour les applications petawatts. La tenue au flux de ces structures a été mesurée en laboratoire. En parallèle, des expériences menées directement sur le laser PETAL ont permis de confronter ces résultats obtenus en laboratoire au comportement des optiques sur chaîne laser.



## 2.A Présentation des couches minces optiques.

Les traitements couches minces optiques sont généralement obtenus en empilant alternativement des couches nanométriques d'un matériau possédant un indice de réfraction élevé (matériau haut indice) et d'un matériau bas indice. La différence d'indice permet de générer un phénomène d'interférences sur lequel repose le principe des couches minces optiques. Les principales fonctions de transfert que peut réaliser un traitement couches minces sont :

- Traitement antireflet,
- Traitement à haute-réflexivité (typiquement supérieur à 99,9%), dit traitement  $R_{\max}$ ,
- Traitement polariseur,
- Filtre spectral.

Pour décrire un traitement couche mince, trois informations sont importantes et caractérisent la structure de l'empilement, appelée également « design ». Il s'agit :

- Des matériaux utilisés (indices de réfraction).
- De la séquence de l'empilement (nombre de couches déposées et leur ordre de dépôt).
- Des épaisseurs déposées.

### 2.A.1 Principe de fonctionnement d'un empilement multicouche interférentiel.

Un empilement interférentiel est une succession de  $n$  couches. Chaque couche  $j$  a un indice  $n_j$  et une épaisseur  $e_j$ . Un schéma illustratif d'un empilement est donné dans la Figure 2-1. Pour décrire le système interférentiel, il est nécessaire de raisonner en termes d'amplitude du champ électrique et non pas d'intensité. La résolution se fait généralement en considérant une onde harmonique. Comme montré sur la Figure 2-1, le champ électrique  $E_j$  dans la couche  $j$  peut être décrit comme la somme d'une composante progressive  $a_j^+$  et d'une composante rétrograde  $a_j^-$ , tel que  $E_j = a_j^+ + a_j^-$ .

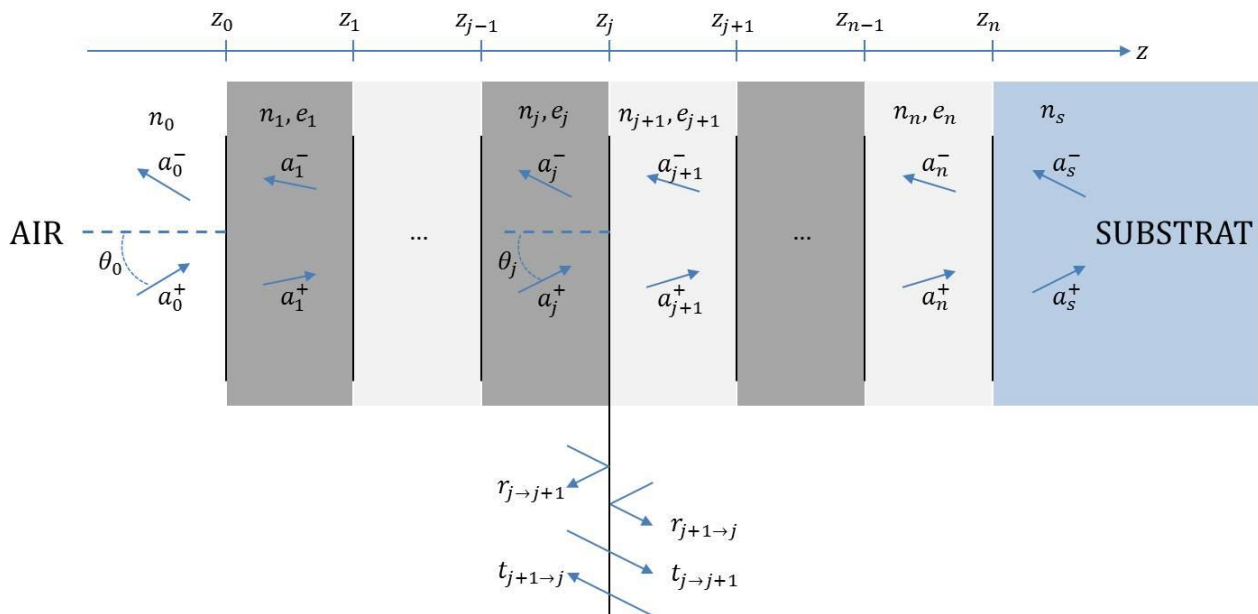


Figure 2-1 : Définition d'un empilement interférentiel. Dans la couche  $j$  d'indice de réfraction  $n_j$  et d'épaisseur physique  $e_j$ , le champ électrique est la somme d'une composante progressive  $a_j^+$  et d'une composante rétrograde  $a_j^-$ . A la traversée d'un dioptré, le champ électrique est réfléchi (respectivement transmis) avec un coefficient de réflexion (transmission) en amplitude noté  $r$  (noté  $t$ ).

Soient  $r_{j \rightarrow j+1}$  ( $t_{j \rightarrow j+1}$ ) le coefficient de réflexion (transmission) de la composante progressive et  $r_{j+1 \rightarrow j}$  ( $t_{j+1 \rightarrow j}$ ) le coefficient de réflexion (transmission) de la composante rétrograde, ces coefficients sont définis par les relations de Fresnel :

$$r_{j \rightarrow j+1} = \frac{N_j - N_{j+1}}{N_j + N_{j+1}}$$

$$t_{j \rightarrow j+1} = \frac{2N_j}{N_j + N_{j+1}}$$

Équation 2-1 : Définition des coefficients de Fresnel.  $N_j$  est appelé l'indice effectif de la couche  $j$ . Il dépend de l'angle d'incidence de l'onde et de la polarisation.  $N_j = n_j \cos \theta_j$  en polarisation S.  $N_j = \frac{n_j}{\cos \theta_j}$  en polarisation P.

Ainsi, à la traversée d'un dioptre situé à une profondeur  $z_j$ , on a :

$$a_{j+1}^+(z_j) = t_{j \rightarrow j+1} \cdot a_j^+(z_j) + r_{j+1 \rightarrow j} \cdot a_{j+1}^-(z_j)$$

$$a_j^-(z_j) = t_{j+1 \rightarrow j} \cdot a_{j+1}^-(z_j) + r_{j \rightarrow j+1} \cdot a_j^+(z_j)$$

Équation 2-2 : Relations à la traversée d'un dioptre situé à une profondeur  $z_j$ .

Soit, sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix} (z_j) = \begin{pmatrix} 1 & -\frac{r_{j+1 \rightarrow j}}{t_{j \rightarrow j+1}} \\ \frac{r_{j \rightarrow j+1}}{t_{j \rightarrow j+1}} & t_{j+1 \rightarrow j} - \frac{r_{j \rightarrow j+1} \cdot r_{j+1 \rightarrow j}}{t_{j \rightarrow j+1}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{j+1}^+ \\ a_{j+1}^- \end{pmatrix} (z_j) = D_j \begin{pmatrix} a_{j+1}^+ \\ a_{j+1}^- \end{pmatrix} (z_j)$$

Équation 2-3 : Définition de  $D_j$ , la matrice de passage d'un dioptre.

Soit une onde se propageant dans le sens progressif à une longueur d'onde  $\lambda$  dans la couche  $j$  située entre  $z_{j-1}$  et  $z_j$ . Cette onde est de la forme :

$$a_j^+(z) = a_j^+ e^{i(\omega t - 2\pi \frac{n_j}{\lambda} \cos \theta_j z)}$$

Équation 2-4 : Onde progressive de longueur d'onde  $\lambda$ , de pulsation  $\omega$  se propageant dans la couche  $j$  à une incidence  $\theta_j$  avec une amplitude maximale  $a_j^+$ .

A la traversée de la couche  $j$ , les amplitudes des ondes progressives et rétrogrades à la longueur d'onde  $\lambda$  s'écrivent :

$$a_j^+(z) = a_j^+(z_j) e^{-2i\pi \frac{n_j \cos \theta_j (z - z_j)}{\lambda}}$$

$$a_j^-(z) = a_j^-(z_j) e^{-2i\pi \frac{n_j \cos \theta_j (z_j - z)}{\lambda}}$$

Équation 2-5 : Amplitudes des ondes progressives et rétrogrades à la traversée de la couche  $j$ , à une profondeur  $z$  située entre  $z_{j-1}$  et  $z_j$ .

A la traversée complète de la couche  $j$  d'épaisseur  $e_j$ , les amplitudes s'expriment sous forme matricielle par :

$$\begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix}(z_{j-1}) = \begin{pmatrix} e^{i2\pi \frac{n_j \cos \theta_j e_j}{\lambda}} & 0 \\ 0 & e^{-i2\pi \frac{n_j \cos \theta_j e_j}{\lambda}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix}(z_j) = C_j \begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix}(z_j)$$

 Équation 2-6 : Définition de  $C_j$ , la matrice de traversée d'une couche.

La propagation d'une onde dans un empilement peut donc être décrite par le produit des matrices  $C$  et  $D$  :

$$\begin{pmatrix} a_0^+ \\ a_0^- \end{pmatrix} = D_0 C_1 D_1 C_2 \dots D_{n-1} C_n D_n \begin{pmatrix} a_s^+ \\ a_s^- \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} a_s^+ \\ a_s^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_s^+ \\ a_s^- \end{pmatrix}$$

 Équation 2-7 : Définition de  $M$ , matrice décrivant l'empilement interférentiel.

Dans le cas où le milieu incident est l'air,  $a_s^- = 0$  et donc on peut définir le coefficient de réflexion en amplitude de l'empilement  $r$  et le coefficient de transmission en amplitude  $t$  :

$$r = \frac{a_0^-}{a_0^+} = \frac{m_{21}}{m_{11}} ; t = \frac{a_s^+}{a_0^+} = \frac{1}{m_{11}}$$

 Équation 2-8 : Définition des coefficients de réflexion et de transmission en amplitude de l'empilement à partir des coefficients de la matrice  $M$ .

Les facteurs de réflexion et de transmission en intensité  $R$  et  $T$  sont donnés par :

$$R = rr^* ; T = \frac{n_s}{n_0} tt^*$$

Équation 2-9 : Coefficients de réflexion et de transmission en intensité.

Le formalisme matriciel permet de calculer rapidement les propriétés optiques d'un composant, en séparant les phénomènes liés aux dioptries et à la traversée des couches. Egalement, de proche en proche, l'Équation 2-3, l'Équation 2-6 et l'Équation 2-7 permettent de déterminer l'amplitude du champ électrique à chaque profondeur de la structure interférentielle.

## 2.A.2 Les techniques de fabrication des couches minces optiques.

Une technique particulièrement utilisée pour la confection d'empilements diélectriques pour les applications laser est la technique PVD (Physical Vapor Deposition). Par un procédé physique (chauffage ou bombardement), un matériau est évaporé ou éjecté et se recondense sur un substrat. L'ensemble du processus est réalisé dans des enceintes à vide, semblables à celles données dans la Figure 2-2, afin d'éviter les effets de turbulence et la réaction avec les molécules de l'atmosphère. Les principales techniques PVD sont décrites par la suite.



Figure 2-2 : Exemples d'installations réalisant des dépôts couches minces PVD sous vide. Ces équipements sont ceux du laboratoire LZH (Laser Zentrum Hannover, Allemagne) et permettent des dépôts IBS, dont la technique est expliquée dans le paragraphe 2.A.2.iv.

### ***2.A.2.i La technique e-beam ou EBD (Electron Beam Deposition, évaporation par canon à électrons) :***

Cette technique est aujourd'hui la principale utilisée par les industriels pour la réalisation de couches minces optiques, notamment pour la production de grandes optiques, telles que celles de PETAL. Cette méthode consiste à évaporer le matériau en le chauffant. Le matériau ainsi évaporé se recondense sous forme d'une couche mince sur un substrat disposé sur une platine en rotation au-dessus de l'évaporateur. Un exemple de platine maintenant les substrats est donné dans la Figure 2-3.

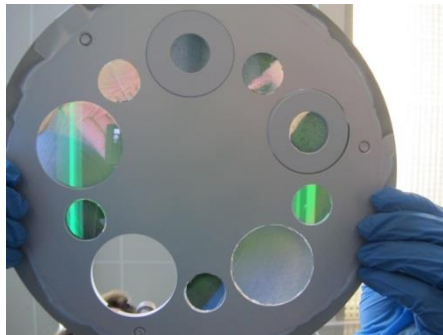


Figure 2-3 : Platine de maintien des substrats dans les chambres de dépôts de couches minces optiques.

Deux solutions permettent de chauffer le matériau. Historiquement, il s'agissait de placer le matériau dans un creuset et de chauffer ce creuset en faisant passer un courant au travers. Cette méthode peut entraîner une forte corrosion du creuset et perturber le dépôt. Egalement la température accessible avec cette technique est limitée par la température de fusion du matériau constituant le creuset. Elle a donc été remplacée par un chauffage direct du matériau réalisé grâce à un faisceau d'électrons accélérés avec une tension de 6 à 10kV et un courant de 0,1-1,5A. Le canon à électrons agit uniquement sur le matériau et laisse intact le creuset. Cette alternative a permis de considérablement améliorer la qualité des traitements, en limitant la contamination par le creuset et grâce à la meilleure maîtrise de la température de chauffe. La mise en place de plusieurs creusets dans l'enceinte de dépôt permet de déposer plusieurs matériaux, sans casser le vide de l'enceinte. Dans la Figure 2-4(a), la méthode de chauffage par canon à électrons est illustrée. Les couches déposées par cette technique ont une faible densité et induit peu de contrainte au substrat. La planéité du composant est peu impactée par cette technique. Cet aspect est

particulièrement recherché pour la fabrication des grands composants optiques réfléchives (typiquement  $40 \times 40 \text{cm}^2$ ), puisqu'il garantit la conservation de la planéité des miroirs. Les couches déposées ont une structure colonnaire et fortement lacunaire [60], comme cela est montré dans la Figure 2-5. Cette structure est due à la faible énergie cinétique des entités déposées. La faible densité est cependant propice à l'emprisonnement des molécules d'eau contenues dans l'air environnant. La présence d'eau a deux principales conséquences :

- l'augmentation de l'absorption des couches déposées dans le domaine infrarouge,
- la modification de la fonction optique des traitements finaux en fonction de l'hygrométrie relative de l'air. Un changement d'hygrométrie peut modifier des indices optiques des matériaux.

Afin de densifier les couches déposées, une source ionique peut être introduite dans la chambre d'évaporation : elle est dirigée sur les substrats en cours de traitement et colinéaire à la plume d'évaporation, comme illustré sur la Figure 2-4(b). Elle fournit l'énergie nécessaire à la densification des couches durant la croissance du traitement. Cette technique est appelée assistance ionique ou IAD (Ion Assisted Deposition) [61]. La densification permet non seulement d'éviter l'absorption d'eau par le traitement mais également de remplacer les contraintes de tension dans le dépôt par des contraintes en compression : les risques de clivage du traitement sont réduits. En revanche, ces contraintes en compression doivent être maîtrisées (chauffage du substrat, pression dans le bâti de dépôt...) afin de conserver la planéité du composant optique. Les ions utilisés peuvent être des ions inertes ou alors des ions oxygènes qui ont l'avantage, dans le cas de dépôt d'oxydes, de maintenir une bonne stœchiométrie du matériau déposé.

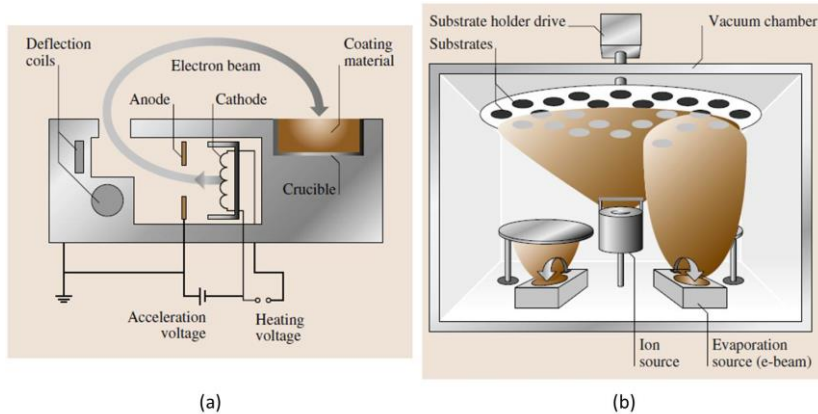


Figure 2-4 : Schéma de fonctionnement de la technique de dépôt par e-beam. (a) Un système anode-cathode permet de produire un faisceau d'électrons accélérés avec une tension de 6-10kV et un courant de 0,1-1,5 A. Des bobines défléchissent le faisceau et le dirigent sur le matériau à chauffer et à évaporer, placé dans un creuset. (b) Plusieurs creusets sont placés à l'intérieur d'une enceinte sous vide. Les substrats à traiter sont placés sur un porte-échantillon situé dans la partie supérieure de l'enceinte. La soucoupe est en rotation afin d'assurer un traitement homogène des différents substrats. En complément, une source ionique est utilisée afin de densifier le dépôt réalisé [62].



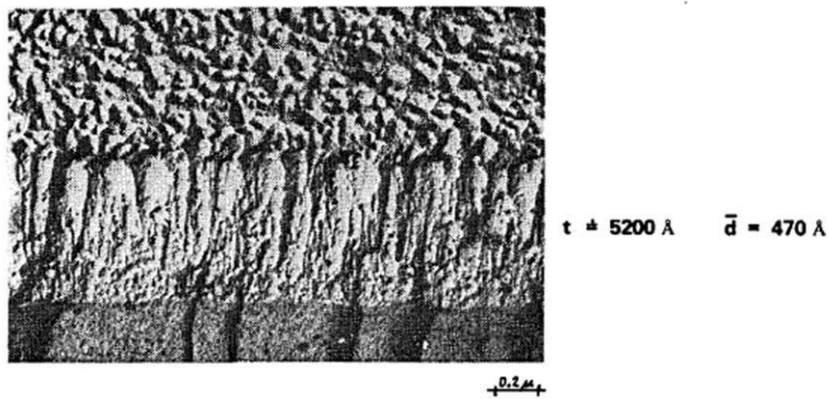


Figure 2-5 : Observation de la structure colonnaire formée lors du dépôt e-beam d'une monocouche de  $\text{TiO}_2$  d'épaisseur 520nm. La taille caractéristique des filaments est de 47nm. [60].

Le chauffage d'un matériau type oxyde peut fortement modifier sa stœchiométrie, provoquant des dépôts absorbants (absorption due à la proportion d'oxygène réduite). Pour pallier la modification des matériaux durant leur dépôt, une pression partielle d'oxygène est ajoutée dans la chambre afin de rétablir la bonne stœchiométrie. Cette technique est appelée évaporation réactive.

### 2.A.2.ii La technique RLVIP (Reactive Low-Voltage Ion Plating, dépôt assisté par plasma) :

Pour cette méthode, le matériau est évaporé suivant la technique e-beam comme illustré sur la Figure 2-6. En complément, un plasma d'argon est dirigé sur le matériau évaporé afin de l'ioniser. Les ions sont ensuite accélérés grâce à un potentiel formé entre la source du matériau et la platine maintenant les substrats [63].

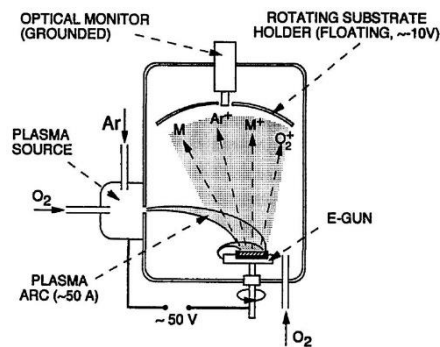


Figure 2-6 : Principe de la technique de dépôt assisté par plasma [63].

### 2.A.2.iii La technique MS (Magnétron Sputtering, dépôt par pulvérisation magnétron) :

Dans les enceintes MS, on trouve un système d'électrode, anode/cathode, correspondant respectivement à la partie où les substrats sont placés et à la cible. Entre les deux, un gaz inerte d'argon est injecté. Une tension de l'ordre du kV est appliquée entre l'anode et la cathode et les ions argons présents dans le gaz sont accélérés vers la cible. Les particules éjectées ont une forte énergie cinétique et se redéposent sur les substrats, formant des couches très denses. Egalement, pendant l'éjection, des électrons secondaires sont générés. Par collision, ils participent à l'ionisation du gaz d'argon. Un champ magnétique est réalisé au moyen d'aimants permanents qui confinent le plasma près de la cible. Les deux avantages de ce confinement sont l'interaction réduite du plasma avec les substrats et une meilleure génération des ions

Argon par impact des atomes avec les électrons secondaires produits par la cible lors de l'éjection des particules. Un schéma de principe de cette technique est donné dans la Figure 2-7. A ce jour, la technique MS est utilisée pour le traitement des grandes optiques [64, 65], types panneaux photovoltaïques ou écran d'affichage, où l'homogénéité du traitement n'est pas critique.

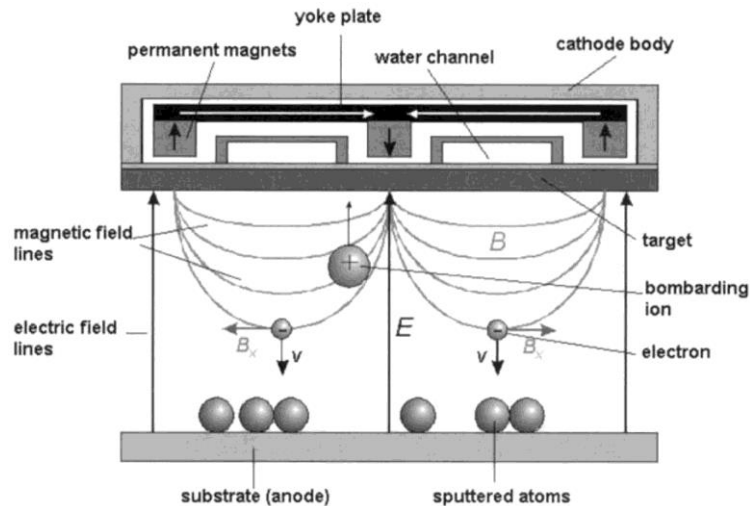


Figure 2-7 : Principe du dépôt par pulvérisation magnétron [64].

#### 2.A.2.iv La technique IBS (Ion-Beam Sputtering, dépôt par pulvérisation ionique) :

Un faisceau d'ions argon accéléré avec une tension de 1kV est dirigé sur un bloc de matériau à déposer, comme schématisé sur la Figure 2-8 : ce bloc est appelé cible. Une plume d'éjection est ainsi générée et se dépose sur les substrats placés sur une platine en rotation. Dans le cas de dépôts d'oxydes, les cibles utilisées peuvent être métalliques et un flux d'oxygène est ajouté dans l'enceinte à vide afin de réaliser un dépôt réactif. En complément, tout comme pour les dépôts par évaporation, il est possible d'ajouter une assistance ionique afin de densifier davantage les couches. Avant le début du dépôt, cette source ionique est généralement utilisée afin de nettoyer le substrat. La technique permet à ce jour de réaliser des traitements couches minces d'excellente qualité grâce à la grande stabilité des équipements utilisés. Toutefois, la vitesse de dépôt par IBS est faible par rapport à la technique e-beam et MS et les surfaces traitables sont limitées : elle est donc réservée à ce jour aux applications où des hautes précisions de dépôts sont recherchées. Egalement, il est à noter que les techniques énergétiques (IBS, MS et RLVIP) permettent certes d'obtenir des couches très denses. Toutefois, les contraintes générées sont difficilement maîtrisables et déforment fortement la surface des composants [66, 67]. Ceci est problématique notamment pour les traitements de grandes surfaces (de dimensions supérieures à 100cm<sup>2</sup>) puisqu'elles perturbent fortement la planéité des surfaces. Aujourd'hui, on utilisera donc préférentiellement les techniques e-beam et IAD pour le traitement des grandes surfaces, générant des contraintes moins importantes et davantage maîtrisables.

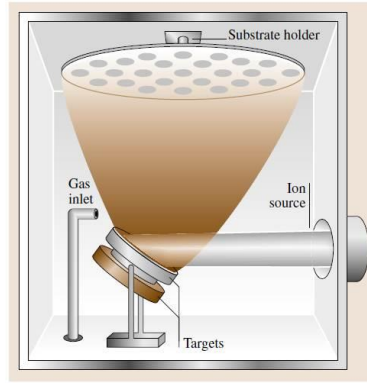


Figure 2-8 : Principe du dépôt par pulvérisation ionique IBS. Un canon à ions est dirigé sur une cible. Les particules éjectées se redéposent sur les substrats, formant une couche mince optique. Les cibles sont modifiables pendant le dépôt afin de réaliser un dépôt multicouche [62].

## 2.B Principes de fonctionnement des optiques réfléchives.

Les réseaux de compression, les miroirs de transport et la parabole de focalisation de PETAL sont conçus à partir de matériaux diélectriques. Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à leur mode de fonctionnement. Ces principes seront appliqués dans la section 2.C à la conception de nouvelles optiques pour les applications petawatts.

### 2.B.1 Les miroirs diélectriques à haute réflectivité.

#### 2.B.1.i *Réflectivité des miroirs diélectriques*

Les miroirs de transport sont utilisés afin d'acheminer le faisceau jusqu'à la chambre d'expérience le long d'un tubage sous vide. Le rôle de la parabole est semblable : elle achemine le faisceau jusqu'au centre de la chambre d'expérience en le focalisant grâce à la forme parabolique de son substrat. L'objectif pour ces miroirs est d'introduire le minimum de perte d'énergie : leur réflectivité doit être proche de 100% à la longueur d'onde du faisceau et pour l'incidence à laquelle ils opèrent. La structure classiquement utilisée pour s'approcher de cette performance est la structure dite quart d'onde, qui est constituée classiquement de l'empilement de paires de deux matériaux d'indices différents : un matériau à haut indice  $n_H$  et un matériau à bas indice  $n_B$ . La formule d'un miroir dont la réponse spectrale est centrée à une longueur d'onde  $\lambda$  est :

$$\text{Air} / \text{H B H B H} \dots \text{H B H} / \text{Substrat}$$

Pour un miroir à N paires, l'écriture [Substrat / (HB)<sup>N</sup> H / Air] permet de résumer cette formule.

Dans cette formule, H et B représentent des couches de matériaux d'indice  $n_H$  et  $n_B$  respectivement et d'épaisseur physique  $e_H$  et  $e_B$ . On appelle épaisseur optique le produit  $ne$ . Dans le cas d'un fonctionnement en incidence normale du miroir, le terme quart d'onde concerne l'épaisseur optique des couches et signifie :

$$n_H e_H = \frac{\lambda}{4}$$

$$n_B e_B = \frac{\lambda}{4}$$

Équation 2-10 : Définition de l'épaisseur optique des couches d'un miroir quart d'onde.

Pour voir l'influence du nombre de paires sur la réponse spectrale d'un miroir quart d'onde, nous avons rapporté dans la Figure 2-9 l'évolution de la réflectivité d'un miroir [Substrat / (HB)<sup>N</sup> H / Air] en fonction de N. Dans cet exemple le matériau H est de l'oxyde d'Hafnium HfO<sub>2</sub> et le matériau B de la silice SiO<sub>2</sub>. La longueur d'onde de centrage de ce miroir est 1053nm et il fonctionne à une incidence normale. L'indice de la couche H à 1053nm est  $n_H = 1,95$  et celui de la couche B est  $n_B = 1,44$ . Nous notons que la réflectivité du miroir augmente avec le nombre de paires jusqu'à atteindre une valeur supérieure à 99,9%. Les flancs de la réponse spectrale deviennent plus raides lorsque N augmente. Egalement, sur la Figure 2-9, nous avons rapporté la réflectivité de l'empilement [Substrat / (MB)<sup>15</sup> M / Air] où M est une couche quart d'onde de TiO<sub>2</sub> dont l'indice est  $n_M = 2,30$  à 1053nm (B est inchangé). Cet exemple illustre le fait que la largeur de la bande spectrale est d'autant plus grande que le rapport entre le haut indice et le bas indice est important.

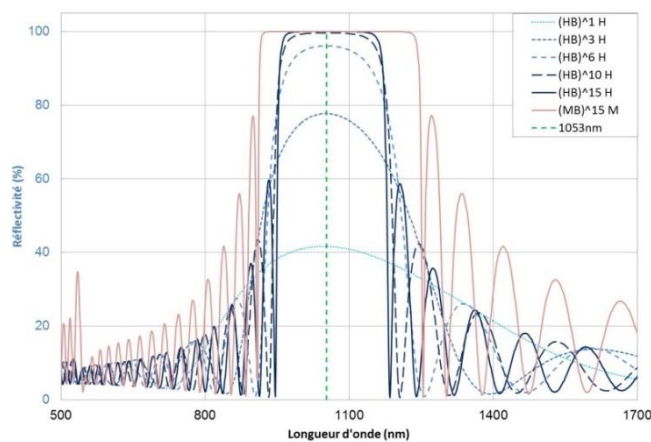


Figure 2-9 : Influence du nombre de paires de couches H et B sur la réflectivité d'un miroir quart d'onde opérant en incidence normale. Influence de l'indice de réfraction du matériau haut indice sur la largeur de la bande spectrale.  $n_B = 1,44$ ,  $n_H = 1,95$  et  $n_M = 2,30$  à 1053nm. Un fort rapport entre le haut indice et le bas indice est favorable à une grande largeur de la bande spectrale (calculs réalisés avec TFCalc)

Pour ce miroir, la réflectivité à la longueur d'onde centrale de ce miroir est donnée analytiquement par la résolution du produit matriciel Équation 2-7 et est sous la forme :

$$R = \left[ \frac{1 - \frac{1}{n_S} n_H^2 \left(\frac{n_H}{n_B}\right)^{2N}}{1 + \frac{1}{n_S} n_H^2 \left(\frac{n_H}{n_B}\right)^{2N}} \right]^2$$

Équation 2-11 : Réflectivité d'un miroir [Substrat / (HB)<sup>N</sup> H / Air]. N est le nombre de paires de couches haut indice et bas indice.  $n_S$  est l'indice du substrat.

Dans la Figure 2-10, nous représentons l'évolution de la réflectivité en fonction du rapport  $\frac{n_H}{n_B}$  pour trois miroirs quart d'onde au nombre de paires croissant. Cette évolution traduit deux résultats classiques :

- Pour un rapport d'indices fixé, plus le nombre de paires utilisées est important, meilleure est la réflectivité. Ce résultat est également illustré dans la Figure 2-9.
- Pour une réflectivité fixée, plus le rapport des indices est grand, moins le nombre de couches nécessaires est important. Ce résultat nous pousse à utiliser des matériaux haut indice avec un fort indice de réfraction. Toutefois, la Figure 1-22 montre qu'en régime sub-picoseconde, la tenue au flux laser d'un matériau est inversement proportionnelle à l'indice de réfraction. Un compromis est donc à faire entre tenue au flux laser, nombre de couches utilisées et largeur de la bande spectrale.

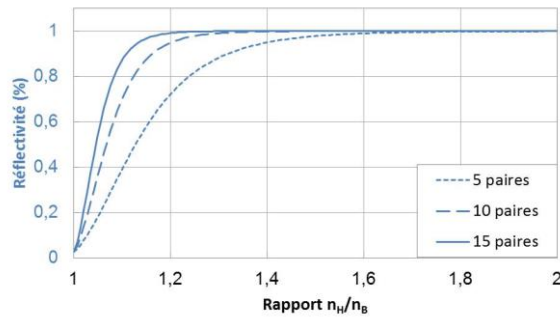


Figure 2-10 : Evolution de la réflectivité  $R$  d'un miroir [Substrat / (HB)<sup>N</sup> H / Air], opérant en incidence normale à sa longueur d'onde de centrage, en fonction du rapport des indices, pour  $N = 5, 10$  et  $15$  paires. Ces évolutions sont calculées grâce à l'Équation 2-11. Pour cet exemple,  $n_B = 1,44$  et  $n_H$  varie.

Pour le matériau bas indice, le candidat qui a classiquement été choisi est la silice. Ce matériau diélectrique est non-absorbant dans le domaine proche-infrarouge, possède un indice faible par rapport aux autres diélectriques et une bonne tenue au flux [23]. Il a également l'avantage d'être bon marché.

Pour le matériau haut indice, le  $Ta_2O_5$  et le  $TiO_2$  sont de bons candidats (voir Figure 1-22). Ils sont largement utilisés dans la conception de miroirs à haute réflectivité, donnant un rapport  $\frac{n_H}{n_B}$  élevé. Toutefois, leur résistance au flux laser est faible. Pour les lasers de puissance, le  $HfO_2$  a été privilégié puisque :

- Il a une tenue au flux environ 2 fois plus élevée que le  $Ta_2O_5$  et le  $TiO_2$  [23].
- Couplé à la silice, le rapport  $\frac{n_H}{n_B}$  est suffisant pour obtenir une réflectivité supérieure à 99,9% avec un nombre raisonnable de couches (environ 30).
- Couplé à la silice, la largeur spectrale des miroirs est supérieure à 100nm, ce qui est suffisant pour réfléchir des impulsions dont la largeur des spectres est de quelques nanomètres.

Les exemples précédents concernent des miroirs quarts d'onde opérant à incidence normale. En incidence oblique, les différences de chemins optiques introduites par la structure interférentielle sont modifiées.

Soient deux couches haut indice et bas indice quarts d'onde à  $\lambda$  en incidence normale. Leur définition est donnée par l'Équation 2-10. Soit  $\theta_0$  l'angle d'incidence dans l'air d'indice  $n_0$ . L'angle de propagation  $\theta_B$  et  $\theta_H$  dans les différentes couches B et H est donné par Snell-Descartes par  $n_0 \sin \theta_0 = n_B \sin \theta_B = n_H \sin \theta_H$ . Un calcul classique de différence de marche dans des couches minces permet de donner les différences de chemin optique imposées par les couches minces d'épaisseurs  $e_H$  et  $e_B$  et d'indices  $n_H$  et  $n_B$  et les épaisseurs optiques des couches [7] :

$$n_H e_H \cos \theta_H = \frac{\lambda}{4} \cos \theta_H = \frac{\lambda_H}{4} \quad \text{et} \quad n_B e_B \cos \theta_B = \frac{\lambda}{4} \cos \theta_B = \frac{\lambda_B}{4}$$

Équation 2-12 : Définition de l'épaisseur optique de couches minces en incidence oblique et introduction de la notion quart d'onde en incidence oblique.

A partir de l'Équation 2-12, on voit qu'un miroir initialement quart d'onde à une incidence normale devient quart d'onde à une longueur d'onde plus faible lorsque  $\theta_0$  augmente (et donc  $\theta_H$  et  $\theta_B$  augmentent). Ce phénomène est illustré pour la polarisation S dans la Figure 2-11, montrant un décalage de la bande spectrale vers les courtes longueurs d'onde pour un angle d'incidence croissant. Le même phénomène est observé en polarisation P.

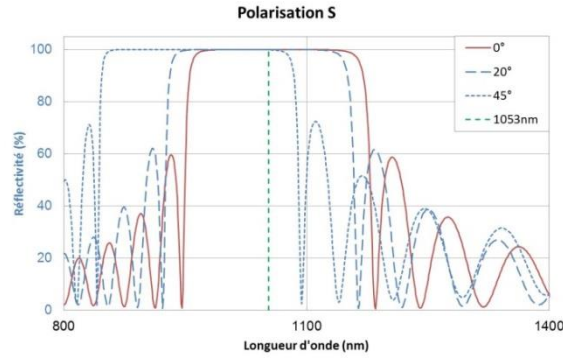


Figure 2-11 : Influence de l'angle d'incidence sur la réponse spectrale d'un miroir quart d'onde (HB)<sup>15</sup>H conçu pour fonctionner à une incidence normale et centré à 1053nm. On représente la réflectivité en polarisation S pour 3 angles d'incidence différents : un décalage de la réponse spectrale vers les courtes longueurs d'onde est observé. Il est à noter que, malgré le décalage, ce miroir reste réfléchissant pour une incidence de 45°.

Ces couches d'épaisseur optique  $n_H e_H \cos \theta_H$  et  $n_B e_B \cos \theta_B$  sont donc quart d'onde à  $\lambda_H$  et  $\lambda_B$  respectivement. L'utilisation de ces couches dans un empilement fonctionnant à l'incidence  $\theta_0$  donne un miroir centré à la longueur d'onde  $\lambda'$ , moyenne de  $\lambda_H$  et  $\lambda_B$ . L'optimisation de la réflectivité d'un miroir fonctionnant à l'incidence  $\theta_0$  se fait en choisissant :

$$n_H e_H \cos \theta_H = \frac{\lambda'}{4} \quad \text{et} \quad n_B e_B \cos \theta_B = \frac{\lambda'}{4}$$

Soit

$$e_H = \frac{\lambda'}{4n_H \cos \theta_H} \quad \text{et} \quad e_B = \frac{\lambda'}{4n_B \cos \theta_B}$$

Équation 2-13 : Définition des épaisseurs physiques  $e_H$  et  $e_B$  d'un empilement type quart d'onde à haute réflectivité centré à  $\lambda'$ , fonctionnant à une incidence  $\theta_0$  telle que  $n_0 \sin \theta_0 = n_B \sin \theta_B = n_H \sin \theta_H$ .

Ce choix d'épaisseur physique sera le point de départ pour le développement d'optiques réfléchives présentées dans la suite de ce chapitre.

L'ensemble des calculs de réponses spectrales des empilements interférentiels peut être réalisé grâce au formalisme matriciel présenté dans le paragraphe 2.A.1. Durant cette thèse, nous avons utilisé le logiciel TFCalc [68], qui utilise ce formalisme, afin de calculer les réponses spectrales d'empilement.

### 2.B.1.ii Champ électrique dans un miroir diélectrique

Les calculs matriciels présentés dans le paragraphe 2.A.1 donnent également accès à la distribution du champ électrique à chaque profondeur de l'empilement. Le logiciel TFCalc [68] inclut également cette fonction et permet de calculer, pour une longueur d'onde et un angle d'incidence, la distribution du champ électrique. Plus exactement, il donne le facteur de surintensification du champ électrique (Electric Field Intensity, EFI), défini dans l'Équation 2-14, en fonction de la position dans l'empilement.

$$EFI = \left| \frac{E}{E_0} \right|^2$$

Équation 2-14 : Définition de l'EFI, facteur de surintensification du champ électrique.  $E$  est le champ électrique dans l'empilement et  $E_0$  le champ incident.

Le résultat donné TFCalc est une représentation 1D de l'EFI. Un exemple est présenté dans la Figure 2-12, nous rapportons les distributions du champ électrique dans les deux cas de polarisation S et P, calculées dans un miroir diélectrique  $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$  qui opèrent à  $45^\circ$ . La définition de l'empilement est [Substrat /  $(\text{HB})^{15}$  H 2B / Air]. Ce miroir a la particularité de posséder une couche protectrice 2B. Cette couche demi-onde est neutre optiquement. En d'autres termes, l'empilement [Substrat /  $(\text{HB})^{15}$  H / Air] possède la même réponse spectrale que l'empilement [Substrat /  $(\text{HB})^{15}$  H / Air]. Cette couche de silice sert à protéger la couche d'oxyde d'hafnium, mécaniquement plus fragile. Concernant la distribution du champ électrique, on peut tout d'abord constater que dans les deux cas de polarisation S et P, l'EFI est important dans la première couche puis s'atténue en pénétrant dans l'empilement : ce sont les premières couches qui interagissent avec le champ incident et participent à la réflectivité de l'empilement. On peut également constater la discontinuité du champ électrique en polarisation P : elle découle de la continuité de la composante tangentielle du champ électrique à une interface entre deux matériaux [7].

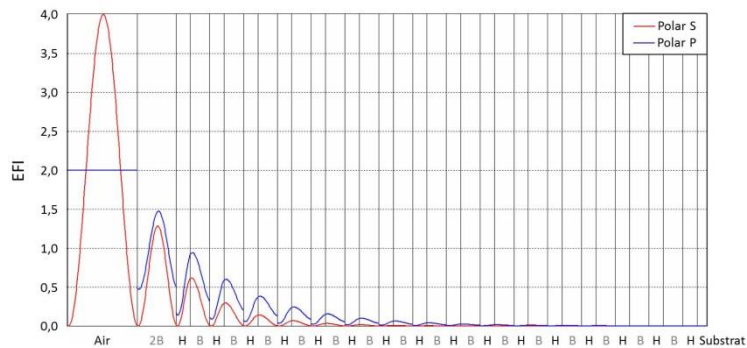


Figure 2-12 : Représentation 1D de l'EFI dans un miroir diélectrique opérant pour une incidence de  $45^\circ$  et une longueur d'onde de 1030nm. Une surintensification importante a lieu dans les deux cas de polarisation au milieu de la couche supérieure du miroir. La seconde surintensification a lieu à l'interface entre les 2 couches H et B suivantes. Le calcul a été réalisé grâce au logiciel TFCalc® [68].

La connaissance du champ électrique dans un empilement est fondamentale, en particulier pour son lien avec la résistance au flux laser. Ce lien sera discuté dans le paragraphe 2.C.1.

## 2.B.2 Description des réseaux diélectriques en réflexion.

### 2.B.2.i Fonctionnement des réseaux

L'utilité des réseaux de diffraction pour les lasers de puissance a été introduite dans le Chapitre 1. Ils servent dans les systèmes CPA à étirer et comprimer les impulsions laser. Les réseaux sont des éléments optiques périodiques dispersifs. La représentation d'un réseau de diffraction fonctionnant en réflexion est donnée dans la Figure 2-13. Cette figure permet d'illustrer la notion d'ordre de diffraction  $m$  et de pas du réseau  $d$ .

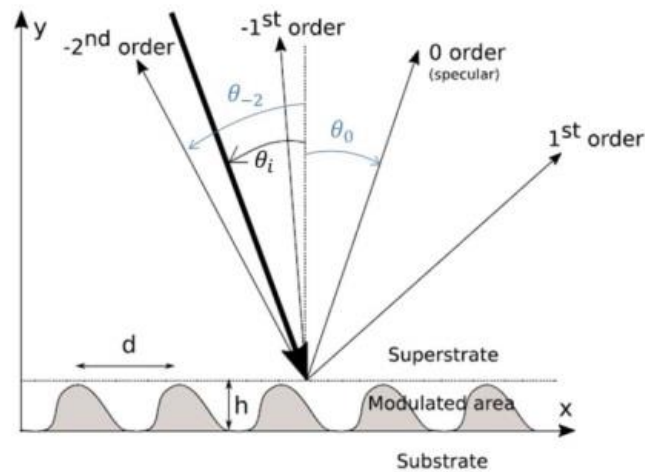


Figure 2-13 : Schéma de principe d'un réseau de diffraction en réflexion. Un faisceau de longueur d'onde  $\lambda$  illumine la surface périodique de l'optique à une incidence  $\theta_i$ . L'ordre de diffraction  $m$  est réfléchi à un angle  $\theta_m$ . Le pas  $d$  est appelé également période du réseau. La profondeur de la modulation  $h$  ou profondeur de gravure du réseau est aussi rapportée sur cette figure [69].

A la rencontre d'un réseau, la lumière incidente se propage selon des directions données par la loi des réseaux. Cette loi, donnée dans l'Équation 2-15, traduit l'effet dispersif d'un réseau puisque l'angle de diffraction dépend de la longueur d'onde  $\lambda$  quand  $m \neq 0$  (le cas  $m = 0$  correspond à la réflexion spéculaire). Seuls les ordres respectant la loi des réseaux peuvent se propager, les autres sont dits évanescents.

$$\sin \theta_m + \sin \theta_i = \frac{m\lambda}{d}$$

Équation 2-15 : Loi des réseaux. Pour un angle d'incidence  $\theta_i$ , l'angle de diffraction  $\theta_m$  de l'ordre  $m \neq 0$  dépend de la longueur d'onde  $\lambda$  et du pas  $d$  du réseau.

A l'avènement de la technique CPA, les premiers réseaux sont des réseaux métalliques (classiquement en or puisque ce métal possède une très bonne réflectivité dans le domaine infrarouge). Ces réseaux sont conçus afin d'avoir une efficacité de diffraction optimisée pour un certain ordre. Cet ordre est sélectionné grâce à un choix judicieux du pas du réseau et du profil de la gravure. Ces réseaux sont dits blazés pour un ordre [70]. D'un point de vue tenue au flux laser, les réseaux métalliques présentent une faible résistance, intrinsèque à la nature du matériau utilisé. Des fluences seuil d'endommagement typiques de l'ordre de  $0,4 \text{ J/cm}^2$  ont été mesurées sur des réseaux or à  $1053 \text{ nm}$  et  $600 \text{ fs}$  [71]. L'utilisation de réseaux métalliques a donc limité la montée en puissance des lasers. En 1991, Svakhin et al. ont proposé une nouvelle structure de réseaux diffractifs à base de matériaux diélectriques [72]. Il s'agit d'un miroir diélectrique sur lequel une gravure de la couche supérieure est réalisée. Ce concept permet de s'affranchir des pertes dues à l'absorption des métaux et donc de s'approcher d'une efficacité de diffraction de 100%. Ces réseaux sont appelés MLD (MultiLayer Dielectric). La résistance au flux laser des matériaux diélectriques étant plus grande que celle des métaux, les réseaux MLD sont susceptibles de présenter une meilleure tenue au flux que leurs confrères métalliques. Néanmoins, on a constaté une nette augmentation de la résistance au flux laser entre un réseau or  $1740 \text{ traits/mm}$  et un réseau MLD  $1740 \text{ traits/mm}$  [73]. Ils ont tous les deux été testés à une incidence de  $72,5^\circ$  et une polarisation P et leur tenue au flux respective est  $0,67 \text{ J/cm}^2$  et  $2,1 \text{ J/cm}^2$  à  $1053 \text{ nm}$  et  $500 \text{ fs}$  : un gain d'un facteur supérieur à 2 sur la résistance au flux laser est obtenu avec l'utilisation d'une structure diélectrique. Par la suite, nous allons nous intéresser plus en détails à ce type de réseaux.



### 2.B.2.ii Méthode de calcul des propriétés d'un réseau.

Afin de calculer les efficacités de diffraction d'un réseau ainsi que la répartition du champ électrique dans un réseau, plusieurs techniques existent. Basées sur la résolution des équations de Maxwell, on peut citer : la méthode différentielle, la méthode par éléments finis ou encore la méthode FDTD (Finite-Difference Time-Domain). Dans la suite de ce chapitre, nous allons nous intéresser plus particulièrement aux deux premières méthodes.

La méthode différentielle consiste à résoudre le champ électrique total grâce à une décomposition en série de Fourier. En effet, dans le cas d'un réseau, il est possible d'écrire la permittivité  $\varepsilon$  du milieu comme une fonction périodique, de période égale au pas du réseau  $d$ . Cette périodicité de la permittivité permet d'exprimer le champ total dans le réseau comme une fonction pseudo-périodique selon la variable spatiale  $x$  (voir convention d'écriture sur la Figure 2-13) [55]. Le champ électrique peut donc être décomposé en série de Fourier, avec une infinité de coefficients de Fourier dépendant uniquement de la variable  $y$ . La détermination de ces coefficients de Fourier permet de résoudre le champ électrique. Une résolution numérique du champ suppose de tronquer la série de Fourier, en gardant un nombre fini de coefficients. Ensuite, le temps de résolution dépend de la taille de la troncature : le nombre de coefficients de Fourier choisi doit être suffisant pour que la méthode converge en un temps raisonnable [74]. Durant cette thèse, un algorithme de résolution du champ électrique et de calcul des efficacités de diffraction a été utilisé à l'Institut Fresnel. Il a été développé par Nicolas Bonod [75] et appliqué aux réseaux de diffraction diélectriques à la géométrie simple [73]. Dans la Figure 2-14, on représente la géométrie des réseaux évalués par la méthode différentielle. Les différents paramètres de calcul sont rapportés : ils concernent à la fois les propriétés de la structure interférentielle réfléchive (épaisseurs physiques des couches haut indice et bas indice, notées respectivement  $h_H$  et  $h_B$ ) et les paramètres du réseau (pas du réseau  $d$ , largeur à mi-hauteur des piliers  $c_{1/2}$ , angle au sommet des piliers  $\theta$ , épaisseur de la couche à graver  $H$  et profondeur de la gravure  $h$ ).

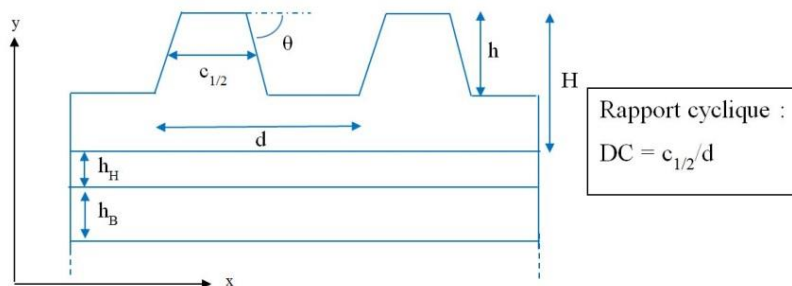


Figure 2-14 : Schéma d'un réseau diélectrique tel que paramétré dans la méthode différentielle. Sur cette figure,  $H$  représente l'épaisseur de la couche à graver,  $h$  la profondeur de la gravure,  $d$  le pas du réseau,  $c_{1/2}$  la largeur à mi-hauteur du motif gravé,  $\theta$  la pente du créneau,  $h_H$  et  $h_B$  respectivement les épaisseurs des couches des matériaux haut indice et bas indice qui constituent l'empilement réfléchive. Le rapport cyclique  $DC$  est calculé à partir de  $c_{1/2}$  et  $d$ .

Dans l'installation PETAL, les réseaux sont blazés pour l'ordre de diffraction réfléchi -1 et fonctionnent à un angle proche de Littrow [70], ce qui permet d'obtenir la meilleure compacité du système. Egalement, de très fortes efficacités de diffraction peuvent être atteintes proche de l'angle de Littrow [69]. Partant de cette considération et afin d'obtenir le pouvoir dispersif nécessaire au système de compression, l'angle d'incidence sur les réseaux de compression situés dans la section sous vide est de  $77,2^\circ$  et la polarisation est S. L'angle réfléchi est  $64^\circ$  : il correspond à l'angle réfléchi de l'ordre -1 d'un réseau de période 1780 traits/mm. Le pas du réseau  $d$  étant fixé, cela permet d'introduire la notion de rapport cyclique (Duty Cycle, DC) qui dépend uniquement de la largeur à mi-hauteur de la gravure. Il est défini comme le rapport entre la

largeur à mi-hauteur des piliers et le pas du réseau. La méthode différentielle est une méthode de calcul rapide qui nous a permis de réaliser une analyse paramétrique étendue.

Afin de disposer au CEA/CESTA d'un outil numérique pour la conception de réseau, nous avons développé en parallèle un modèle à partir du logiciel COMSOL [76]. Il utilise le module « Radio-Frequency » proposé par COMSOL pour résoudre les équations de Maxwell et ainsi de calculer via la méthode de calcul par éléments finis la distribution du champ électrique dans une structure et les efficacités diffractées. Pour ce modèle, la géométrie de la structure diffractive est implémentée, comme illustré dans la Figure 2-15. On représente également sur cette figure le vecteur d'onde de l'onde plane incidente.

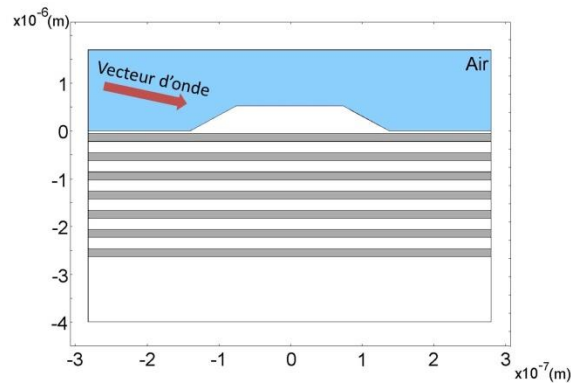


Figure 2-15 : Définition de la géométrie d'un réseau, implémentée dans COMSOL. L'onde plane illumine le motif à une incidence de  $77,2^\circ$ .

Des conditions de périodicité sont appliquées sur les bords latéraux de la géométrie. La résolution du champ électrique est faite pour un champ polarisé S. Un pré requis nécessaire pour la validation de notre modèle a été de l'appliquer au calcul de la répartition du champ électrique dans une structure non modulée, i.e. un miroir et de vérifier sa concordance avec les simulations 1D réalisées avec TFCalc<sup>®</sup>. Pour le même miroir que celui considéré dans la Figure 2-12, des calculs 2D de la distribution du champ électrique dans les deux polarisations S et P sont effectuées avec le modèle COMSOL. La comparaison d'une coupe 1D du résultat obtenu pour chaque polarisation avec les résultats TFCalc est donnée dans la Figure 2-16.

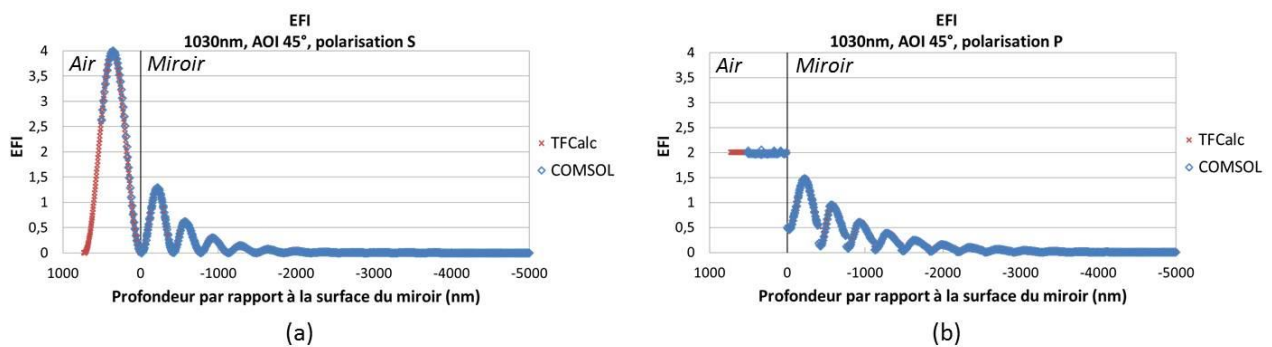


Figure 2-16 : Comparaison d'un calcul d'EFI réalisé sur le miroir de la Figure 2-12, avec COMSOL (coupe 1D d'un résultat 2D) et avec TFCalc (a) en polarisation S et (b) en polarisation P. L'angle d'incidence de l'onde lumineuse est de  $45^\circ$  et sa longueur d'onde est 1030nm. Dans les deux cas de polarisation, une différence inférieure à 1% a été observée entre les 10 premiers maxima locaux.

Une différence inférieure à 1% a été observée entre les 10 premiers maxima locaux calculés avec COMSOL<sup>®</sup> et TFCalc<sup>®</sup>. Pour ce calcul initial, COMSOL est en accord avec des logiciels de calcul matriciel type TFCalc<sup>®</sup>. Cette information de base est primordiale pour faire évoluer la modélisation numérique réalisée avec COMSOL pour étudier l'effet d'une modulation de la surface du miroir sur le champ électrique.

Enfin, une deuxième étape permettant de valider notre modèle COMSOL a été de comparer la répartition du champ électrique calculée avec la méthode différentielle et avec le modèle COMSOL. Nous avons effectué cette comparaison pour 10 structures diffractives différentes. Une différence sur la valeur maximale de l'EFI de 0,6% a été constatée. Egalement, nous relevons une différence de 0,1% sur les efficacités de diffraction de l'ordre -1. Un exemple de cartographies de champs électriques calculées pour la même structure avec les 2 méthodes est donné dans la Figure 2-17. La distribution est calculée pour un champ incident à un angle de  $77,2^\circ$ , une longueur d'onde de 1053nm et une polarisation S. Il est à noter que les surintensifications maximales du champ électrique dans les structures se produisent dans les piliers du réseau.

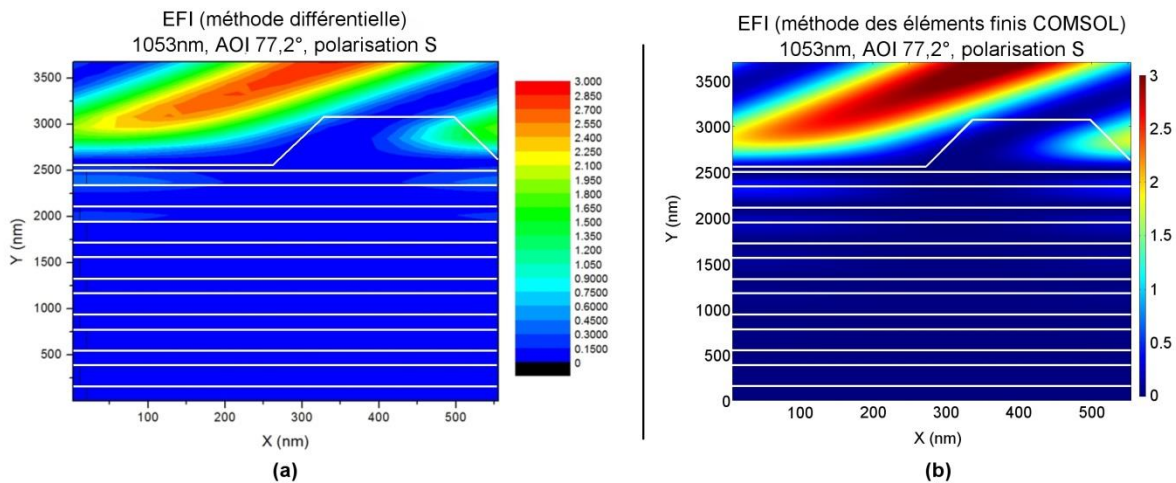


Figure 2-17 : Cartographies de l'EFI dans un réseau de diffraction déterminées (a) avec la méthode différentielle et (b) avec le modèle COMSOL. Elles sont calculées pour une longueur d'onde de 1053nm et un angle d'incidence (Angle Of Incidence, AOI) de  $77,2^\circ$  en polarisation S. L'EFI maximal dans la structure réseau mesuré par la méthode différentielle est de 1,6004 et par le modèle COMSOL de 1,6027, soit un écart de 0,1%. Ce maximum est localisé dans le pilier du réseau. De la même façon, les efficacités diffractées dans l'ordre -1 sont respectivement 0,98044 et 0,9799, soit un écart de 0,05%.

Nous disposons donc de deux outils permettant le calcul des efficacités de diffraction et de distribution du champ électrique dans les réseaux diffractifs. Ces outils seront utilisés dans la section 2.C pour concevoir de nouvelles optiques diffractives.

### 2.B.2.iii Technique de fabrication d'un réseau diffractif

Les structures définies numériquement sont ensuite réalisées. Deux étapes sont nécessaires : la première étape consiste à déposer le miroir diélectrique et la deuxième étape consiste à graver la structure diffractive. Il est à noter que pour PETAL, la taille des optiques de compression est très grande (420mm x 450mm) : peu d'industriels sont en mesure de réaliser ces étapes de fabrication. Les dépôts pour l'installation PETAL sont réalisés par des techniques E-beam+IAD et E-beam. La technique de gravure repose sur principe schématisé dans la Figure 2-18(a) : une couche de résine photosensible est déposée sur le miroir à graver. Cette résine permet d'enregistrer la figure d'interférence obtenue grâce à l'interférence entre deux faisceaux collimatés. La configuration permettant d'obtenir cette figure d'interférence varie suivant les fournisseurs. L'enregistrement du motif de gravure peut être réalisé en une seule fois sur l'ensemble du composant, ou il peut être fait en sous-pupille en balayant le composant avec le système de génération d'interférence.

La révélation de cette résine permet de retirer chimiquement les zones insolées, laissant périodiquement sur le composant des zones recouvertes par de la résine. Une étape de gravure ionique est réalisée durant

laquelle les zones découvertes sont ablatées. Une dernière étape de nettoyage par acidage permet de retirer les résidus de résine. Dans la Figure 2-18(b), on rapporte les observations réalisées au microscope électronique à balayage (MEB) d'un réseau de diffraction PETAL gravé.

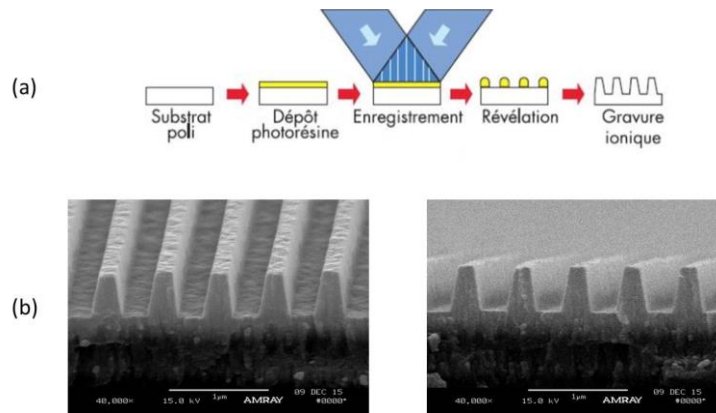


Figure 2-18 : (a) Principe de fabrication d'un réseau diélectrique. (b) Observations au MEB d'un réseau de compression de PETAL réalisé par PGL.

## 2.C Application à la conception d'optiques réfléchives.

### 2.C.1 Lien entre le champ électrique et l'endommagement laser.

Dans le paragraphe 2.B, nous avons introduit plusieurs outils permettant de calculer les coefficients de réflexion (cas des miroirs) et de diffraction (cas des réseaux). Ces outils sont très utiles pour comprendre les performances d'un système optique. Egalement ils permettent de calculer des facteurs de renforcement du champ électrique. Bien que ces facteurs ne donnent pas d'informations complémentaires sur la réponse des systèmes optiques, il a toutefois été montré qu'ils sont fortement corrélés à leur fluence seuil d'endommagement. Jasapara et al. ont été les premiers en 2001 à montrer ce lien entre fluence seuil d'endommagement et intensité du champ électrique [77]. On retrouve ensuite ce lien dans de nombreuses études dans lesquelles il est notamment utilisé pour introduire la notion de fluence seuil d'endommagement intrinsèque des matériaux [78, 23, 79, 80]. Elle est particulièrement utile pour qualifier à une longueur d'onde donnée un matériau déposé en couche mince indépendamment de l'épaisseur déposée, et des conditions expérimentales de test (angles d'incidence et polarisation). Dans le paragraphe 2.A.1, il a été montré que la répartition du champ électrique dans une structure en couches minces est dépendante de ces trois derniers paramètres. Un exemple d'EFI déterminé dans une monocouche d'oxyde de scandium  $Sc_2O_3$  (d'indice 1,9) est donné dans la Figure 2-19. Sur cette figure, on aperçoit un renforcement du champ électrique à l'interface entre le substrat de silice et la monocouche : il est dû à la différence d'indices entre ces deux matériaux.

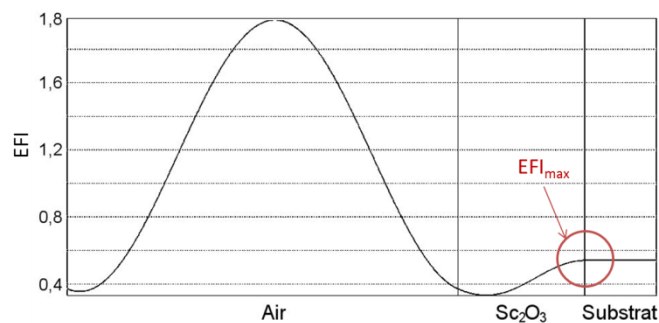


Figure 2-19 : EFI dans une monocouche de  $Sc_2O_3$ , déterminé à 1053nm pour un angle d'incidence de  $15^\circ$ , et en polarisation S.

Expérimentalement, la fluence dans le faisceau laser est mesurée dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau. La fluence intrinsèque d'un matériau est définie en corrigeant cette mesure expérimentale de la fluence seuil d'endommagement du matériau déposé en monocouche par la surintensification maximale du champ électrique dans la structure monocouche :

$$F_{int} = EFI_{max} \times F_{exp}$$

Équation 2-16 : Définition de la fluence intrinsèque d'un matériau.

Considérons que ces matériaux ainsi qualifiés soient inclus dans une structure interférentielle. La modulation du champ électrique découle de la définition de l'empilement. Une répartition classique du champ électrique dans un miroir quart d'onde constitué de deux matériaux H et B est donnée dans la Figure 2-12. Soient  $EFI_{max,H}$  et  $EFI_{max,B}$  les surintensifications maximales du champ électrique respectivement dans le matériau H et B pour un angle d'incidence et une polarisation. Soient  $F_{int,H}$  et  $F_{int,B}$  les fluences intrinsèques respectives des matériaux H et B. En inversant l'Équation 2-16, il est alors possible de définir la fluence seuil théorique d'endommagement laser du miroir à l'angle d'incidence et la polarisation considérée. Il s'agit de la fluence seuil d'endommagement telle qu'elle devrait être mesurée expérimentalement [81] :

$$F_{théorique} = \min\left(\frac{F_{int,H}}{EFI_{max,H}}, \frac{F_{int,B}}{EFI_{max,B}}\right)$$

Équation 2-17 : Définition de la fluence seuil d'endommagement théorique d'un empilement conçu avec un matériau haut-indice H et bas-indice B.

Une très bonne corrélation entre les fluences seuil d'endommagement théorique et expérimentale est obtenue [81, 82, 83].

Dans le cas des réseaux, un comportement similaire a été observé avec une grande dépendance de la tenue au flux des réseaux en fonction du renforcement maximal du champ électrique dans leur structure. Cette surintensification a lieu dans le pilier, du côté opposé à l'onde incidente. Néauport et al. ont montré un lien entre la fluence seuil d'endommagement des réseaux  $F_{th}$  et la surintensification maximale  $E_{max}$  du champ électrique dans la structure diffractive [73]. Ce lien a également été complété par l'observation d'une corrélation entre la localisation de la surintensification maximale dans le pilier et la morphologie de l'endommagement [84, 85] : les dommages sur réseaux apparaissent au niveau des piliers, du même côté que la surintensification, comme cela est illustré sur la Figure 2-20.

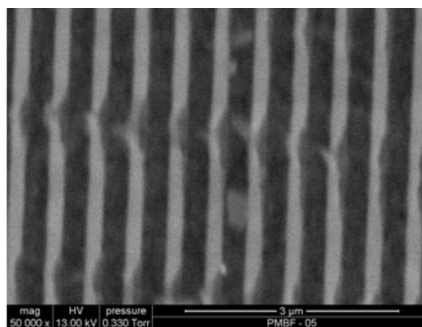


Figure 2-20 : Observation MEB de l'endommagement laser d'un réseau diélectrique  $HfO_2/SiO_2$  avec la couche supérieure de  $SiO_2$  gravée à 1780 traits/mm. Il a été testé au flux laser à 1057nm et 500fs. Le sens de parcours du faisceau est de gauche à droite. Les dommages apparaissent au niveau des piliers, du même côté que la surintensification.

Dans le cas des miroirs diélectriques comme dans celui des réseaux diélectriques, leur résistance au flux laser est fortement dépendante du renforcement du champ électrique. Dans la suite de ce chapitre, nous sommes partis de ce postulat afin de concevoir de nouvelles optiques pour les applications Petawatts.

### 2.C.2 Conception et test d'un nouveau miroir pour les applications Petawatts.

En utilisant le principe de minimisation du champ électrique afin d'améliorer la tenue au flux des composants optiques, un premier travail a été fait pour définir un nouveau miroir pour PETAL. Cette étude a été réalisée en collaboration avec Eric L., du Laboratoire de Procédés Optiques (CEA CESTA/DLP). Il s'agit d'un miroir de transport, fonctionnant à une incidence de  $45^\circ$  et en polarisation S. Sur la Figure 1-8, il s'agit du premier miroir situé après les réseaux de compression sous vide. Ce miroir peut pivoter. Il a la spécificité d'être hautement réfléchissant ( $>99,9\%$ ) lors de son utilisation à  $45^\circ$  et de transmettre à plus de 90% le faisceau lors de son utilisation à  $0^\circ$ . A cette incidence normale, il laisse passer le faisceau pour analyse sur un banc dédié aux diagnostics.

Les matériaux haut indice et bas indice utilisés pour ce miroir sont respectivement  $\text{HfO}_2$  et  $\text{SiO}_2$ . Un empilement spécifique avait été réalisé en 2013 pour ce miroir afin de garantir une transmission supérieure à 90% à  $0^\circ$ . Nous l'appellerons dans la suite MT5-V1. Lors de la montée en puissance de PETAL, cet empilement a été endommagé. Une observation du traitement a été réalisée après un tir PETAL à 570 J, reportée dans la Figure 2-21.

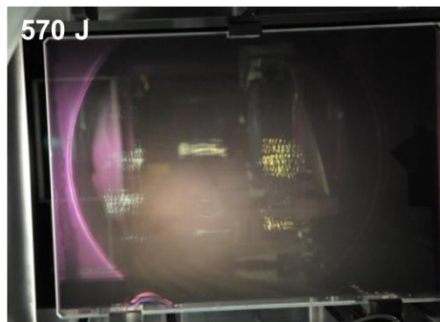


Figure 2-21 : Observation de l'endommagement du miroir PETAL MT5-V1 fonctionnant nominalement en polarisation S à  $45^\circ$ .

Une analyse de la distribution du champ électrique dans ce traitement est donnée la Figure 2-22 pour la polarisation S et un angle d'incidence de  $45^\circ$ . Il montre un fort renforcement du champ électrique dans les 2 premières couches B et H avec un EFI maximal dans la première couche B de 1,37 et un EFI dans la deuxième couche H de 1,14. Des mesures de tenue au flux laser ont été réalisées sur des monocouches représentatives des matériaux utilisés dans ce miroir. Elles donnent une fluence seuil d'endommagement intrinsèque de  $2,25 \text{ J/cm}^2$  pour le  $\text{HfO}_2$  et  $2,96 \text{ J/cm}^2$  pour le  $\text{SiO}_2$ . En utilisant l'Équation 2-17, cela conduirait à un seuil théorique en conditions opérationnelles de  $2 \text{ J/cm}^2$ , la couche limitante étant la seconde couche H.

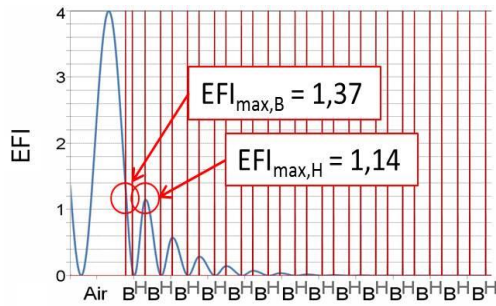


Figure 2-22 : EFI dans la structure MT5-V1, pour une longueur d'onde de 1053nm, une polarisation S et un angle d'incidence de 45°.

Expérimentalement, un échantillon de diamètre 50mm représentatif de ce miroir a été testé sur un banc d'endommagement laser qui sera décrit dans le prochain chapitre. La fluence seuil d'endommagement de ce composant a été mesurée à  $1,68 \pm 0,2 \text{ J/cm}^2$ . L'ensemble des résultats est reporté dans le Tableau 2-1.

Nous avons donc travaillé sur un nouvel empilement  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  permettant d'accroître la résistance au flux laser de ce miroir. Le nouveau miroir conçu est le miroir MT5-V2 : il s'agit d'un empilement classique miroir quart-d'onde  $(\text{HB})^{15} \text{H}$  dont la longueur d'onde de centrage a légèrement été décalée pour garantir une transmission supérieure à 90% lors de son utilisation à une incidence normale. La réponse spectrale de ce miroir est donnée dans la Figure 2-23. On voit notamment sur cette figure que le décalage spectral du miroir pour une incidence de 45° n'influe pas sur l'efficacité de réflexion du miroir, la bande spectrale du miroir contenant encore la longueur d'onde 1053nm.

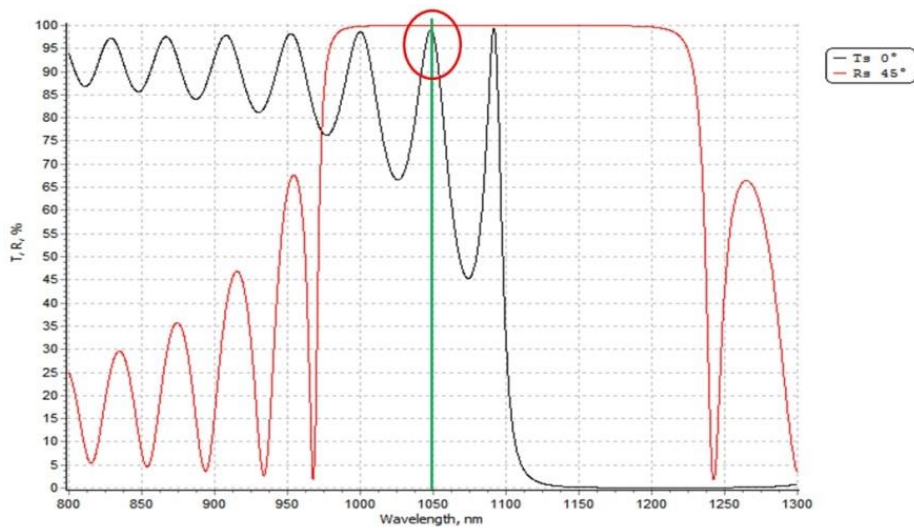


Figure 2-23 : Réponse spectrale en réflexion à 45° et en transmission à 0° du miroir MT5-V2. L'efficacité de réflexion à 1053nm est supérieure à 99,9%.

Parallèlement, la répartition du champ électrique a été calculée et est donnée dans la Figure 2-24.

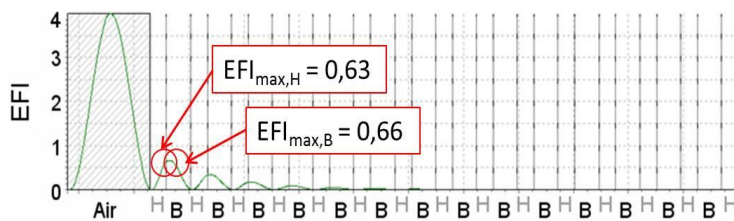


Figure 2-24 : EFI dans la structure MT5-V2, pour une longueur d'onde de 1053nm, une polarisation S et un angle d'incidence de 45°.

Lors de la fabrication de ce nouveau miroir, des échantillons de miroirs ainsi que de monocouches représentatives de matériaux utilisés ont été réalisés. Les tests de tenue au flux laser des monocouches donnent des fluences seuil intrinsèques du  $\text{HfO}_2$  de  $2,36 \text{ J/cm}^2$  et du  $\text{SiO}_2$  de  $3,15 \text{ J/cm}^2$ . Il est à noter que la tenue au flux des matériaux en monocouches a été améliorée entre ces deux versions de miroirs. En utilisant également l'Équation 2-17 et en considérant les EFI donnés par la Figure 2-24, cela conduirait à un seuil théorique en conditions opérationnelles de  $3,7 \text{ J/cm}^2$ . Expérimentalement, la fluence seuil d'endommagement de l'échantillon du miroir MT5-V2 a été mesurée à  $3,73 \pm 0,4 \text{ J/cm}^2$ , soit un gain d'un facteur 2 par rapport au MT5-V1.

	Fluences seuil mesurées	Fluences seuil théoriques calculées
<b>Monocouche <math>\text{HfO}_2</math> dans MT5-V1 (fluence intrinsèque)</b>	$2,25 \text{ J/cm}^2$	
<b>Monocouche <math>\text{SiO}_2</math> dans MT5-V1 (fluence intrinsèque)</b>	$2,96 \text{ J/cm}^2$	
<b>Miroir MT5-V1 (AOI <math>45^\circ</math>, polarisation S)</b>	$1,68 \pm 0,2 \text{ J/cm}^2$	$2,0 \pm 0,2 \text{ J/cm}^2$
<b>Monocouche <math>\text{HfO}_2</math> dans MT5-V2 (fluence intrinsèque)</b>	$2,36 \text{ J/cm}^2$	
<b>Monocouche <math>\text{SiO}_2</math> dans MT5-V2 (fluence intrinsèque)</b>	$3,15 \text{ J/cm}^2$	
<b>Miroir MT5-V2 (AOI <math>45^\circ</math>, polarisation S)</b>	$3,73 \pm 0,4 \text{ J/cm}^2$	$3,7 \pm 0,4 \text{ J/cm}^2$

Tableau 2-1 : Seuil de tenue au flux des miroirs MT5-V1 et MT5-V2 et de leurs monocouches correspondantes.

Ce nouveau miroir a été installé durant cette thèse dans le caisson de compression de PETAL, en lieu et place de l'ancien MT5-V1. Après un tir laser réalisé à  $1030 \text{ J}$ , aucun dommage n'a été observé sur le composant : un gain d'un facteur supérieur à 2 de la résistance au flux laser est donc également constaté sur l'installation.

Ce constat permet de valider nos prédictions des fluences seuil théoriques calculées avec l'Équation 2-17. Également, il montre la très bonne cohérence entre les mesures réalisées en laboratoire, sur le banc développé au cours de la thèse et que nous allons décrire dans le chapitre suivant, et les observations réalisées sur chaîne laser.

### 2.C.3 Vers la conception de réseaux de compression.

Une autre étude, plus prospective, a été menée pour concevoir des réseaux de compression à partir de matériaux haut-indice originaux encore peu utilisés dans le domaine des lasers de puissance : il s'agit de l'oxyde de Scandium  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  et d'une mixture  $\text{Sc}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ . La tenue au flux laser de ces matériaux est donnée dans la Figure 1-22 (points gris sur la figure en bas à droite). Mende et al. ont étudié en détail ces matériaux [79]. Ils présentent deux principaux avantages :

- Ils ont des indices de réfraction élevés, et se présentent donc comme d'excellents substituts au  $\text{HfO}_2$  classiquement utilisé (d'indice 1,95). L'indice de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  est 1,92 à  $1053\text{nm}$ . L'indice d'une mixture  $76\%\text{Sc}_2\text{O}_3/24\%\text{SiO}_2$  est 1,77 à  $1053\text{nm}$ .
- Leur seuil d'endommagement laser est du même ordre de grandeur que  $\text{SiO}_2$  (environ  $3 \text{ J/cm}^2$ ), plus élevé que  $\text{HfO}_2$  (environ  $2 \text{ J/cm}^2$ ). Il est à noter que la mixture possède une fluence seuil d'endommagement plus élevée que le matériau pur. Il sera donc intéressant de substituer une



couche de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  par une couche de mixture dans la partie supérieure de l'empilement où le renforcement du champ électrique est fort : le fond de l'empilement garantira les propriétés réfléchives et la couche de mixture permettra d'améliorer la tenue au flux de du composant.

Les inconvénients de ces deux matériaux sont :

- Le coût des cibles utilisées pour réaliser les dépôts, qui est très élevé par rapport à un matériau comme  $\text{HfO}_2$  davantage démocratisé pour la fabrication des optiques de puissance.
- Les difficultés de dépôt : une grande homogénéité lors du dépôt des mixtures nécessite l'utilisation d'une technique énergétique, telle que l'IBS [86]. Or, cette technique n'est pas encore adaptée au traitement d'optiques de grandes dimensions.

Nous avons donc utilisé ces deux matériaux haut-indice pour définir des empilements avec le  $\text{SiO}_2$  comme matériau bas-indice. Les optimisations ont porté sur les empilements et les structures à graver. Elles ont été réalisées grâce aux méthodes différentielles et par éléments finis présentées dans le paragraphe 2.B.2.ii.

Les spécifications des réseaux à concevoir au vu de leur utilisation sur l'installation PETAL sont les suivantes :

- L'angle d'incidence sur ces réseaux est de  $77,2^\circ$
- La période des réseaux est 1780 traits/mm.
- Ils doivent avoir une efficacité de diffraction dans l'ordre réfléchi -1 supérieure à 95%.
- Une réduction de l'EFI maximal dans la structure diffractive est favorable à une amélioration de la résistance au flux laser du composant.
- Un nombre de couches minimal, permettant de limiter les effets de clivage dus aux contraintes lors du passage sous vide. Pour limiter le nombre de couches dans l'empilement tout en gardant une bonne réfléchivité, il est possible de réaliser des structures dites MMLD (Mixed Metal Dielectric Gratings) [87].

Une étude paramétrique similaire à celle menée par Bonod et al. [55] et Néauport et al. [87] a été réalisée pour définir quatre structures. La première structure est réalisée à partir de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  (H) et de  $\text{SiO}_2$  (B). La seconde structure est réalisée à partir de  $\text{Sc}_2\text{O}_3$  (H), de  $\text{SiO}_2$  (B) et de mixture 76% $\text{Sc}_2\text{O}_3$  / 24% $\text{SiO}_2$  (M). Deux autres structures reprennent la même composition mais en réduisant les nombres de couches grâce à l'introduction d'une couche d'or au fond des empilements. Pour ces deux dernières structures MMLD, l'or est choisi pour sa grande réfléchivité dans le domaine infra-rouge. Son épaisseur est choisie supérieure à l'épaisseur de peau du matériau métallique : une épaisseur de 150nm répond à ce critère. Les empilements initiaux avant optimisation ont été choisis quarts d'onde pour un angle d'incidence de  $70,6^\circ$ . Cet angle correspond à l'angle moyen entre les deux ordres transmis par la structure diffractive : l'ordre 0 et l'ordre -1. En d'autres termes, après diffraction par la structure périodique, l'angle de pénétration moyen dans la structure réfléchive est de  $70,6^\circ$ . Les épaisseurs physiques des couches pour cet angle sont données par l'Équation 2-13. Les structures ainsi définies sont :

- Structure 1 : Substrat / (HB)<sup>6</sup> H 2B / Air
- Structure 2 : Substrat / (HB)<sup>6</sup> M 2B / Air
- Structure 3 : Substrat / Or / (HB)<sup>3</sup> M 2B / Air
- Structure 4 : Substrat / Or / (HB)<sup>3</sup> H 2B / Air

Une première étape d'optimisation a été réalisée à l'Institut Fresnel via la méthode différentielle afin d'optimiser les épaisseurs déposées ainsi que la structure théorique des gravures. Pour cette étape, les paramètres  $\theta$ ,  $H - h$  et  $DC$  (voir Figure 2-14) ont été maintenus fixes respectivement à  $83^\circ$ , 60nm et 0,4. Il s'agit des paramètres optimaux garantis par l'industriel PGL (*Plymouth Grating Laboratory*, Etats-Unis) chargé de la réalisation des gravures. D'un point de vue technologique, il est difficile d'avoir un angle  $\theta > 83^\circ$ , une épaisseur résiduelle plus fine que 60nm et un DC plus petit que 0,35. Les choix de ces paramètres est en accord avec les simulations de Bonod et al. qui montrent que :

- un faible DC (inférieur à 0,4) et une faible couche résiduelle de silice non gravée sont favorables à une faible surintensification du champ électrique
- un DC supérieur à 0,4 est favorable à une forte efficacité de diffraction dans l'ordre -1.

Les paramètres fixés sont donc un bon compromis pour optimiser des structures réduisant l'EFI et favorisant une bonne efficacité de diffraction. Les dépôts ont ensuite été réalisés par le laboratoire LZH grâce à un procédé IBS sur des substrats de silice de diamètre 50,4mm. Une étape préalable spécifique aux dépôts MMLD a consisté à déposer une fine couche d'accroche en Chrome d'environ 20nm, la couche d'or ayant une faible adhérence avec la silice nue. Les mesures des réponses spectrales des différents composants ont été comparées à leur réponse spectrale théorique et ont permis de valider la conformité des traitements. Les détails de ces structures sont donnés dans le Tableau 2-2.

<b>Désignation</b>	<b>Détail de l'empilement</b>
Structure 1	(157H 227B)^6 157H 578B
Structure 2	(164H 237B)^6 164M 578B
Structure 3	150Au (142H 264B)^3 142M 670B
Structure 4	150Au (143H 262B)^3 143H 640B

Tableau 2-2 : Définition des empilements déposés par le LZH. Les lettres H, B et M désignent respectivement le  $Sc_2O_3$ , le  $SiO_2$  et la mixture. On indique devant ces matériaux les épaisseurs déposées en nanomètre.

Une seconde étape d'optimisation a été réalisée grâce à la méthode des éléments finis : elle consiste à optimiser les paramètres de gravure, i.e. la profondeur de gravure de la couche supérieure ainsi que le rapport cyclique DC. Un exemple d'optimisation est donné dans la Figure 2-25. Dans le Tableau 2-3, nous donnons les caractéristiques des différentes structures réfractives définies.

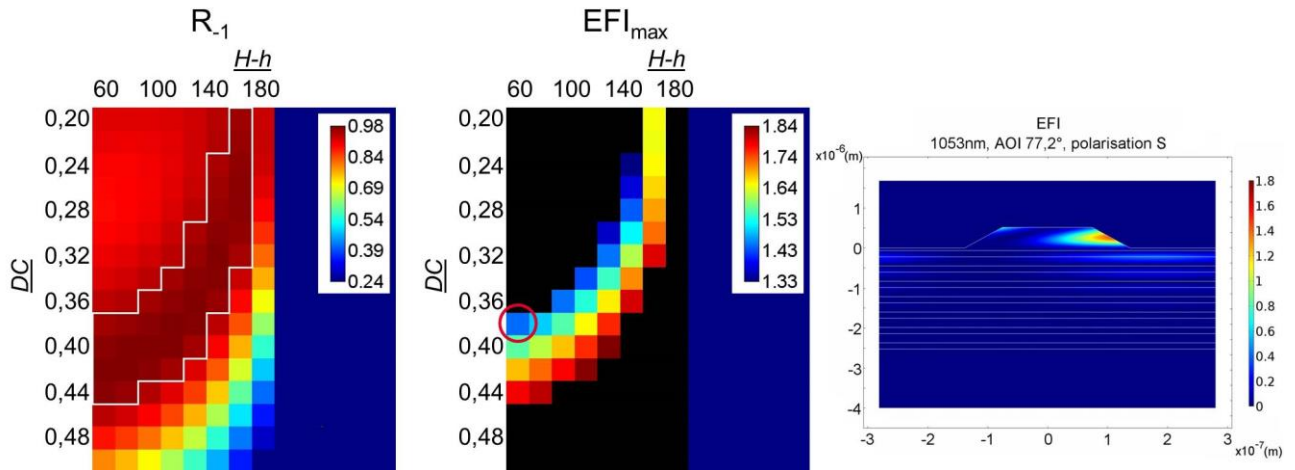


Figure 2-25 : Etape d'optimisation de la gravure appliquée de la structure 1. Sur le graphe de gauche, on représente les efficacités diffractées dans l'ordre réfléchi -1 ( $R^{-1}$ ) en fonction de l'épaisseur de la couche résiduelle  $H - h$  et de DC. Seules les combinaisons donnant  $R^{-1} > 95\%$  sont retenues. Sur le graphe du milieu, on représente l'EFI maximal (localisé dans le pilier du réseau), en fonction de  $H - h$  et de DC. Un  $DC < 0,35$  est difficile à réaliser. En prenant en compte cette limite, la structure donnant la plus faible surintensification est cerclée. Dans le graphe de droite, on représente l'EFI dans l'ensemble de la structure. Pour plus de lisibilité, l'EFI dans l'air est fixé à 0. Pour cette combinaison,  $R^{-1} = 0,9574$  et  $EFI_{max} = 1,448$ .

Désignation	Détail de l'empilement	DC	H-h	$R^{-1}$	$EFI_{max}$
Structure 1	(157H 227B)^6 157H 578B	0,38	60nm	0,9574	1,448
Structure 2	(164H 237B)^6 164M 578B	0,38	60nm	0,9581	1,496
Structure 3	150Au (142H 264B)^3 142M 670B	0,40	100nm	0,9529	1,675
Structure 4	150Au (143H 262B)^3 143H 640B	0,38	100nm	0,9547	1,558

Tableau 2-3 : Caractéristiques des 4 structures diffractives définies.

A l'heure où nous rédigeons ce manuscrit, les échantillons gravés n'ont pas été reçus et n'ont donc pas pu être caractérisés finement. Après ces étapes d'ingénierie, les études portant sur le bienfait du  $Sc_2O_3$  et de sa mixture seront donc à poursuivre.

## Conclusion du Chapitre 2

Le principe de fonctionnement des empilements interférentiels réfléchives réalisés à partir de matériaux diélectriques ainsi que les principales techniques de dépôt ont été présentés dans ce chapitre. Les empilements couches minces sont particulièrement intéressants pour les applications lasers de puissance puisqu'ils présentent une résistance au flux laser beaucoup plus élevée que les structures métalliques classiques.

Le lien entre le renforcement du champ électrique dans les empilements diélectriques et leur résistance au flux laser des optiques a fait aujourd'hui l'objet de nombreuses études. Dans le cadre du développement d'optiques pour les applications petawatts, nous nous sommes appuyés sur ces travaux pour définir de nouvelles structures réfléchissantes : miroirs et réseaux de compression. L'optimisation d'un composant miroir a permis d'apporter un gain d'un facteur 2 sur sa résistance au flux laser lors de son utilisation sur l'installation PETAL. Des tests menés en laboratoire sur des échantillons représentatifs ont également mis en évidence ce gain d'un facteur 2. Ainsi, à travers l'optimisation d'un composant miroir, la cohérence entre les tests menés sur des échantillons en laboratoire et la résistance sur chaîne des composants échelle 1:1 a été illustrée. Ces cas simples confirment la pertinence des études qui vont être décrites dans la suite de cette thèse. Également, ce lien entre champ électrique et endommagement laser sera réutilisé à de nombreuses reprises dans le Chapitre 4 et le Chapitre 5.

Un outil de calcul de la répartition du champ électrique dans les structures diffractives a également été développé. Il utilise la méthode des éléments finis proposée par COMSOL. Les résultats de calculs réalisés avec cet outil ont été comparés à ceux obtenus grâce à une méthode différentielle, développée par Nicolas Bonod de l'Institut Fresnel. Les deux méthodes sont en très bon accord. Elles ont permis d'amorcer une étude prospective portant sur la définition de nouveaux composants diffractifs réalisés à partir d'oxyde de scandium et de mixtures : 4 structures diffractives ont été définies. Cette étude est à poursuivre.



## Chapitre 3 Moyens expérimentaux mis en œuvre pour la mesure de l'endommagement laser : développement du banc DERIC.

Dans ce chapitre, nous présentons le dispositif expérimental sur lequel les expériences d'endommagement laser ont été réalisées durant cette thèse : il s'agit du banc d'endommagement DERIC, acronyme pour Dispositif d'Endommagement laser en Régime Impulsions Courtes. Une description de la métrologie qui a été mise en place sur cette installation est faite. Dans le Chapitre 1, nous avons vu qu'en régime sub-picoseconde et femtoseconde, l'endommagement laser dépendait fortement du profil temporel des impulsions ainsi que de la densité d'énergie des impulsions. Afin de pouvoir interpréter correctement les résultats des expériences d'endommagement, ces deux paramètres sont à connaître précisément. La première partie traite de la mise en place du banc d'endommagement et de la mesure des densités d'énergie. La deuxième partie de ce chapitre porte davantage sur la caractérisation temporelle des impulsions laser. L'utilisation de deux diagnostics développés par le CEA/CESTA/DLP va permettre de caractériser finement le profil temporel des impulsions.



### 3.A Le banc d'endommagement laser DERIC.

Le banc DERIC utilise une source laser développée par la société Amplitude Systèmes (Pessac, 33) qui délivre des impulsions sub-picosecondes à 1053nm. Elle a été développée spécifiquement pour répondre aux attentes de PETAL concernant la mesure de la résistance au flux laser de ses optiques. Une étape de cette thèse a été de développer le banc DERIC et de mettre en place toute l'instrumentation permettant des mesures de tenues au flux laser de composants optiques. Sans aucune mise en forme spatiale, les densités d'énergie maximales accessibles seraient de l'ordre de  $0,04\text{J}/\text{cm}^2$ . Or le but de ce banc est de réaliser des tests d'endommagement laser sur des composants optiques destinés aux applications Petawatts. Dans le Chapitre 1, nous avons rapporté des spécifications pour la tenue au flux laser des optiques de PETAL de l'ordre de  $4\text{J}/\text{cm}^2$  pour des impulsions de 500fs. Afin de garantir la faisabilité de ces expériences, nous avons choisi de développer le banc DERIC pour qu'il puisse tester les composants sur une gamme plus étendue de fluences, allant de 0 jusqu'à  $8\text{J}/\text{cm}^2$ . Pour atteindre ces densités d'énergie lors des tests d'endommagement, le faisceau est focalisé au moyen d'une lentille. Un schéma de l'installation DERIC est donné Figure 3-1. Il représente le banc d'endommagement laser avec la source laser Amplitude Systèmes qui est utilisée à une fréquence de 10Hz et délivre un faisceau au profil spatial gaussien. En sortie de ce laser, une lame séparatrice escamotable permet d'envoyer une portion du faisceau vers une voie d'analyse où sont réalisées ponctuellement les mesures spectrales et temporelles qui seront présentées dans le paragraphe suivant. D'autres dispositifs sont mis en place afin de qualifier tir à tir les irradiances laser qui illuminent les échantillons.

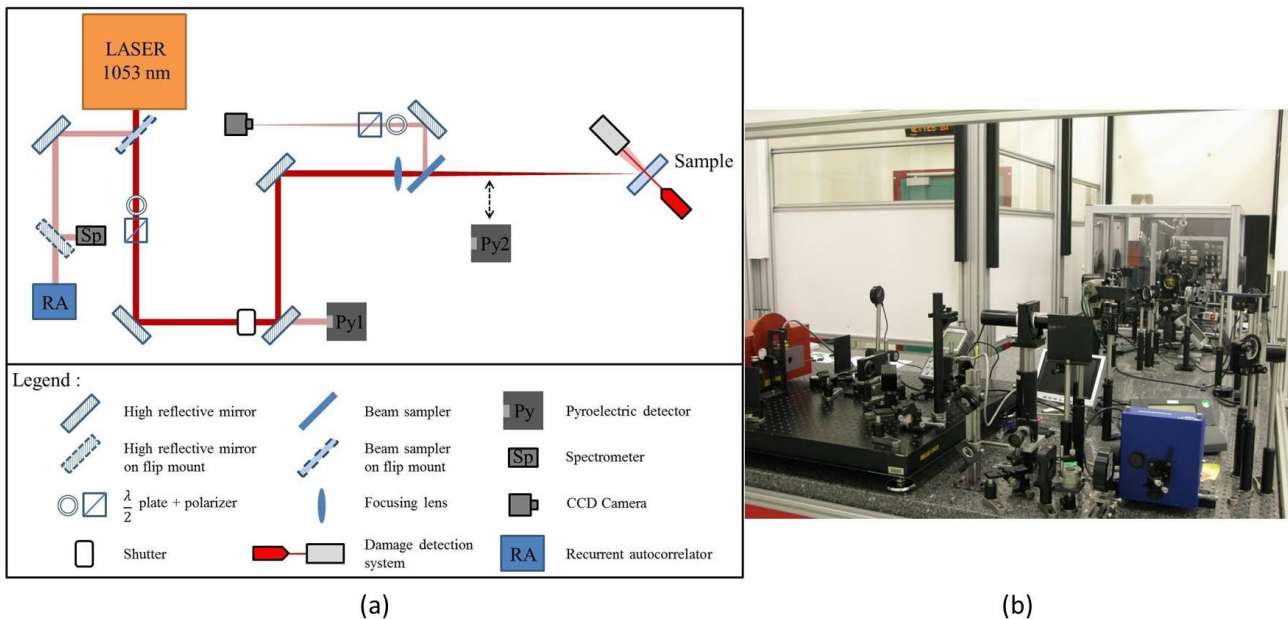


Figure 3-1 : Présentation du banc d'endommagement laser DERIC.(a) Synoptique du banc DERIC. (b) Photographie du banc DERIC.

#### 3.A.1 Généralités de l'optique gaussienne.

Lors d'un test de tenue au flux laser, il est nécessaire de contrôler précisément les paramètres des irradiances qui illuminent l'échantillon. Comme énoncé dans le paragraphe précédent, le faisceau en sortie laser a un profil spatial gaussien. Egalement, ce faisceau est très faiblement divergent : on peut donc faire l'approximation que son rayon reste constant lors de sa propagation. Ce faisceau gaussien est ensuite focalisé au moyen d'une lentille plano-convexe : d'après les propriétés de l'optique gaussienne, il conserve



un profil gaussien après focalisation. Le faisceau en entrée de la lentille de focalisation possède un rayon  $w_f$  à  $1/e^2$ , rayon pour lequel l'intensité du faisceau vaut  $1/e^2$  fois le maximum d'intensité. Par la suite on utilisera la notation  $w_{f,1/e^2}$ . L'optique gaussienne permet également de définir plusieurs propriétés du faisceau autour du plan de focalisation. Les différents paramètres sont définis dans la Figure 3-2 et dépendent de la longueur d'onde  $\lambda$  du faisceau. Le rayon du faisceau dans le plan de focalisation de la lentille de focale  $f$  est  $w_{0,1/e^2}$ . Il est également appelé waist du faisceau à  $1/e^2$ . La zone de Rayleigh  $Z_R$  est définie comme la zone où le faisceau possède un rayon inférieur à  $\sqrt{2}$  fois le waist.  $w_{1/e^2}(z)$  correspond au rayon du faisceau en tout point de l'axe optique.  $\theta$  correspond à la divergence du faisceau.

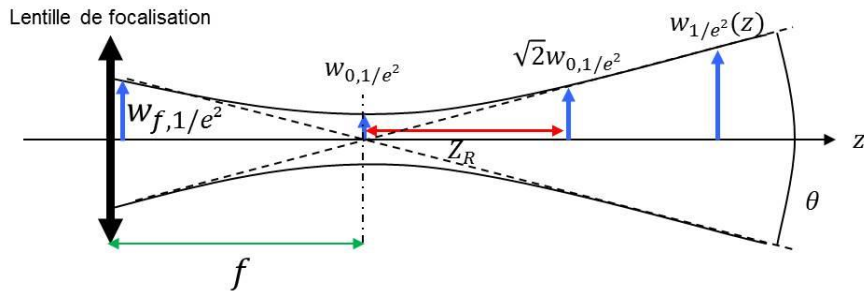


Figure 3-2 : Définition des différents paramètres du faisceau gaussien focalisé par une lentille de focale  $f$  à la longueur d'onde  $\lambda$ .

Le rayon à  $1/e^2$  du faisceau dans le plan focal de la lentille est donné par la relation suivante :

$$w_{0,1/e^2} = \frac{\lambda f}{\pi w_{f,1/e^2}}$$

Équation 3-1 : Waist du faisceau à  $1/e^2$

Il est également intéressant de définir le rayon à  $1/e$  du faisceau, simplement relié à  $w_{0,1/e^2}$  par :

$$w_{0,1/e} = \sqrt{2} w_{0,1/e^2}$$

Équation 3-2 : Waist du faisceau à  $1/e$

La zone de Rayleigh s'exprime en fonction du waist à  $1/e^2$  :

$$Z_R = \frac{\pi w_{0,1/e^2}^2}{\lambda}$$

Équation 3-3 : Zone de Rayleigh.

La divergence du faisceau également est reliée au waist à  $1/e^2$  par :

$$\theta = \frac{2\lambda}{\pi w_{0,1/e^2}}$$

Équation 3-4 : Divergence du faisceau

Enfin, la définition de ces différents paramètres permet de décrire dans le cas de l'optique gaussienne l'évolution du rayon du faisceau le long de l'axe de propagation par :

$$w_{1/e^2}(z) = w_{0,1/e^2} \sqrt{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2}$$

Équation 3-5 : Diamètre du faisceau lors de sa propagation selon l'axe optique.

Lors des tests d'endommagement laser, les échantillons sont placés dans le plan focal image de la lentille, i.e. au waist du faisceau après focalisation : le rayon à  $1/e^2$  est  $w_{0,1/e^2}$ . Dans ce plan, il est donc possible d'exprimer la distribution de la fluence par une fonction gaussienne en fonction de la coordonnée radiale  $r$ . Au centre du faisceau ( $r=0$ ), la fluence  $F(r=0)$  est maximale, notée  $F_{max}$ . Introduisons la notion de surface équivalente  $S_{eq}$ , surface du faisceau à  $1/e$ . Radialement,  $F(r)$  s'écrit :

$$F(r) = F_{max} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_{0,1/e^2}^2}\right) = F_{max} \exp\left(-\frac{r^2}{w_{0,1/e}^2}\right) = F_{max} \exp\left(-\frac{\pi r^2}{S_{eq}}\right)$$

Équation 3-6 : Définition de la fluence locale dans un faisceau gaussien en fonction de la distance radiale  $r$  par rapport au centre du faisceau et de la surface équivalente du faisceau gaussien, définie comme la surface à  $1/e$  du faisceau.

En pratique, la fluence maximale d'une impulsion laser au profil spatial gaussien est définie à partir de l'énergie totale de l'impulsion vue par l'échantillon  $E_{tot}$  et de la surface équivalente du faisceau  $S_{eq}$  au niveau de l'échantillon par :

$$F_{max} = \frac{E_{tot}}{S_{eq}}$$

Équation 3-7 : Définition de la fluence maximale d'irradiation par un laser au profil spatial gaussien.

Lors des tests d'endommagement laser par un faisceau gaussien, les fluences rapportées correspondent aux fluences maximales dans le faisceau gaussien, calculées d'après l'Équation 3-7.  $S_{eq}$  est fixée par le choix de la lentille et correspond à la surface équivalente du faisceau mesurée dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau. Pour l'ensemble des tests, les fluences sont calculées dans ce plan : on parle donc de fluences en section droite. Un choix réfléchi de la lentille doit être fait afin de rendre accessible la gamme de fluence de test souhaitée. Ensuite, la variation de la fluence lors des tests sera réalisée via un contrôle de l'énergie totale vue par l'échantillon. Dans les paragraphes qui suivent, nous détaillerons les moyens de contrôles et de caractérisations des paramètres spatiaux et énergétiques des irradiations laser que nous avons mis en place lors du développement du banc DERIC.

### 3.A.2 Caractéristiques énergétiques.

#### 3.A.2.i Contrôle de l'énergie :

Le laser fournit une énergie constante égale à environ 2,5mJ. Afin de faire varier l'énergie du faisceau sur le banc, le système classique composé d'une lame biréfringente  $\lambda/2$  (appelée également lame demi-onde) et d'un polariseur a été mis en place.

La polarisation du faisceau en sortie de la source laser est verticale. Orientée d'un certain angle  $\theta$ , la lame  $\lambda/2$  réalise un déphasage de  $\pi$  entre la composante du champ électrique colinéaire à son axe ordinaire et celle colinéaire à son axe extraordinaire. Ceci permet de faire tourner la polarisation d'un angle  $2\theta$ . Le polariseur qui lui est couplé a été placé de façon à laisser passer la composante polarisée horizontalement du champ électrique. Ce système garantit une extinction maximale de 100:1.

### 3.A.2.ii Mesure de l'énergie :

Afin de déterminer l'énergie qui irradie l'échantillon, une mesure relative de l'énergie est réalisée dans une voie de prélèvement. Cette mesure est réalisée grâce à un détecteur pyroélectrique (Ophir PD10, nommé Py1 sur la Figure 3-1) placé dans la fuite d'un miroir à haute réflectivité. Pour obtenir la relation entre cette énergie relative et l'énergie absolue qui irradie l'échantillon, un étalonnage du détecteur Py1 est réalisé avant chaque campagne de test par rapport à un détecteur pyroélectrique étalon Py2 (Ophir PE10 BC) placé en plein faisceau. Le pyromètre étalon est étalonné annuellement et l'incertitude sur la mesure à un écart-type, donnée par le fabricant, est de 3%.

### 3.A.3 Caractéristiques spatiales.

#### 3.A.3.i Focalisation du faisceau :

Le faisceau au niveau de la lentille de focalisation a un diamètre à  $1/e^2$  de 3,15mm. Dans le Tableau 3-1, nous donnons les caractéristiques du faisceau dans le plan focal de la lentille pour différentes lentilles, calculées d'après les relations données dans le paragraphe 3.A.1. Ce tableau rapporte également les fluences maximales accessibles en fonction de la lentille de focalisation et conditionne son choix.

Focale (mm)	$w_{0,1/e^2}$ (mm)	$w_{0,1/e}$ (mm)	Diamètre à $1/e$ (mm)	Longueur de Rayleigh (mm)	Fluence maximale théorique accessible ( $J/cm^2$ )
500	0,106	0,075	0,150	33,8	14,1
550	0,117	0,083	0,166	40,9	11,6
600	0,128	0,090	0,181	48,6	9,8
650	0,138	0,098	0,196	57,1	8,3
700	0,149	0,105	0,211	66,2	7,2
750	0,160	0,113	0,226	76,0	6,2
800	0,170	0,120	0,241	86,5	5,5

Tableau 3-1 : Paramètre du faisceau dans le plan focal de la lentille en fonction de la focale  $f$ . Détermination de la fluence maximale accessible sur l'échantillon pour une énergie maximale de l'impulsion sur l'échantillon de 2,3mJ (prenant en compte les différentes pertes induites par les composants sur le chemin optique). La lentille de focale 650mm permet d'atteindre théoriquement les fluences souhaitées lors du dimensionnement du banc.

La lentille de focale 650mm est choisie : elle permet théoriquement de couvrir la gamme de fluence de 0 à 8  $J/cm^2$ . Expérimentalement, il est nécessaire de mesurer la taille réelle du faisceau focalisé ainsi que son évolution lors de sa propagation : ceci équivaut à établir la caustique du faisceau.

#### 3.A.3.ii Mesure du profil spatial :

Au même titre que l'énergie, il est nécessaire de connaître tir à tir la surface équivalente du faisceau dans le plan de l'échantillon afin de déterminer précisément la fluence d'irradiation du composant. Pour cela, une voie de prélèvement a été mise en place afin de mesurer, simultanément au tir laser sur échantillon, le profil spatial du faisceau. Cette mesure est réalisée dans un plan équivalent à celui de l'échantillon au moyen d'une caméra CCD analogique COHU codée sur 8-bits. La caméra est couplée à un objectif de microscope x8, traité antireflet dans le domaine infrarouge, afin d'augmenter la surface éclairée sur le capteur CCD et de mesurer précisément le profil spatial du faisceau. Une mire est utilisée afin d'étalonner

la surface effective d'un pixel du couple « caméra + objectif ». L'erreur sur la détermination de la surface effective d'un pixel est de 5%.

La voie de prélèvement est réalisée en plaçant directement après la lentille une fenêtre en silice fondue traitée antireflet en face arrière : ce prélèvement traverse un système « lame demi-onde + polariseur » qui permet d'ajuster l'éclairement de la caméra pour avoir le meilleur rapport signal à bruit. Ce second système d'atténuation est ajusté de façon automatique en fonction du premier système (placé en sortie laser). Le traitement du signal acquis par la caméra est réalisé par le logiciel Spiricon LBA. La surface équivalente du faisceau est ensuite extraite de ce traitement [88].

Un point important à vérifier est l'équivalence entre la voie de prélèvement et la voie principale : cette équivalence permet de valider que la surface équivalente du faisceau mesurée dans la voie de prélèvement correspond à la surface du faisceau dans le plan de l'échantillon. Pour cela, nous avons tracé la caustique dans les deux voies. Elles sont illustrées dans la Figure 3-3. Chaque point correspond à une moyenne de 100 acquisitions. Ces caustiques ont été paramétrées dans la zone de Rayleigh (centré au waist, de longueur  $2Z_R$ ) d'après l'Équation 3-5. Au waist du faisceau, la différence entre la surface équivalente mesurée sur la voie échantillon et la voie prélèvement est inférieure à 1%. Dans une zone restreinte autour du waist, où l'augmentation de la surface équivalente est inférieure à 10%, une différence de surface équivalente inférieure à 5% est mesurée. L'acquisition de la surface équivalente sur une série de 3100 tirs consécutifs révèle une variation relative à 1 écart-type inférieure à 1%. Au final, la mesure dans une voie de prélèvement apporte une incertitude sur la valeur de la surface équivalente tir à tir d'environ 5%. Enfin, une incertitude propre à la caméra utilisée est également à considérer. Des tests réalisés sur cette caméra [88] montrent une incertitude de 6% propre à la caméra.

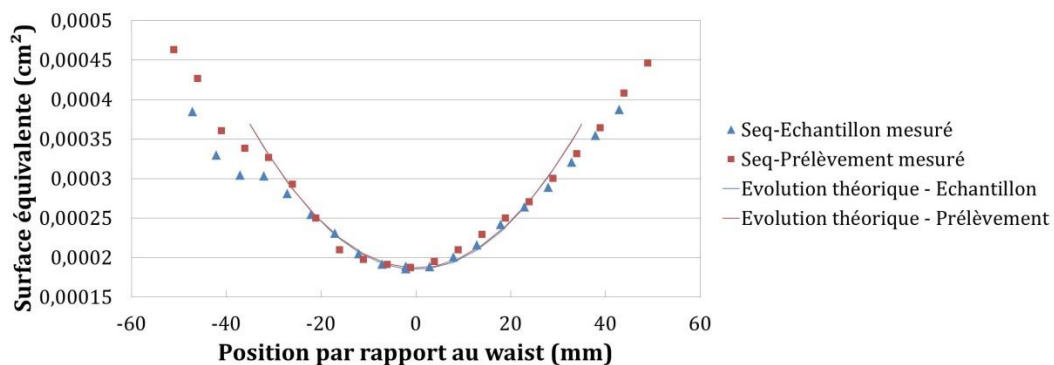


Figure 3-3 : Caustiques du faisceau mesurées dans la voie de prélèvement et dans la voie principale échantillon. Chaque point correspond à une moyenne de 100 acquisitions. Des paramétrages par l'Équation 3-5 ont été réalisés pour ces deux caustiques dans la zone de Rayleigh : ils sont représentés en traits pleins.

*In fine*, la surface équivalente mesurée avec la caméra COHU au waist du faisceau est de  $1,9 * 10^{-4} \text{ cm}^2$ , ce qui correspond à un diamètre à  $1/e$  du faisceau dans le plan de l'échantillon de  $155 \mu\text{m}$ . Une vue 3D du profil spatial et un coupe 2D du profil du faisceau est donnée dans la Figure 3-4.

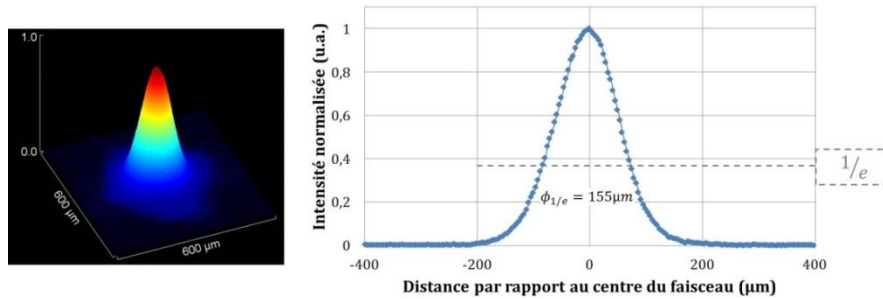


Figure 3-4 : Vue 3D du profil spatial du faisceau DERIC dans le plan focal de la lentille. (b) Coupe 2D du profil : on représente la largeur à 1/e du faisceau.

### 3.A.4 Incertitude sur la détermination de la fluence.

La fluence d'une irradiation laser est définie comme le rapport de l'énergie de l'impulsion sur la surface équivalente du faisceau dans le plan de l'échantillon. Dans les paragraphes précédents, nous avons présenté les différents éléments contribuant à des incertitudes (à un écart-type) sur leur mesure. Ce sont :

- Etalonnage des détecteurs pyroélectriques : 3%.
- Erreur sur la détermination de la surface effective d'un pixel du couple « caméra CCD + objectif » : 5%.
- Incertitude intrinsèque à la caméra : 6%.
- Ecart entre la voie principale et la voie de prélèvement (mesuré dans une zone où la surface équivalente du faisceau reste inférieure à 10% de la surface au waist) : 5%.

Ces contributions sont indépendantes les unes par rapport aux autres et l'incertitude sur la mesure absolue de la fluence peut être calculée comme la somme quadratique de chaque incertitude. Ceci donne une incertitude sur la mesure de la fluence d'irradiation d'environ 10%.

### 3.A.5 Propagation d'impulsions intenses : estimation de l'intégrale B.

Au vu des énergies, des durées d'impulsions et de la taille du faisceau focalisé, les densités de puissance proches de l'échantillon sont très élevées. L'énergie maximale disponible sur échantillon est de 2,3mJ. Volontairement, nous limitons l'énergie maximale utilisée à 1,5mJ. En effet pour des impulsions de durée 720fs, d'énergie 1,5mJ et dont la surface équivalente après focalisation est de  $1,9 * 10^{-4} \text{ cm}^2$ , la densité de puissance dans le plan focal de la lentille est de 11 TW/cm<sup>2</sup>. Pour cette énergie et cette taille de faisceau, la fluence atteinte est de 7,9J/cm<sup>2</sup> : jusqu'à aujourd'hui, aucune optique n'a été testée à cette fluence. Nous prendrons cette énergie comme la valeur maximale considérée aujourd'hui sur le banc DERIC. Des effets non-linéaires tels que l'auto-focalisation peuvent être mis en jeu lors de la propagation d'impulsions lasers intenses. Ils ont été présentés dans le Chapitre 1. L'intégrale-B (ou Breakdown Integral) est un bon indicateur permettant de quantifier l'accumulation de la phase non-linéaire lors de la propagation du faisceau. La limite d'auto-focalisation peut être prise à  $B \sim 1\text{rad}$  [73]. Une limite pour  $B \sim 2\text{-}4\text{rad}$  peut également être considérée [89]. Néauport et al. ont établi une forme simplifiée de l'intégrale-B [73] :

$$B = \frac{4\pi}{\lambda^2} n_2 \frac{E}{\tau}$$

Équation 3-8 : Expression simplifiée de l'intégrale-B.  $\lambda$  est la longueur d'onde du laser,  $E$  est l'énergie des impulsions,  $\tau$  est la durée d'impulsion et  $n_2$  est l'indice non-linéaire du milieu de propagation.

Pour l'installation DERIC fonctionnant à 1053nm, avec une énergie limite fixée à 1,5mJ, une durée d'impulsion de 720fs et une propagation dans l'air (d'indice linéaire  $n_0 = 1$  et d'indice non-linéaire  $n_2 = 3,2 \cdot 10^{-19} \text{cm}^2/\text{W}$ ), le calcul de l'intégrale donne  $B \sim 0,76\text{rad}$  : nous sommes donc en-dessous de la limite d'auto-focalisation et cet effet peut donc être négligé.

### 3.A.6 Méthode de détection de dommages.

Après une irradiation à une fluence connue, il faut pouvoir dire si cette irradiation a induit ou non un dommage. La norme ISO 21254 [30] recommande l'utilisation *post-mortem* d'un microscope DIC pour l'observation des dommages. Sur l'installation DERIC, nous avons mis en place un système de détection des dommages *in-situ*. Une illustration de ce dispositif et de son principe est donnée dans la Figure 3-5. Son principe repose sur l'évolution de l'état de surface du composant lors d'un endommagement. Un faisceau sonde (représenté en vert sur la Figure 3-5(a)) intercepte la face avant du composant testé en un point confondu avec le point d'incidence du faisceau pompe intense (faisceau rouge sur la Figure 3-5(a)). Comme illustré sur la Figure 3-5(b), la partie spéculaire transmise est bloquée par une pastille alors que la partie diffusée est collectée par une lentille et envoyée vers une photodiode. Si un dommage est créé lors de l'irradiation laser, le signal diffusé va augmenter : cette variation du signal est mesurée au moyen d'un oscilloscope. Ce système est automatisé et synchronisé sur le signal laser. Il permet d'enregistrer tir à tir les courbes d'évolution de la diffusion correspondant à chaque irradiation. La taille minimale des dommages détectés avec ce système est d'environ  $5\mu\text{m}$ , établie sous microscope DIC.

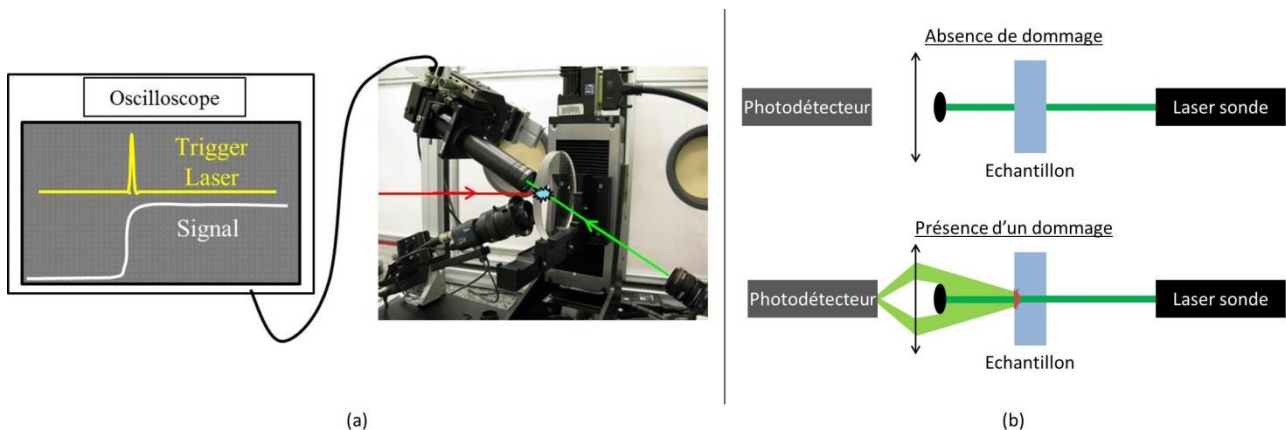


Figure 3-5 : Dispositif de détection automatisé des dommages mis en place sur l'installation DERIC. (a) Photographie du dispositif. En vert, on symbolise le faisceau sonde continu, utilisé pour la détection des dommages. En rouge, on symbolise le faisceau pompe, à 1053nm et 700fs, utilisé pour réaliser les expériences d'endommagement laser. (b) Principe de la méthode de diffusion. Lorsqu'il n'y a pas de dommages, le faisceau est stoppé par une pastille placée devant le photodétecteur : ce dernier n'observe pas d'évolution de signal. Si un dommage est formé, la surface devient diffusante et le signal diffusé est collecté au moyen d'une lentille : le photodétecteur observe une évolution du signal.

## 3.B Caractérisation des impulsions laser de l'installation DERIC.

Lors du développement du banc DERIC, nous avons mis en place des diagnostics spatiaux et énergétiques afin de connaître tir à tir la nature des irradiations laser vues par l'échantillon. Un second volet développé durant cette thèse a été la caractérisation du profil temporel. Elle a notamment mis en œuvre deux dispositifs développés au CEA/CESTA qui ont permis de connaître précisément le profil temporel des impulsions délivrées par la source Amplitude Systèmes.

### 3.B.1 Description de la source laser.

La source laser Amplitude Systèmes est composée :

- d'un oscillateur fibré qui délivre à une fréquence d'environ 40 MHz des impulsions d'une centaine de femtosecondes de faible énergie (de l'ordre de la nanojoule) dont la longueur d'onde est centrée sur 1053nm.
- un module PulsePicker : il s'agit d'un cristal acousto-optique. Lorsqu'il est traversé par un signal radio-fréquence, il se comporte comme un réseau de diffraction en transmission et le signal d'entrée est diffracté dans l'ordre 1. Sinon, il transmet dans l'ordre 0. Ce système est activé à une fréquence de 10Hz ou 100Hz (définie par l'utilisateur). Tous les 100ms ou 10ms, l'AOM va transmettre dans l'ordre 1 un train de quelques impulsions qui sera injecté dans la partie amplificatrice du laser et transmettre le reste dans l'ordre 0 qui est rejeté.
- une section amplificatrice : elle est basée sur la technique d'amplification à dérive de fréquence CPA :
  - Le train d'impulsion injecté passe dans un étireur replié (un réseau + un dièdre pour simuler une paire de réseau, typique des systèmes étireurs). Une lentille placée dans le réseau introduit une dispersion de vitesse de groupe négative : la durée de l'impulsion en sortie de l'étireur est supérieure à 400ps.
  - Une impulsion élargie est injectée via une cellule de Pockels dans une cavité régénérative. Elle réalise plusieurs passages dans la cavité et elle est amplifiée au moyen d'un cristal de Yb:CaF<sub>2</sub> pompé par diode laser à 980nm. Elle est ensuite éjectée par la cellule de Pockels. Son énergie en sortie de la cavité régénératrice est d'environ 2,5mJ.
  - L'impulsion longue et amplifiée passe ensuite dans un compresseur replié (1 réseau + 1 dièdre) qui impose une dispersion de vitesse de groupe positive qui compense celle introduite par l'étireur : l'impulsion est alors recompressée temporellement. Le dièdre du compresseur est placé sur une platine de translation motorisée qui permet d'optimiser plus ou moins la compression. Le système tel qu'actuellement configuré permet de choisir une durée d'impulsion comprise entre 720fs et 5ps.

En sortie de cette source laser, le faisceau laser a un profil spatial quasi gaussien de diamètre d'environ 3mm et les impulsions laser ont une énergie d'environ 2,5mJ.

### 3.B.2 Mesure du spectre des impulsions.

Dans le cas d'impulsions temporellement courtes, nous avons vu dans le Chapitre 1 que la largeur spectrale d'une impulsion était reliée à la durée d'impulsion via la relation d'incertitude d'Heisenberg (Équation 1-1). La connaissance du spectre donne des informations concernant la durée de l'impulsion et vice-versa. Le spectre de l'impulsion en sortie de la source laser a été mesuré au moyen d'un spectromètre Jobin Yvon HR320, qui repose sur le principe de dispersion spatiale des composantes spectrales de l'impulsion au moyen d'un réseau de diffraction. Le principe de fonctionnement est donné dans la Figure 3-6(a). Le faisceau entre dans le spectromètre par une fente, située au foyer d'un miroir concave. Après passage par ce miroir, le faisceau est collimaté et illumine un réseau de diffraction en réflexion qui va disperser les différentes composantes spectrales de l'impulsion. L'efficacité de dispersion dépend du pas du réseau (nombre de traits/mm) ainsi que du nombre de traits éclairés. Après ce réseau, chaque composante

spectrale est collimatée mais se propage à un angle différent, donné par la loi des réseaux (Équation 2-15). Chaque composante est ensuite focalisée dans le plan focal image du second miroir concave. Le plan focal image de ce second miroir est donc conjugué avec le plan focal objet du premier miroir, où se trouve la fente d'entrée : une fente d'entrée fine permet de séparer distinctement les longueurs d'onde. Dans le plan focal image, on place un système d'acquisition (capteur CCD, barrette de photodiodes...) pour recueillir les données spectrales. Ce système a été étalonné en mesurant le spectre de deux diodes lasers continues monochromatiques à 1053nm et 1057nm : leur spectre correspond à un trait dont la largeur (précision du spectromètre) dépend de la largeur de la fente. Ces deux mesures permettent d'établir l'équivalence entre pixel et longueur d'onde. Ce spectromètre fonctionne en propagation libre. Dans la Figure 3-6(b) le profil spectral de l'impulsion. Un paramétrage du spectre par une fonction gaussienne permet de déterminer une longueur d'onde centrale à 1052,8nm et une largeur à mi-hauteur du spectre de 2,16nm.

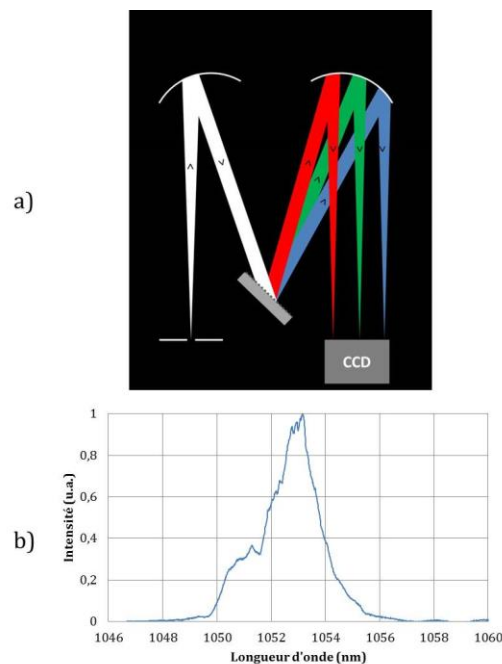


Figure 3-6 : (a) Principe de fonctionnement du spectromètre Jobin Yvon HR320. (b) Profil spectral de l'impulsion délivrée par la source Amplitude Systèmes.

A partir de la largeur à mi-hauteur du spectre et en appliquant le principe d'incertitude d'Heisenberg, nous pouvons déduire la durée minimale de l'impulsion que pourrait délivrer la source laser dans le cas d'une compression optimale (i.e. qui compense parfaitement l'étirement et annule de déphasage de l'impulsion) : cette durée correspond au cas d'une impulsion limitée par Fourier. Dans le Tableau 3-2, nous avons appliqué l'Équation 1-1 pour calculer les durées minimales des impulsions.

Forme temporelle	K tel que $\Delta t \Delta \nu \geq K$ (relation d'Heisenberg)	Durée d'impulsion dite limitée par Fourier
Gaussienne	0,441	754 fs
Sécante Hyperbolique Carrée	0,315	539 fs

Tableau 3-2 : Durées d'impulsions dites limitées par Fourier. La largeur à mi-hauteur du spectre en longueur d'onde est  $\Delta\lambda = 2,16\text{nm}$  et la longueur d'onde centrale du spectre est  $\lambda = 1052,8\text{nm}$ . Ceci correspond à une largeur à mi-hauteur du spectre en fréquence  $\Delta\nu = 585\text{GHz}$ .

Les données fournies par le constructeur indiquent que la forme temporelle de l'impulsion est une sécante hyperbolique carrée. Moyennant cette hypothèse, les durées des impulsions délivrées par le laser sont



cohérentes avec le principe d'Heisenberg. Cette hypothèse reste à vérifier. Elle est l'objet du paragraphe suivant.

### 3.B.3 Mesure des caractéristiques temporelles des impulsions.

Dans cette section, nous nous intéressons à la caractérisation du profil temporel des impulsions courtes. Une bonne connaissance du profil temporel est nécessaire pour pouvoir remonter au processus d'absorption d'énergie et d'endommagement, présenté dans le Chapitre 1. Des lois d'échelle temporelles reliant les seuils d'endommagement des matériaux à la durée d'impulsion ont notamment été rapportées. Les bandes passantes des meilleures photodiodes disponibles aujourd'hui dans le commerce ne dépassent pas 45GHz dans le proche infrarouge. Celles-ci ne sont pas suffisantes pour résoudre le profil temporel d'une impulsion sub-picoseconde. Pour cela, des méthodes tout-optique ont été développées. L'instrument couramment utilisé pour caractériser temporellement une impulsion courte est l'autocorrélateur. D'autres dispositifs, beaucoup plus complexes et difficiles à mettre en œuvre, permettent de déterminer le profil temporel des impulsions : on peut citer les dispositifs FROG [90], le SPIDER [91], le SPIRIT [92] ou encore le SPIRITED [93].

#### *3.B.3.i Estimation de la durée des impulsions délivrées par la source laser de DERIC.*

Un autocorrélateur APE Pulse Check est installé de façon permanente sur le banc DERIC. Un autocorrélateur ne donne pas directement accès au profil temporel de l'impulsion. En revanche, si la forme du profil temporel est connue, il permet d'estimer la durée à mi-hauteur de l'impulsion à partir d'une mesure de la trace d'autocorrélation du signal. Il existe deux principaux types d'autocorrélateurs : l'autocorrélateur monocoup et l'autocorrélateur multi-coups ou récurrent. Le premier est adapté aux impulsions femtosecondes et sub-picosecondes et le deuxième est adapté aux impulsions sub-picosecondes et picosecondes. L'autocorrélateur de DERIC est récurrent. Son schéma de principe est donné dans la Figure 3-7. Le signal qui entre dans l'instrument est séparé en deux sous-signaux : le signal 1 et le signal 2. Le signal 1 est envoyé sur une voie de longueur fixe. Le signal 2 est envoyé sur une voie dont la longueur est variable grâce à une platine piézoélectrique : cette voie introduit un retard  $\tau$  au signal 2 par rapport au signal 1. Les deux signaux qui ont la même longueur d'onde ( $1\omega$ ) sont ensuite focalisés sur le cristal doubleur de fréquence : il génère un signal de fréquence double ( $2\omega$ ) selon la bissectrice aux 2 signaux incidents. L'intensité de ce signal  $2\omega$  est proportionnelle au produit de corrélation des 2 signaux incidents à  $1\omega$ . Les deux signaux incidents étant identiques (modulo un retard), cette corrélation est une autocorrélation. L'intensité du signal  $2\omega$  est acquis au moyen d'une photodiode pour chaque valeur de  $\tau$ . En traçant l'intensité du signal  $2\omega$  en fonction du retard entre les deux signaux, on obtient la trace d'autocorrélation du signal. Ce type de système est appelé autocorrélateur récurrent car la trace d'autocorrélation finale est reconstruite à partir de plusieurs acquisitions obtenues pour différents  $\tau$ . Le nombre d'acquisitions définit la résolution du système.

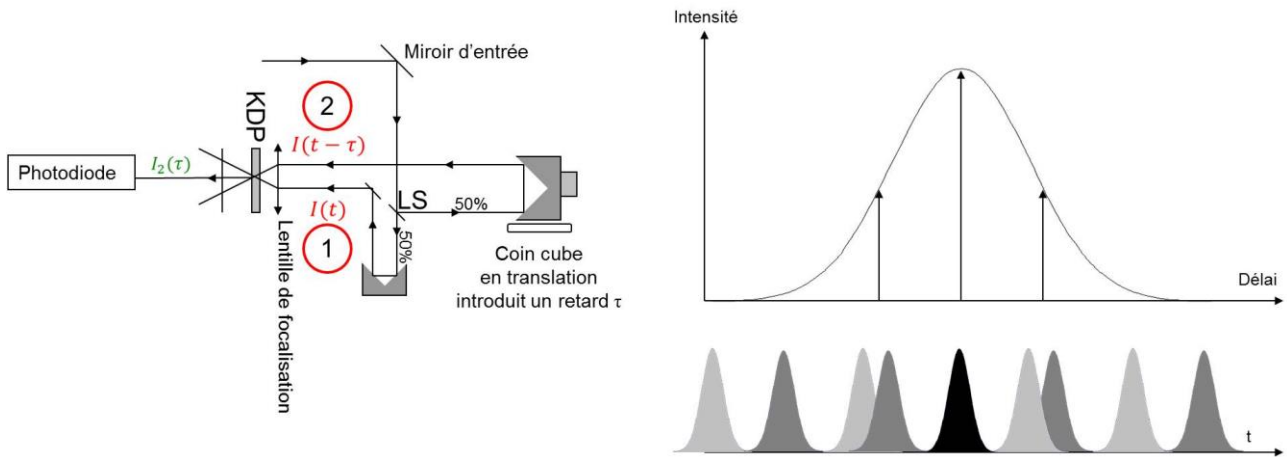


Figure 3-7 : Principe de fonctionnement de l'autocorrélateur récurrent et construction de la trace d'autocorrélation. LS : lame séparatrice / KDP : cristal de conversion de fréquence (d'autres cristaux convertisseurs peuvent être utilisés tels que le LBO ou BBO).

Soient  $I$  l'intensité du signal dans chaque bras de l'autocorrélateur et  $\tau$  le délai introduit, le signal normalisé  $I_2$  reçu par la photodiode est le suivant :

$$I_2(\tau) = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau)dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t)dt}$$

Équation 3-9 : Signal d'autocorrélation en fonction du délai introduit par le coin cube en translation.

Moyennant une hypothèse sur la forme de l'impulsion (sécante hyperbolique carrée d'après le constructeur du laser), la largeur à mi-hauteur (Full Width at Half Maximum, FWHM)  $\Delta\tau$  de cette trace est proportionnelle à la FWHM  $\Delta t$  du profil temporel :

$$\Delta\tau = 1,543\Delta t$$

Équation 3-10 : Lien entre la largeur à mi-hauteur du profil temporel d'un signal et de sa trace d'autocorrélation. 1,543 est le facteur de déconvolution pour une forme temporelle type sécante hyperbolique carrée.

Dans la configuration actuelle du laser Amplitude Systèmes, la trace d'autocorrélation obtenue avec l'instrument APE PulseCheck est donnée dans la Figure 3-8. Sa FWHM est 1035fs à laquelle on a appliqué le facteur de déconvolution 1,543 pour estimer la durée de l'impulsion. La durée d'impulsion minimale accessible est de  $670 \pm 20$ fs.

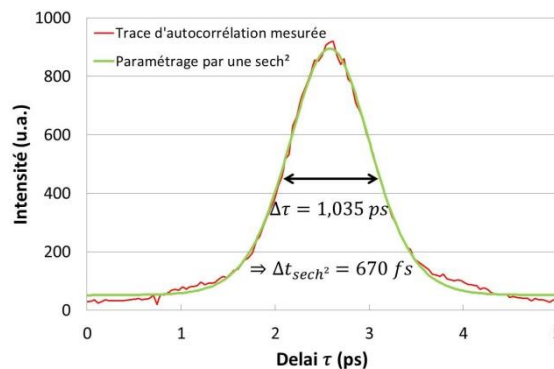


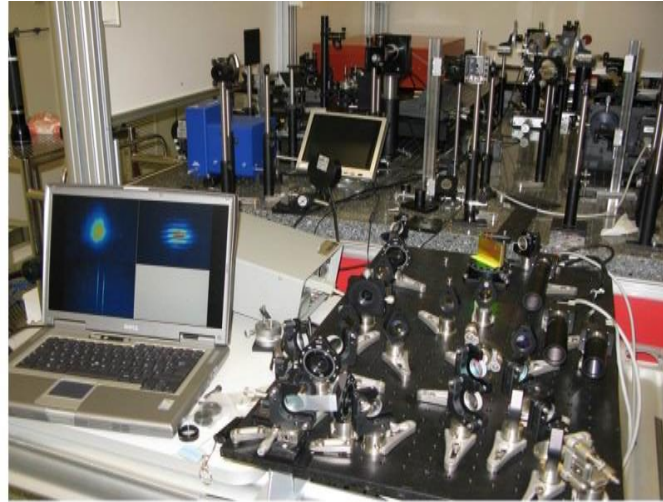
Figure 3-8 : Exemple de trace d'autocorrélation du signal laser de l'installation DERIC.

### 3.B.3.ii Détermination du profil temporel de la source DERIC.

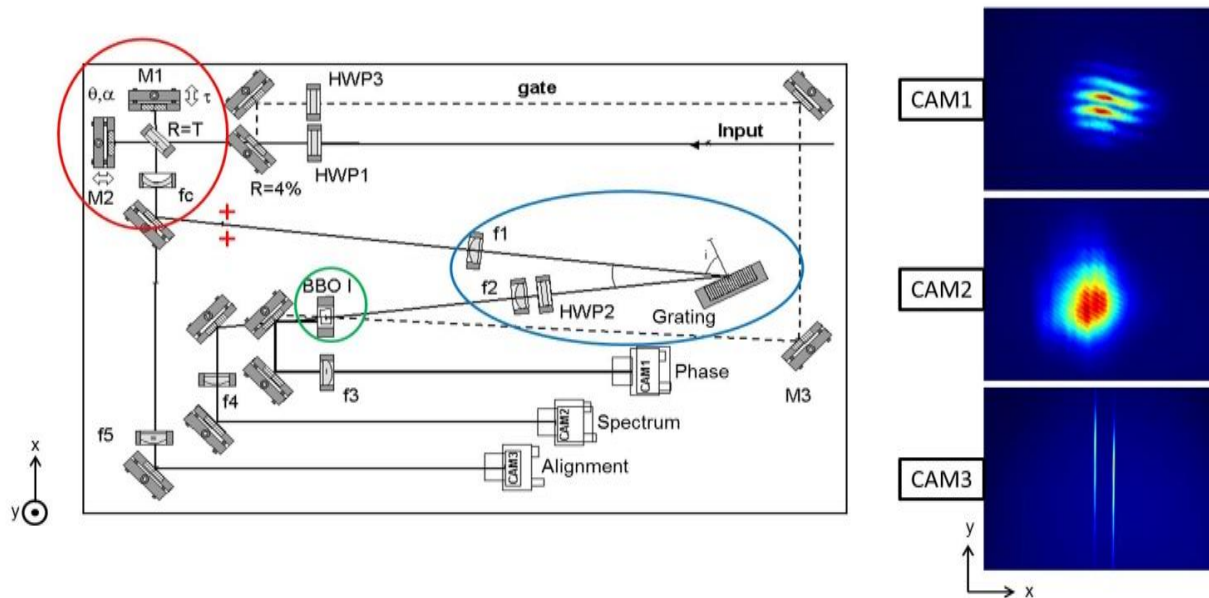
Les mesures réalisées avec l'autocorrélateur permettent d'estimer la durée d'impulsion à partir d'une mesure de la trace d'autocorrélation. Cette estimation repose sur une hypothèse concernant la forme de la durée d'impulsion. Durant cette thèse, nous avons pu vérifier la forme du profil temporel en utilisant le diagnostic SPIRITED [93], développé au CEA/CESTA. La photographie du diagnostic mis en place temporairement sur l'installation DERIC est donnée dans la Figure 3-9(a). Le synoptique du SPIRITED est donné dans la Figure 3-9(b). Les différentes mesures ont été réalisées avec l'aide de Jacques L. (CEA/CESTA/DLP) et Christelle D. (CEA/CESTA/DLP). Le SPIRITED repose sur le principe d'un spectromètre avec deux fentes d'entrée qui permet de mesurer la phase spectrale d'une impulsion. Le nom SPIRITED signifie « Spectral Phase Interferometry Resolved In Time Extra Dimensional ». Il s'agit d'une variante du dispositif SPIRIT [92] auquel un paramètre spatial supplémentaire a été ajouté. Cet ajout permet un diagnostic visuel très aisé de la phase. Il facilite notamment le réglage des compresseurs de systèmes CPA.

*Pour rappel, dans l'étireur d'un système CPA, les systèmes dispersifs introduisent un fort déphasage entre les différentes longueurs d'onde afin d'étirer temporellement les impulsions. Lors de la compression, l'objectif est d'annuler ce déphasage, permettant d'obtenir l'impulsion la plus courte.*

Le faisceau incident traverse un dispositif type Michelson (entouré en rouge), où chaque bras va produire une réplique de l'impulsion. Ces deux répliques sont séparées horizontalement grâce à un tilt d'angle  $\theta$  du miroir M2. Egalement un décalage vertical (selon  $y$ ) est introduit entre les deux faisceaux grâce à un tilt d'angle  $\alpha$  du miroir M2. La translation selon  $x$  du miroir M1 permet de régler le délai  $\tau$  entre les deux impulsions en sortie du Michelson égal à 0. Une lentille cylindrique est placée à la sortie du Michelson. A la traversée d'une lentille cylindrique, 2 fentes sont formées dans le plan modélisé par les croix rouges sur la Figure 3-9 : elles correspondent aux fentes d'entrée du spectromètre (entouré en bleu). L'image de ces fentes d'entrée par le spectromètre est localisée au niveau du cristal non-linéaire BBO 1. Dans le cristal BBO, des franges sont formées par l'interférence entre les spectres des deux fentes d'entrée. L'écart entre les deux fentes ainsi que le décalage vertical dû au tilt  $\alpha$  joue un rôle sur la figure d'interférence. Cette figure d'interférence est imagée sur la caméra appelée CAM1 Phase.



(a)



(b)

Figure 3-9 : (a) Diagnostic SPIRITED mis en place sur le banc DERIC. (b) Schéma du dispositif SPIRITED. Il est composé de 3 sous-éléments. Le premier rencontré par l'impulsion est un interféromètre de Michelson (entouré en rouge) qui forme deux fentes lumineuses (modélisées par les croix rouges). Ces deux fentes sont situées à l'entrée d'un spectromètre (entouré en bleu) qui permet un couplage spatio-spectral pour les signaux. Les deux signaux interfèrent à la sortie du spectromètre dans le BBO (entouré en vert) : ce cristal non linéaire permet l'échantillonnage d'une figure d'interférence, visualisé via la caméra CAM1. Le spectre est observé avec la caméra CAM2 et les deux fentes sont imagées dans la caméra CAM3.

Pour ces trois caméras, on donne des exemples d'acquisitions. Sur le schéma du dispositif, HW sont des lames demi-ondes qui permettent d'adapter la polarisation aux différents éléments optiques, M sont des miroirs et f des lentilles qui permettent l'imagerie des fentes [93].

Considérons une onde plane en entrée de ce dispositif. Dans le domaine spectral, cette onde s'exprime par un paramètre d'amplitude spectrale et de phase spectrale par :

$$E(\omega) = A(\omega)\exp(i\phi(\omega))$$

Équation 3-11 : Onde plane incidente.  $\omega$  est la pulsation, ou composante spectrale.  $A(\omega)$  est l'amplitude spectrale de l'onde et  $\phi(\omega)$  la phase spectrale.

Dans le spectromètre, l'interférence de deux spectres légèrement décalés (décalage d'une quantité spectrale  $\Delta\omega$  introduit par le tilt horizontal  $\theta$ ) va produire dans le plan de la caméra (image du cristal BBO) une figure d'interférence dont l'intensité, en fonction de  $x$ , de  $y$  et du temps  $t$  s'écrit [93]:

$$I(x, t, y) = I_0 \times \cos\left(\Delta\omega \times t + \left.\frac{\partial\phi}{\partial\omega}\right|_{\omega(x)} \times \Delta\omega + \frac{\omega_0}{c} \times y \times \alpha\right)$$

Équation 3-12 : Intensité décrivant la figure d'interférence dans le plan de la caméra CAM1.  $\omega_0$  correspond à la pulsation centrale,  $\alpha$  est le tilt vertical et  $c$  la vitesse de la lumière.

La composante spectrale  $\omega$  est directement couplée à la composante  $x$  par la relation de dispersion introduite par le réseau. Afin de s'affranchir de la dépendance temporelle de cette figure, une génération de seconde harmonique (Second Harmonic Generation, SHG) est réalisée avec le cristal BBO entre la figure d'interférence et un signal court non dispersé prélevé en entrée du SPIRITED. Cette SHG permet d'échantillonner l'interférogramme.

Le signal vu par la caméra est donc :

$$I(x, y) = I_0 \times \cos\left(\left.\frac{\partial\phi}{\partial\omega}\right|_{\omega(x)} \times \Delta\omega + \frac{\omega_0}{c} \times y \times \alpha\right)$$

Équation 3-13 : Figure d'interférence échantillonnée par SHG dans le plan de la caméra CAM1.

Dans la Figure 3-10, on rapporte 3 interférogrammes mesurés pour 3 configurations du compresseur du laser Amplitude Systèmes :

- 1 configuration optimale pour laquelle la durée d'impulsion est la plus courte (la position de la platine du compresseur est fixée arbitrairement à  $x = 0\mu\text{m}$ ). Elle correspond à la position pour laquelle le compresseur compense le mieux la dispersion apportée par l'étireur. Son interférogramme correspond à la Figure 3-10(a)
- 2 configurations déréglées avec  $x = -3000\mu\text{m}$  et  $x = 3000\mu\text{m}$  dont les interférogrammes sont respectivement donnés dans la Figure 3-10(b) et (c).

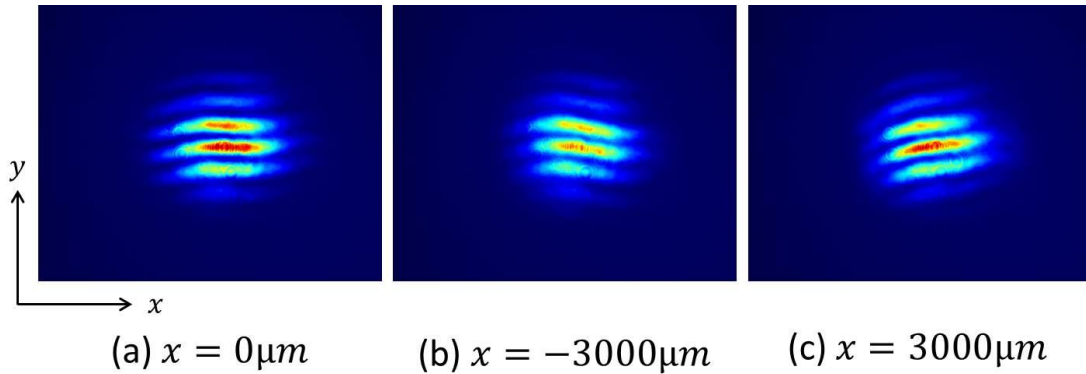


Figure 3-10 : Acquisitions réalisées avec le SPIRITED : (a) Interférogramme obtenu pour une configuration du compresseur du laser DERIC optimisée. On fixe arbitrairement la position de la platine du compresseur à  $x = 0\mu\text{m}$ . (b) et (c) Interférogrammes obtenus pour une configuration déréglée du compresseur pour avec  $x = -3000\mu\text{m}$  et  $x = 3000\mu\text{m}$  respectivement.

Considérons la frange centrale la plus intense. En relevant pour chaque  $x$  la position  $y$  du maximum d'intensité, on a [93] :

$$y_{max}(x) = -\left.\frac{\partial\phi}{\partial\omega}\right|_{\omega(x)} \times \Delta\omega \times \frac{c}{\alpha \times \omega_0}$$

Équation 3-14: Lien entre l'évolution de la frange centrale et la dérivée de la phase spectrale.

Par cette expression, on voit qu'il est possible, à partir d'une observation d'un interférogramme, de connaître la dérivée de la phase spectrale. La valeur  $\Delta\omega$  est connue à partir de la mesure du spectre et de la distance entre les deux fentes d'entrée : ces deux paramètres sont enregistrés grâce aux deux autres caméras (CAM 2 et CAM3 représentées sur la Figure 3-9).

Un développement de Taylor de l'intégrale de  $\frac{\partial\phi}{\partial\omega}$  permet de déterminer la composante quadratique de la phase (elle contribue à un élargissement du profil temporel) et la composante cubique (elle amène des rebonds dans l'impulsion). Sur l'interférogramme, la présence de phase quadratique créera une inclinaison des franges. Un résidu de phase cubique sera caractérisé par une forme parabolique des franges. L'optimisation de la compression est atteinte quand les résidus de phase sont nuls, i.e. lorsque les franges tendent à être planes.

Grâce à ce dispositif, on a donc accès à la phase spectrale de l'impulsion. L'amplitude spectrale de l'impulsion (i.e. le spectre) est également mesurée par le SPIRITED. On peut donc entièrement définir l'onde incidente dans le domaine spectral. Une transformée de Fourier permet de passer dans le domaine temporel et ainsi de reconstruire le profil temporel de l'impulsion. A partir des trois acquisitions données dans la Figure 3-10, nous avons reconstruit les trois profils temporels correspondants. Ils sont donnés dans la Figure 3-11.

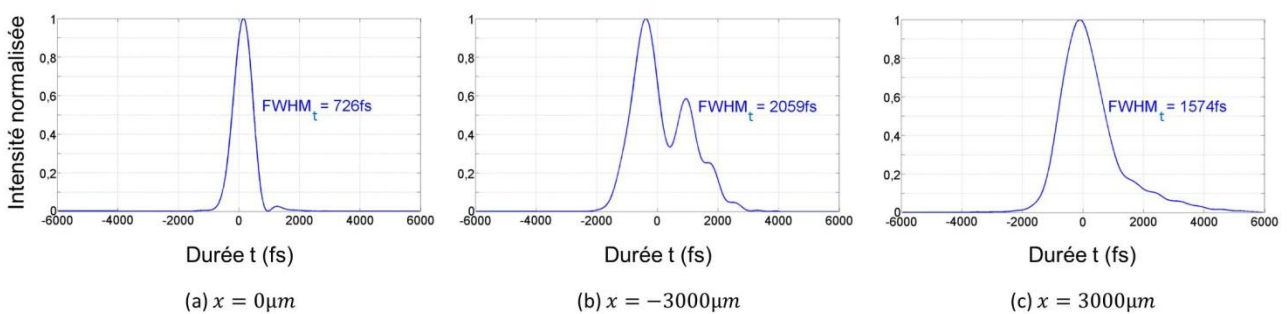


Figure 3-11 : Profils temporels correspondants respectivement aux trois réglages du compresseur décrits dans la Figure 3-10. On donne pour ces trois profils la durée à mi-hauteur (FWHM<sub>t</sub>) de l'impulsion.

A partir de ces profils, on peut aisément calculer les traces d'autocorrélation des impulsions. Dans le paragraphe précédent, nous avons présenté l'autocorrélateur qui permet de mesurer de trace d'autocorrélation. Nous avons donc comparé les traces d'autocorrélation calculées à partir du SPIRITED à celles mesurées avec l'autocorrélateur. Ceci a été réalisé pour les trois configurations du compresseur présentées dans la Figure 3-11 et est donné dans la Figure 3-12. De façon générale, un écart maximal de 6% est mesuré sur les largeurs de traces d'autocorrélation données par les deux systèmes (en vert sur la Figure 3-12). Egalement, on observe une correspondance entre les formes des traces d'autocorrélation mesurées et calculées, notamment sur la Figure 3-12(b) où l'on retrouve pour les deux moyens de mesures un pic au centre de la trace d'autocorrélation.

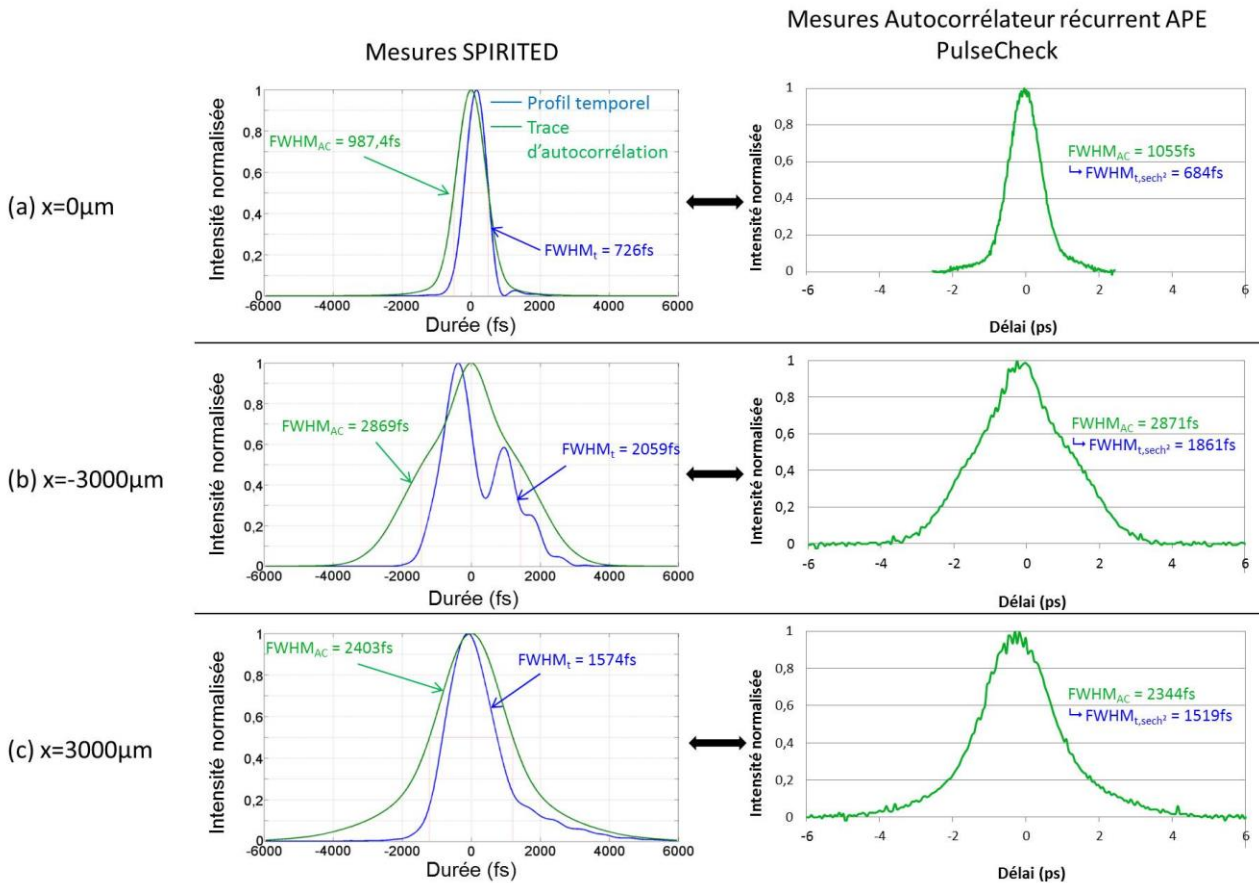


Figure 3-12 : Comparaison des mesures réalisées avec le SPIRITED et avec l'autocorrélateur récurrent APE PulseCheck pour les trois configurations présentées dans la Figure 3-11Figure 3-10. Pour les mesures SPIRITED, on représente en bleu le profil temporel des impulsions et en vert la trace d'autocorrélation correspondante. On indique pour chaque courbe la  $FWHM_{AC}$  qui correspond à la largeur à mi-hauteur des traces d'autocorrélation et la  $FWHM_t$  qui correspond à celle des profils temporels. Pour les mesures d'autocorrélation APE PulseCheck, on représente la trace d'autocorrélation et sa  $FWHM_{AC}$  correspondante. La durée de l'impulsion  $FWHM_{t,sech^2}$  est estimée en appliquant le facteur de déconvolution 1,543 obtenu en faisant l'hypothèse d'une forme temporelle type sécante hyperbolique carrée.

En revanche, l'utilisation du dispositif SPIRITED donne accès directement au profil temporel et par conséquent à la durée d'impulsion. Les durées d'impulsions mesurées avec ce système sont plus longues que celles estimées avec l'autocorrélateur. En effet, la mesure réalisée avec l'autocorrélateur repose sur l'hypothèse d'une forme temporelle type sécante hyperbolique carrée. Par rapport à la mesure par autocorrélation, aucune hypothèse n'est faite sur la forme du profil temporel dans le cas SPIRITED. Un écart d'environ 10% est classiquement mesuré entre ces deux dispositifs. Nous allons donc considérer la durée d'impulsion mesurée par le SPIRITED comme valeur de référence de la largeur temporelle de l'impulsion. Pour un compresseur optimisé, plusieurs mesures SPIRITED ont été réalisées et la durée des impulsions délivrées par le laser est de  $720 \pm 10$ fs. Nous rapportons en annexe d'autres mesures SPIRITED réalisées pour différentes configurations du laser Amplitudes Systèmes. Le principal avantage du SPIRITED est qu'il fournit le « vrai » profil temporel de l'impulsion, qui a un fort impact sur le phénomène d'endommagement laser en régime d'impulsions courtes [94].

### 3.B.3.iii Mesure du contraste des impulsions laser.

La connaissance du profil temporel est une information importante pour comprendre les phénomènes d'absorptions non-linéaires et les mécanismes d'endommagement. Une deuxième information importante concerne la présence d'impulsions secondaires en plus de l'impulsion principale : il peut s'agir de pré-impulsions ou de post-impulsions. La détermination de leur présence correspond à la mesure du contraste

temporel de l'impulsion. Cette mesure a été réalisée avec Jacques Luce (CEA/CESTA/DLP) et Christelle Damiens-Dupont (CEA/CESTA/DLP) avec le dispositif CROSSCO également développé au CEA/CESTA et installé temporairement sur le banc DERIC : il s'agit d'un cross-corrélateur monocoup du troisième ordre qui permet de repérer la présence d'impulsions secondaires sur une fenêtre d'environ 50ps autour de l'impulsion principale. Son schéma de principe et une photographie illustrant le prélèvement du faisceau DERIC en vue de diagnostiquer le contraste de l'impulsion sont donnés dans la Figure 3-13.

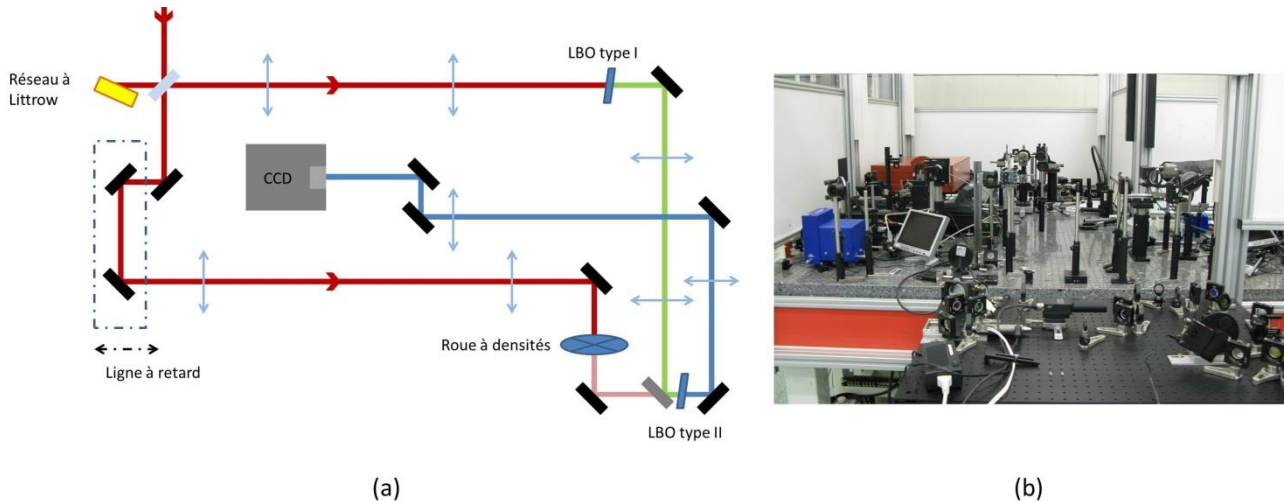


Figure 3-13 : (a) Schéma de principe du CROSSCO. La couleur du faisceau est représentative de sa longueur d'onde. Le faisceau rouge correspond à la première harmonique du signal d'entrée, i.e. à 1053nm. Le faisceau vert la seconde harmonique à 526nm et le faisceau bleu la troisième harmonique à 351nm. (b) Photographie du diagnostic CROSSCO mis en place sur l'installation DERIC.

En entrée du dispositif, une partie du signal collimaté est prélevée et servira à sonder l'autre partie du signal. Ce prélèvement est réfléchi par un réseau positionné à Littrow. Dans le plan du réseau, le front d'énergie est donc tilté et le front d'onde est conservé. La propagation d'une telle impulsion en espace libre est impossible : il est donc nécessaire d'utiliser des systèmes d'imagerie pour imager le plan du réseau dans les différents plans d'intérêt du dispositif. Les plans d'intérêts du dispositif sont :

- Le premier cristal non-linéaire LBO I : un signal incident de longueur d'onde 1053nm (i.e. de pulsation  $1\omega$ ) d'intensité  $I_{1\omega}$  est converti par SHG en un signal à  $2\omega$  d'intensité  $I_{2\omega}$ . La SHG étant un phénomène non-linéaire, l'intensité du signal  $I_{2\omega}$  est proportionnelle au carré du signal incident  $I_{1\omega}$ . La SHG augmente le contraste entre l'impulsion principale et les impulsions secondaires parasites et l'impulsion principale se retrouve nettoyée. Dans le plan du LBO I, on a donc un signal à  $2\omega$  nettoyé, au front d'énergie tilté : ce signal va servir à sonder le signal passant par l'autre voie du CROSSCO
- Le second cristal non-linéaire LBO II : ce cristal va permettre de réaliser une cross-corrélation du 3<sup>ème</sup> ordre. Son plan est conjugué au plan du premier cristal LBO I. Dans le plan du cristal LBO II, on a une interaction entre l'impulsion à  $2\omega$  (au front d'énergie tilté) et l'impulsion à  $1\omega$  (au front d'onde confondu avec son front d'énergie) et donc une génération d'une troisième harmonique (Third Harmonic Generation THG). Le signal à  $3\omega$  issu de la THG est le produit de corrélation entre le signal à  $1\omega$  et celui à  $2\omega$ .
- Le signal de THG qui a lieu dans le cristal LBO II est ensuite imagé dans le plan de la caméra CCD. Afin d'augmenter la dynamique du signal à  $3\omega$ , une lentille cylindrique permet de focaliser le signal selon l'axe qui ne contient pas d'information temporelle, i.e. l'axe perpendiculaire au plan de



dispersion du réseau. Le signal observé sur la caméra est donc une ligne horizontale portant l'information temporelle de l'impulsion d'entrée.

La ligne à retard permet de régler le délai entre les deux impulsions qui vont cross-corréler. Dans la Figure 3-14, on schématise l'interaction dans le LBO II entre l'impulsion à  $2\omega$  propre et l'impulsion à  $1\omega$  présentant des post-impulsions et des pré-impulsions. Les acquisitions correspondant aux différents délais sont également reportées. Sur la Figure 3-13, on voit également que le faisceau  $1\omega$  traverse une roue à densités. Les densités optiques (DO) de cette roue permettent d'atténuer le signal  $1\omega$  et par conséquent le signal  $3\omega$  afin de ne pas saturer la caméra. La modification des DO permet également d'améliorer le contraste de l'acquisition. Ainsi, sur la Figure 3-14(b), la DO utilisée est une DO de 6, qui atténue fortement le signal : le signal autour de l'impulsion principale n'est pas visible. Sur la Figure 3-14(c), la DO a été remplacée par une DO de 4 : on voit apparaître une post-impulsion 20ps après l'impulsion principale.

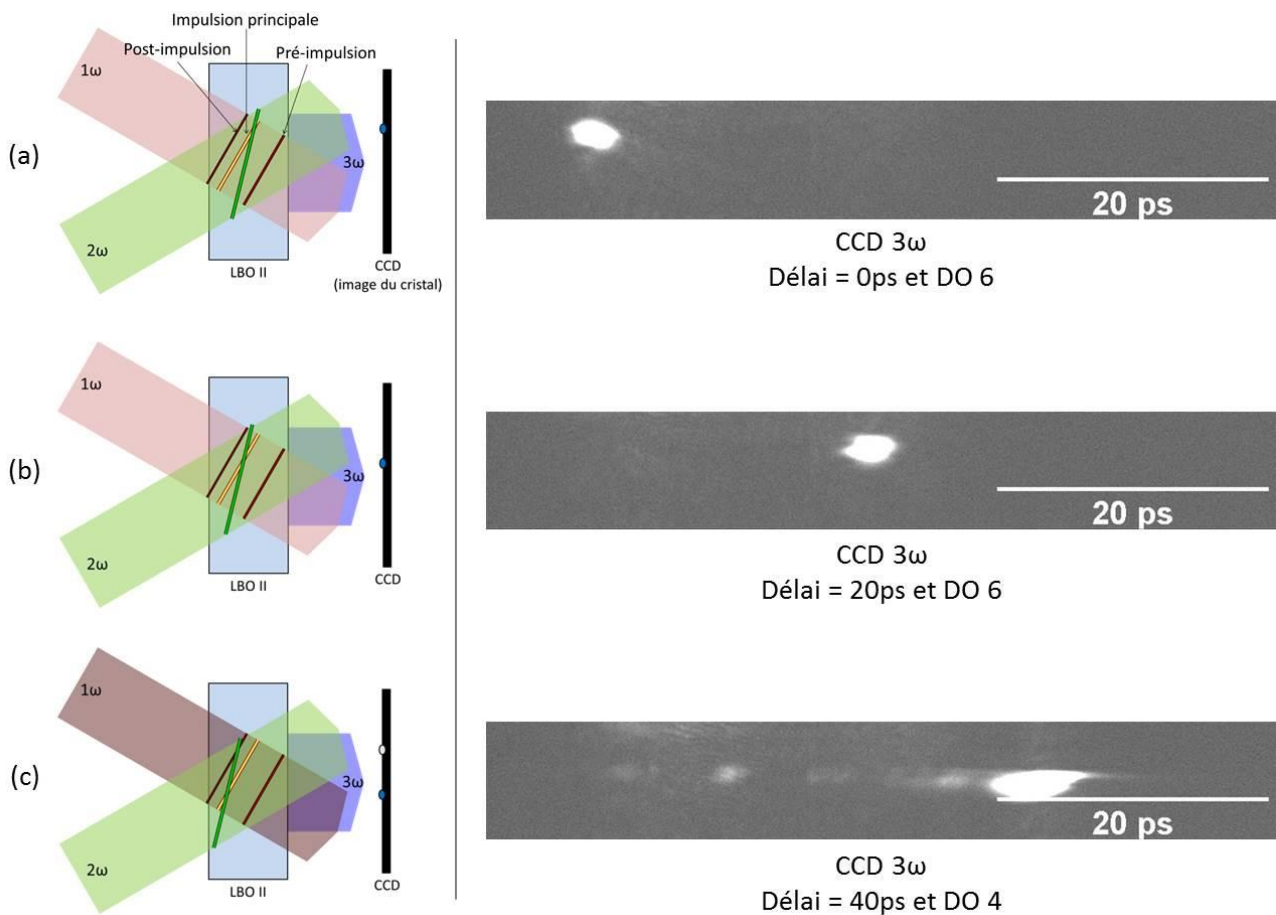


Figure 3-14 : Principe de la cross-corrélation dans le cristal non-linéaire LBO II du CROSSCO. Sur les schémas, le trait vert représente le signal sonde à  $2\omega$  tilté. Les traits jaunes-rouges représentent le signal initial à sonder avec en jaune l'impulsion principale et en rouge les impulsions secondaires. Trois délais différents introduits par la ligne à retard illustrent le principe de sondage de l'impulsion à  $1\omega$  par l'impulsion tiltée à  $2\omega$ . (a)-(b) Entre ces deux acquisitions, un délai de 20ps a été introduit par la ligne à retard et le signal à  $2\omega$  va davantage sonder les post-impulsions : on voit l'impulsion principale se déplacer sur le capteur CCD. La DO de 6 permet d'observer l'impulsion sans endommager le capteur CCD. (c) Un délai de 40ps est imposé et la DO est remplacée par une DO de 4 : cela permet d'augmenter l'efficacité de la THG et donc de faire ressortir les post-impulsions. Une post-impulsion située à 20ps de l'impulsion principale est visible.

Un traitement de plusieurs acquisitions réalisées avec le CROSSCO pour différents délais a permis de mesurer le contraste de l'impulsion DERIC sur une fenêtre de 200ps. Il est donné dans la Figure 3-15. Il révèle la présence de :

- 2 pré-impulsions situées 95ps et 75ps avant l'impulsion principale et d'intensités  $10^{-3}$  fois inférieures à celle de l'impulsion principale.
- 1 post-impulsion située 20ps après l'impulsion principale (visualisée sur la Figure 3-14(c)) et d'intensité  $10^{-4}$  fois inférieure à celle du pic maximal. Ces impulsions secondaires sont négligeables par rapport à l'impulsion principale et n'ont pas d'influence sur les tests d'endommagement qui seront menés avec ce laser par la suite. L'origine de ces impulsions secondaires n'a pas été déterminée. Toutefois, nous émettons l'hypothèse qu'il s'agit de réflexions parasites sur les faces arrière des composants de la cavité régénérative du laser.

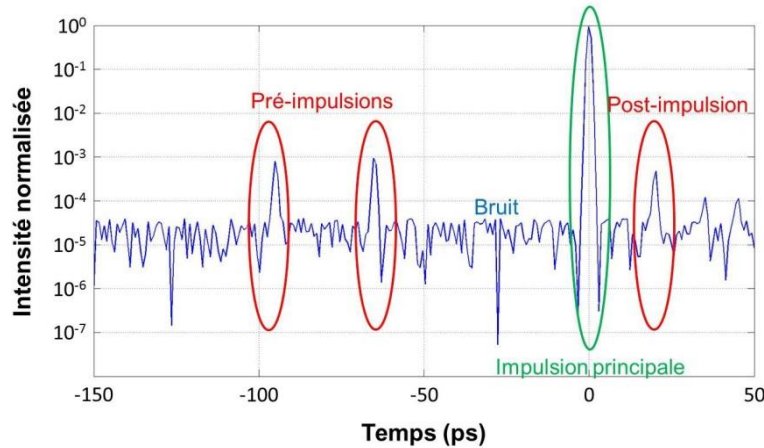


Figure 3-15 : Mesure du contraste du laser sub-picoseconde utilisé sur le banc DERIC.

D'autres instruments existent pour mesurer le contraste d'un laser. On peut notamment citer un instrument SEQUOIA commercialisé par la société Amplitude Technologie. Il s'agit d'un instrument fonctionnant en mode récurrent sur le même principe que le CROSSCO (i.e. cross-corrélateur du 3<sup>ème</sup> ordre) mais sans tilt du front d'énergie du signal  $2\omega$ . Le principal avantage du CROSSCO par rapport au SEQUOIA est donc sa possibilité de réaliser cet échantillonnage sur une plage temporelle étendue à 50ps.

### 3.C Synthèse des caractéristiques du banc DERIC.

Caractéristiques des impulsions	
Longueur d'onde centrale	1052,8nm
Largeur spectrale	2,16nm
Durée d'impulsion minimale	720±20fs
Contraste temporel	1 post-impulsion $10^{-4}$ fois moins intense que l'impulsion principale 2 pré-impulsions $10^{-3}$ fois moins intense que l'impulsion principale
Energie en sortie laser	2,5mJ
Fréquence de répétition	10Hz ou 100 Hz

<b>Caractéristiques des irradiations</b>	
<b>Profil spatial</b>	Gaussien
<b>Diamètre du faisceau à 1/e</b>	155 $\mu$ m
<b>Surface équivalente <math>S_{eq}</math></b>	1,9x10 <sup>-4</sup> cm <sup>2</sup>
<b>Longueur de Rayleigh <math>2Z_R</math></b>	70mm
<b>Zone où <math>S_{eq} &lt; 1, 1S_{eq,waist}</math></b>	20mm
<b>Energie maximale sur échantillon</b>	2,3mJ
<b>Energie limite autorisée sur échantillon</b>	1,5mJ
<b>Fluence maximale accessible</b>	7,9J/cm <sup>2</sup>

Dans ce paragraphe, nous souhaitons récapituler les caractéristiques du banc DERIC qui a été développé. Au niveau de l'échantillon, le faisceau a un profil spatial gaussien. Durant cette thèse, une seconde voie d'endommagement a également été développée sur l'installation DERIC : elle utilise un dispositif de mise en forme spatiale permettant d'obtenir sur échantillon un profil dit Top-Hat. La répartition d'énergie dans le faisceau est homogène sur une surface carrée au niveau de l'échantillon. Le développement de cette voie Top-Hat est décrit en annexe.

## Conclusion du Chapitre 3

Dans ce chapitre, nous avons présenté le développement du banc DERIC. La connaissance des caractéristiques spatiales et énergétiques des impulsions est primordiale pour réaliser les tests d'endommagement : elle permet de remonter à la notion de densité d'énergie ou fluence qui caractérise les irradiations laser lors des tests d'endommagement. Nous avons ici décrit la mise en place sur le banc d'endommagement DERIC de l'instrumentation permettant une mesure de la fluence d'irradiation tir à tir. La description de ces équipements nous a permis d'estimer l'incertitude sur la mesure absolue de la fluence à 10%.

Une attention particulière a été portée à la mesure des caractéristiques temporelles des impulsions délivrées par le laser Amplitude Systèmes. Deux diagnostics originaux développés au CEA/CESTA ont été utilisés afin de caractériser finement les impulsions lasers : il s'agit du SPIRITED, qui mesure le profil temporel d'une impulsion, et du CROSSCO qui mesure le contraste d'une impulsion en monocoup sur une fenêtre temporelle de 50ps. Avec le SPIRITED, nous pouvons annoncer une durée d'impulsion du laser DERIC de 720fs. Par rapport à une mesure réalisée avec un autocorrélateur, aucune hypothèse par rapport à la forme du profil temporel n'est à faire puisque le profil est directement mesuré. Le CROSSCO a permis de détecter 2 pré-impulsions et 1 post-impulsion. Toutefois, leur intensité est négligeable par rapport à l'intensité de l'impulsion principale et elles n'auront pas d'influence sur les tests d'endommagement menés par la suite.

La connaissance de ces paramètres est nécessaire puisqu'elle valide la justesse des différentes expériences menées au cours de cette thèse et qui seront présentées dans les chapitres suivants.



## Chapitre 4 Méthode de qualification des composants optiques en régime sub-picoseconde.

Afin de quantifier la résistance au flux laser d'optiques en laboratoires, des protocoles de tests ont été définis et référencés dans les normes ISO. Ces normes permettent d'assurer une cohérence entre les tests d'endommagement laser réalisés par les différents laboratoires en définissant précisément des techniques de mesurage. Egalement, elles permettent de répondre à la demande du monde industriel pour spécifier ou qualifier un composant. Dans ce chapitre, il est montré que l'endommagement laser en régime sub-picoseconde peut être vu sous deux angles différents. Le premier, communément adopté, permet de voir l'endommagement laser dans ce régime temporel comme un phénomène déterministe. Le seuil d'endommagement est lié aux propriétés intrinsèques des matériaux (largeur de la bande interdite) mais également à la répartition du champ électrique  $E$  dans les composants optiques. Cette approche s'appuie sur les mécanismes d'absorption non-linéaire décrits dans le Chapitre 1, fortement dépendants de l'intensité. Un dépôt d'énergie critique entraîne l'endommagement du matériau à partir d'un seuil bien précis. Sur cette base, un protocole original qui permet de déterminer le seuil d'endommagement d'un composant à l'aide d'un seul fort tir laser a été proposé. Il consiste à corrélérer très exactement le profil d'un dommage avec les fluences locales du faisceau : la fluence seuil d'endommagement est relevée aux extrémités du dommage. Dans cette thèse l'endommagement laser avec des impulsions courtes a été abordé pour la première fois avec une approche probabiliste, grâce à l'utilisation d'un second protocole de test, développé pour révéler les défauts d'une optique grâce à un balayage laser de l'optique. Nous verrons que ces deux points de vue sont complémentaires et apportent de nouvelles informations utiles à l'optimisation des moyens de fabrication des composants.



## 4.A Présentation des procédures de test existantes.

En 2011, la norme ISO 21154 a été rééditée afin de définir et de standardiser les procédures de test d'endommagement laser auprès de la communauté scientifique [30]. La définition des paramètres du faisceau laser, les méthodes de tests 1-on-1 et S-on-1 ainsi que les moyens de détection de l'endommagement y sont décrits. Les mécanismes de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes rendent ces deux dernières procédures particulièrement adaptées pour étudier les caractéristiques intrinsèques d'un matériau. Nous allons dans un premier temps décrire ces techniques de test, puis nous verrons les résultats qu'elles apportent à l'étude de l'endommagement laser dans le régime sub-picoseconde.

### 4.A.1 Définition de la méthode 1-on-1.

La méthode 1-on-1 est une technique très largement utilisée par la communauté de l'endommagement laser pour déterminer la fluence seuil de tenue au flux d'un composant optique, ou LIDT [30]. Son objectif est d'étudier la résistance au flux laser d'un composant optique lorsqu'il est irradié par une seule impulsion laser. De ce test, on déduit une probabilité d'endommagement du composant en fonction de la fluence de tir. Le protocole de test est illustré en Figure 4-1. Plusieurs fluences sont testées. Pour chaque fluence  $F$ ,  $N$  sites sont irradiés. On obtient au final une matrice de sites testés. Pour chaque fluence, le nombre de sites endommagés  $n_{dom}$  est comptabilisé et on en déduit une probabilité d'endommagement  $P_{dom}$  en fonction de la fluence  $F$  :

$$P_{dom,F} = \frac{n_{dom,F}}{N}$$

Les sites endommagés sont discriminés au moyen d'un microscope DIC. La fluence seuil d'endommagement  $F_{th}$  est déterminée comme la moyenne de la plus haute fluence  $F_0$  pour laquelle la probabilité d'endommagement est nulle et la plus basse fluence  $F_1$  pour laquelle cette probabilité est non-nulle. L'incertitude sur la fluence seuil est définie comme l'écart entre  $F_{th}$  et  $F_0$  ou  $F_1$ .

L'incertitude sur la mesure de la fluence seuil est liée au pas choisi entre les fluences de test. Une recherche dichotomique de la fluence seuil est généralement adoptée pour :

- réduire le nombre de fluences à tester,
- encadrer de façon fine la fluence seuil d'endommagement.

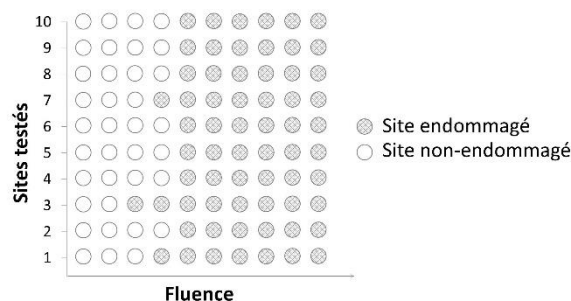
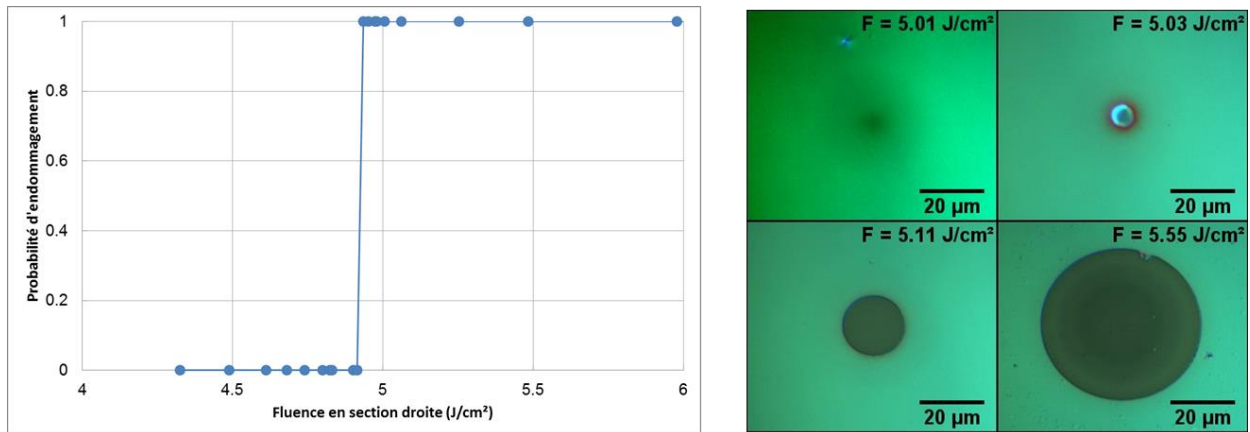


Figure 4-1 : Procédure de test d'endommagement 1-on-1. Chaque colonne représente une fluence de test. Pour chaque fluence, plusieurs sites sont testés. Le résultat est donné en termes de probabilité d'endommagement en fonction de la fluence.



Un exemple de test de tenue au flux 1-on-1 d'une monocouche d'oxyde de scandium est donné en Figure 4-2. Il illustre le caractère de l'endommagement laser d'un matériau en régime sub-picoseconde. Autrement dit, il existe une fluence seuil qui marque le passage d'une probabilité d'endommagement nulle à une probabilité d'endommagement de 100%. Cela résulte de mécanismes non-linéaires tels que l'absorption multi-photonique et l'avalanche électronique. Les processus d'endommagement ont été décrits dans le Chapitre 1.



Ce comportement déterministe se rencontre également sur des optiques plus complexes, telles que des miroirs. Prenons l'exemple de trois miroirs diélectriques à haute réflectivité type quart d'onde. Leurs caractéristiques sont données dans le Tableau 4-1. Ils vont nous servir de fil conducteur dans ce chapitre.

Echantillon	Procédé de fabrication	Structure	Conditions d'utilisation
Miroir 1	Evaporation par faisceau d'électrons + assistance ionique	Verre: (HB) <sup>15</sup> H 2B: Air	Angle d'incidence : 45° Polarisation P
Miroir 2	Evaporation par faisceau d'électrons	Verre: (HB) <sup>17</sup> H 2B: Air	Angle d'incidence : 45° Polarisation P
Miroir 3	Evaporation par faisceau d'électrons	Verre: (HB) <sup>11</sup> H 2B: Air	Angle d'incidence : 40° Polarisation S

Tableau 4-1 : Caractéristiques de trois miroirs quart-d'onde  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ . La nomenclature H (ou B) traduit une couche de matériau haut indice  $\text{HfO}_2$  (ou une couche de matériau bas indice  $\text{SiO}_2$ ), quart d'onde à l'incidence d'utilisation.

Un aspect déterministe de l'endommagement laser a été constaté sur ces 3 miroirs lors de tests 1-on-1. Les résultats sont présentés dans la Figure 4-3. Pour les miroirs 1 et 2, la transition entre une probabilité d'endommagement de 0% et de 100% est très marquée. Les seuils d'endommagement de ces miroirs sont respectivement  $F_{th,1} = 2,70 \pm 0,05 \text{ J/cm}^2$  et  $F_{th,2} = 2,93 \pm 0,09 \text{ J/cm}^2$ . Pour le miroir 3, les résultats sont davantage chahutés pour des fluences de tests inférieures à  $3,4 \text{ J/cm}^2$ . Une observation plus fine du miroir 3, réalisée au microscope DIC et reportée dans la Figure 4-4, montre la différence entre un dommage initié à une fluence inférieure à  $3,4 \text{ J/cm}^2$  et un dommage initié à une fluence supérieure à  $3,4 \text{ J/cm}^2$ . Ce dernier est également comparé aux dommages initiés sur les miroirs 1 et 2 à des fluences supérieures à leur fluence seuil respectives. Ainsi pour le miroir 3, pour des fluences inférieures à  $3,4 \text{ J/cm}^2$ , les dommages sont initiés sur des défauts macroscopiques localisés sur miroir, justifiant une morphologie très ponctuelle.

Nous reviendrons sur ce phénomène dans la section 4.C de ce chapitre. Pour des fluences supérieures à  $3,4 \text{ J/cm}^2$ , l'endommagement est systématique et intrinsèque au composant. En considérant uniquement les dommages intrinsèques au composant, i.e. indépendant des défauts macroscopiques du miroir, il est possible d'affiner le résultat du test 1-on-1 pour ce miroir et le seuil d'endommagement du miroir 3 est déterminé à  $F_{th,3} = 3,41 \pm 0,04 \text{ J/cm}^2$ .

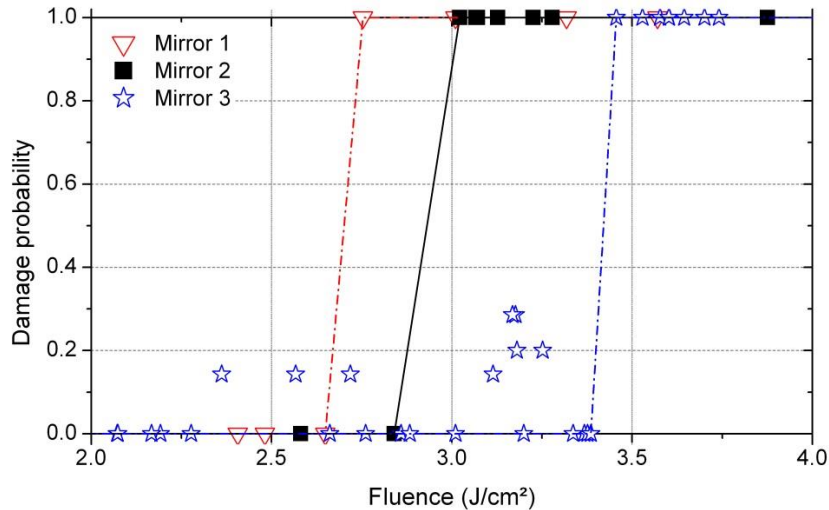


Figure 4-3 : Résultats des tests 1-on-1 menés sur les 3 miroirs décrits dans le Tableau 4-1. Les miroirs ont été testés dans leurs conditions d'utilisation. Les fluences sont exprimées en termes de fluence en section droite, i.e. la fluence mesurée dans un plan perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau. Les seuils de tenue au flux  $F_{th}$  des miroirs 1 et 2 sont respectivement  $F_{th,1} = 2,70 \pm 0,05 \text{ J/cm}^2$  et  $F_{th,2} = 2,93 \pm 0,09 \text{ J/cm}^2$ . Pour le miroir 3,  $F_{th,3} = 3,41 \pm 0,04 \text{ J/cm}^2$ .

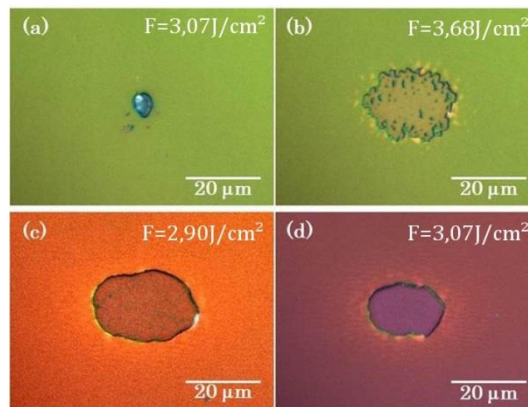


Figure 4-4 : Observations réalisées au microscope DIC de dommages initiés durant des tests 1-on-1 sur les miroirs 1, 2, et 3 (Tableau 4-1). (a) et (b) correspondent au miroir 3 (dommages initiés à  $3,07 \text{ J/cm}^2$  et  $3,68 \text{ J/cm}^2$  respectivement). (c) est un dommage initié sur le miroir 1 à  $2,90 \text{ J/cm}^2$  et (d) est un dommage initié sur le miroir 2 à  $3,07 \text{ J/cm}^2$ . Le dommage (a) présente une morphologie ponctuelle très différente des trois autres sites.

La présence de défauts sur le miroir 3, qui participent à la diminution de la résistance au flux laser du composant, illustre les limites d'un test 1-on-1 classique dans le régime sub-picoseconde. Afin de qualifier de façon plus fine la qualité d'un composant optique, il semble nécessaire de quantifier ces défauts ainsi que leurs effets sur la tenue au flux laser. Une procédure Rasterscan, complémentaire au 1-on-1, a été mise en place dans le domaine sub-picoseconde et sera décrite dans la section 4.C.

#### 4.A.2 Définition de la méthode S-on-1.

La méthode S-on-1 est similaire à la méthode 1-on-1 à la différence que les sites testés sont irradiés S fois à une fluence constante. Pour chaque fluence de test, une probabilité d'endommagement du composant

avec  $S$  impulsions est mesurée. Cette procédure de test, également répandue dans la communauté de l'endommagement laser, permet de mettre en évidence le phénomène de fatigue [27]. Ce phénomène a été décrit dans le Chapitre 1. Concernant notre banc d'étude décrit dans le Chapitre 3, la fréquence de répétition du laser durant un test  $S$ -on-1 est de 10Hz et donc les effets thermiques sont négligés. La méthode  $S$ -on-1 est très intéressante d'un point de vue fiabilisation/conception d'un système laser. Elle apporte des informations quant à la durée de vie d'un matériau dans ses conditions réelles d'utilisation, c'est-à-dire lorsqu'il est soumis à un très grand nombre de tirs laser.

Dans la Figure 1-15 (b), pour  $S=1$  jusqu'à plusieurs dizaines de tirs, le seuil de tenue au laser décroît très rapidement avec le nombre de tirs laser. Pour  $S>100$ , le seuil varie asymptotiquement avec  $S$ . Il s'agit d'un comportement classique observé dans les études d'endommagement laser. Des tests  $S$ -on-1 ont été également réalisés sur les trois miroirs décrits dans le Tableau 4-1. On reporte les résultats de ces tests dans le Tableau 4-2. Des effets de fatigue ont également été constatés avec une diminution du seuil d'endommagement entre le 1-on-1 et le 100-on-1 allant jusqu'à 17%.

	LIDT (J/cm <sup>2</sup> )		
	1/1	10/1	100/1
Miroir 1	2,70	2,61	2,54
Miroir 2	2,93	2,78	2,50
Miroir 3	3,41	3,32	3,27

Tableau 4-2 : Résultats des tests 1-on-1 et  $S$ -on-1 pour les trois miroirs  $R_{\max}$  décrits dans le Tableau 4-1 .

En considérant le miroir 3, le seuil 100-on-1 de ce miroir est donné à 3,27 J/cm<sup>2</sup>. Sur la Figure 4-4, il a été montré qu'une fluence de 3,07 J/cm<sup>2</sup> était suffisante pour initier un endommagement laser, sous condition de présence d'un défaut. Comme pour la méthode 1-on-1, la présence des défauts n'est pas prise en compte lors de tests  $S$ -on-1 et la qualification d'une optique via ces méthodes est donc limitée.

#### 4.B Méthode de détermination du seuil d'endommagement par tir unique.

Dans cette partie, nous allons considérer que le composant est dépourvu de défauts localisés, même en faible densité. La méthode 1-on-1, présentée dans la section 4.A.1, permet de mesurer une fluence seuil d'endommagement, intrinsèque à la nature des matériaux et à la structure du composant. Lors de cette procédure, une centaine de sites sont testés au flux à l'aide d'un faisceau de typiquement quelques centaines de microns. Entre chacun de ces sites testés, un pas est introduit afin d'éviter les effets collatéraux tels que des effets de fatigue ou de pollution particulaire due à l'éjection de matière lors de l'endommagement. Tel que suggéré par la norme ISO 21254-2011, ce pas est généralement choisi égal à 4 fois le diamètre du faisceau. *In fine*, lors d'un test 1-on-1 la surface consommée sur le composant, somme de la surface testée et du pas entre les sites, est centimétrique. Dans certaines conditions, la surface disponible peut être inférieure au centimètre et il a été intéressant de développer une technique de mesure du seuil de tenue au flux permettant d'optimiser la surface consommée sans altérer la précision du test. Cette technique est appelé méthode Mono-Shot [95]. Afin de présenter la procédure, nous avons appliqué la méthode à une monocouche de silice d'épaisseur 208nm déposée sur un substrat de BK7. Le test est réalisé à une incidence de 45° et le faisceau est polarisé verticalement (polarisation S).

Pour la monocouche de silice considérée dans cette étude et dans les conditions opératoires décrites précédemment, la répartition de l'EFI à l'intérieur de la structure est reportée en Figure 4-5. Ce calcul a été réalisé grâce au logiciel de calcul de couches minces optiques TFCalc [68].

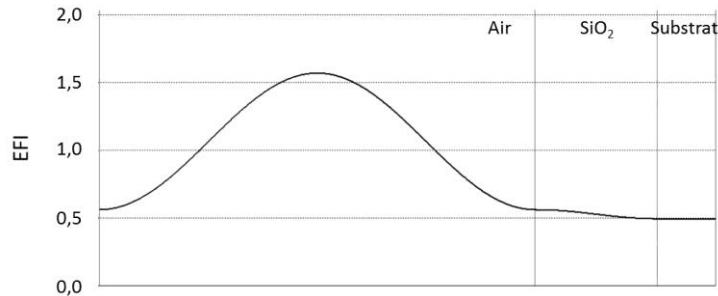


Figure 4-5 : EFI dans la monocouche de silice. Le flux laser arrive de la gauche. La distribution du champ est calculée pour un angle d'incidence de 45°, une longueur d'onde de 1053nm et une polarisation S.

Une caractéristique importante pour cette monocouche est que la surintensification maximale du champ électrique a lieu à l'interface entre l'air et la monocouche. La Figure 4-6 donne des morphologies d'endommagement de cette monocouche en fonction de la fluence de tir. Les fluences de tir pour ces deux sites sont (a) 6,18 /cm<sup>2</sup> et (b) 6,69J/cm<sup>2</sup>. Les fluences sont exprimées dans un plan perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau. En complément de cette observation au microscope DIC, une mesure du profil des zones endommagées a été réalisée à l'aide d'un profilomètre optique. Les profils mesurés révèlent un creusement de la monocouche jusqu'à une délamination complète de la monocouche pour de fortes fluences. Ces morphologies sont cohérentes avec un renforcement fort du champ E à la surface du composant : lors d'une irradiation laser, la densité d'électrons et le dépôt d'énergie induite seront plus forts à la surface de la monocouche et donc cette zone sera endommagée préférentiellement [96]. *Contrario*, pour la monocouche d'oxyde de scandium présentée dans la section 4.A.1 testée à 15° en polarisation S, le renforcement maximal du champ E a lieu à l'interface entre la monocouche et le substrat, tel qu'illustré sur la Figure 4-5. Ceci conduit à un effet de soulèvement de la couche, observé au microscope DIC sur la Figure 4-2 et caractérisé par une irisation de la surface due à la présence d'une couche d'air entre la couche et le substrat, puis une rupture et une délamination totale de la couche pour des fluences plus fortes. La morphologie de l'endommagement peut donc différer d'un composant à un autre.

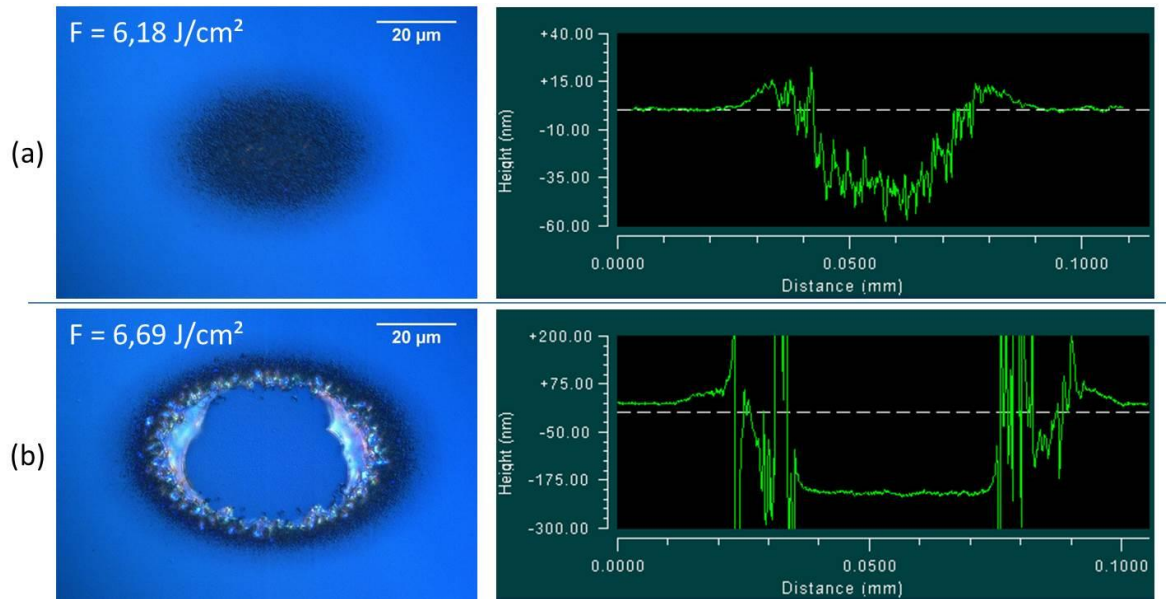


Figure 4-6 : Morphologies de dommages obtenus sur la monocouche de silice. Les observations ont été réalisées au microscope DIC (figures de gauche) et au profilomètre optique (figures de droite). Le profil spatial gaussien du faisceau ainsi que l'angle d'incidence de  $45^\circ$  explique la forme elliptique des dommages. Les fluences de tir pour ces deux sites sont (a)  $6,18 \text{ J/cm}^2$  et (b)  $6,69 \text{ J/cm}^2$ . Les fluences sont exprimées dans un plan perpendiculaire à l'axe de propagation du faisceau.

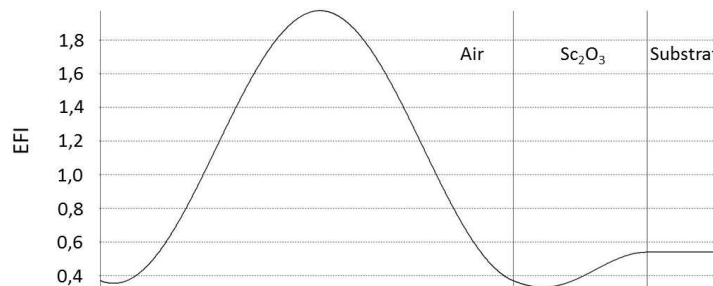


Figure 4-7 : Calcul de l'EFI dans une monocouche d'oxyde de scandium illuminée à  $15^\circ$  en polarisation S. Un fort renforcement du champ électrique est observé à l'interface entre la monocouche et le substrat.

Nous rapportons tout d'abord les résultats d'un test de tenue au flux laser obtenue sur la monocouche de silice en Figure 4-8. et réalisé sur le banc d'endommagement laser DERIC. Le seuil d'endommagement laser est déterminé à  $5.37 \pm 0.06 \text{ J/cm}^2$ . L'incertitude sur la mesure de cette fluence seuil est d'environ 1% et peut être diminuée en testant davantage de sites à des fluences autour de cette valeur seuil afin de l'encercler plus finement. La fluence d'une irradiation avec un faisceau gaussien est défini selon la norme ISO 21254:2011 [30] comme le rapport entre l'énergie totale de l'impulsion laser et la surface équivalente du faisceau (surface du faisceau à  $1/e$ ). Cette fluence ainsi calculée correspond à la fluence maximale  $F_{\max}$  au sommet de la gaussienne.

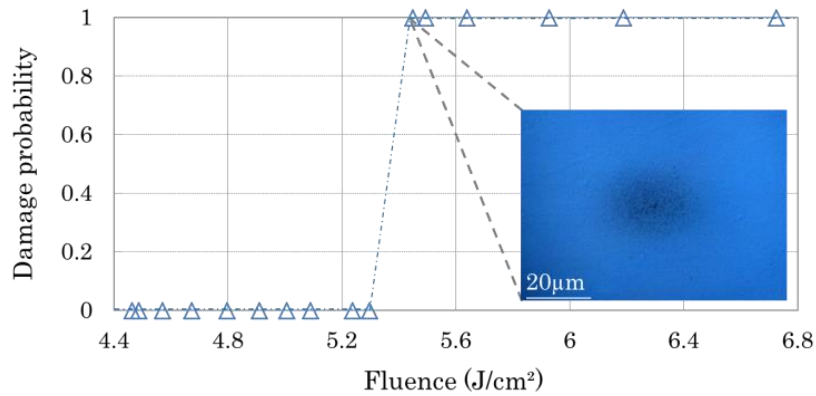


Figure 4-8 : Résultat d'un test d'endommagement 1-on-1 sur monocouche de silice. La fluence seuil est de  $5.37 \pm 0.06$  J/cm<sup>2</sup>. L'encart montre la morphologie d'un dommage obtenu à une fluence de 5.44 J/cm<sup>2</sup>, i.e. une fluence très légèrement supérieure à la fluence seuil.

A des fluences très légèrement supérieures à la fluence seuil d'endommagement, on observe sur le composant une modification irréversible de surface de la monocouche, avec une texturation de la surface. L'angle d'incidence est de 45°, ce qui explique la forme elliptique des dommages. Pour des fluences supérieures à 6 J/cm<sup>2</sup>, l'endommagement est plus important et un phénomène de délamination de la couche mince optique commence à apparaître (voir Figure 4-8). Sur ce type de dommage, une observation fine réalisée au microscope DIC montre toutefois que la surface au bord du dommage est également texturée. Sur la Figure 4-9(b), la limite de l'aire endommagée est représentée par un trait blanc : à droite de cette limite, le microscope DIC ne permet plus de détecter de modification de l'état de surface de la monocouche.

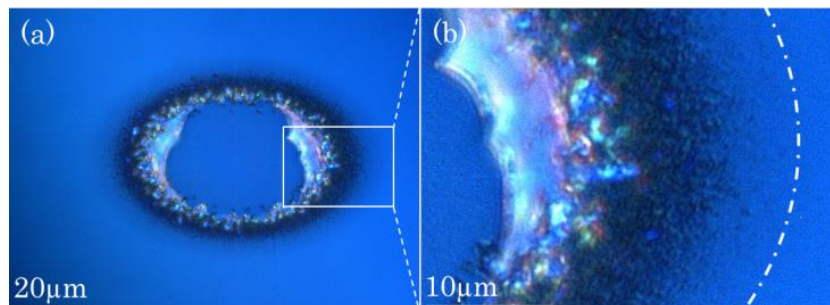


Figure 4-9 : (a) Morphologie d'un dommage sur la monocouche de silice obtenue pour une fluence de 6.69 J/cm<sup>2</sup>. (b) Un zoom de la zone périphérique au dommage montre la présence d'une faible modification de la surface, identique à celle observée sur la Figure 4-8. La ligne pointillée représente la limite de la zone endommagée pour ce site.

Puisque le centre du dommage est plus affecté que ses bords, que la modification de l'état de surface évolue entre le centre et la périphérie et en considérant le profil gaussien du faisceau, une corrélation entre la répartition de l'énergie dans le faisceau et la morphologie du dommage est intuitée. Nous allons faire par la suite l'hypothèse que chaque région micrométrique du site testé se comporte de manière indépendante. Cette hypothèse est appuyée par le caractère déterministe de l'endommagement laser et l'absence d'effet de diffusion thermique dans le régime sub-picoseconde [21]. En se plaçant à cette échelle micrométrique, chaque zone du site est donc illuminée à une densité d'énergie différente. Afin d'étudier le lien entre la répartition de l'énergie dans le faisceau et la morphologie de l'endommagement, il est nécessaire d'enregistrer le profil spatial du faisceau ainsi que l'énergie totale de l'impulsion pour chaque tir. Sur la Figure 4-10(a), on rapporte le profil du faisceau enregistré lors d'un tir. Sa forme gaussienne présente un faible gradient au centre du faisceau et un fort gradient sur les flancs de la Gaussienne, tel qu'illustré sur la Figure 4-10(b).

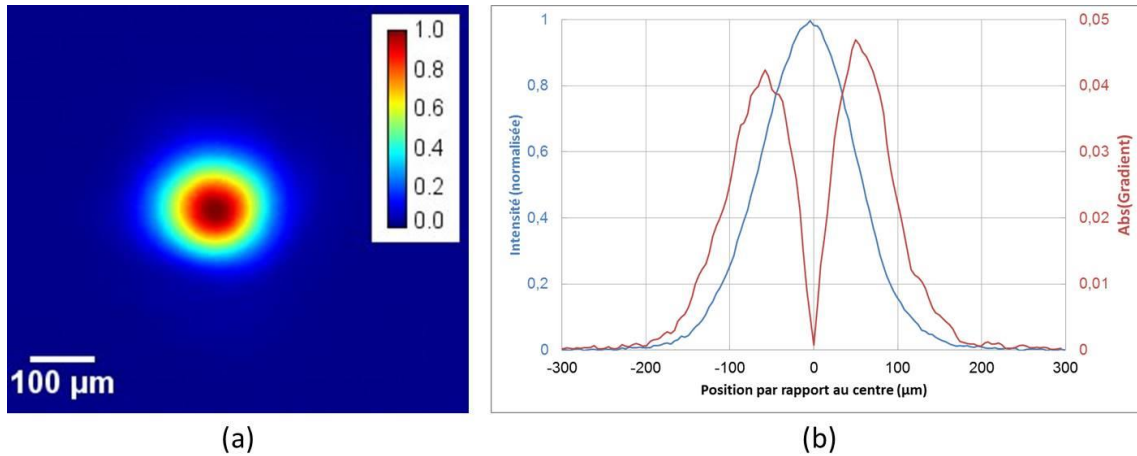


Figure 4-10 : (a) Profil spatial gaussien du faisceau, enregistré perpendiculairement à l'axe de propagation, dans un plan équivalent à celui de l'échantillon. Le diamètre du faisceau à  $1/e$  est de  $158\mu\text{m}$ . (b) Coupe horizontale du profil spatial du faisceau (courbe bleue) et le gradient en intensité associé (courbe rouge, en valeurs absolues).

A l'aide du profil spatial, il est donc possible de calculer la fluence locale en différents points du faisceau. Lors d'une irradiation, un site est ainsi illuminé par un continuum de fluence, de  $F_{\text{max}}$  au centre du faisceau à  $0 \text{ J/cm}^2$  en direction des pieds de la gaussienne.

Dans un second temps, une observation du dommage initié est réalisée au microscope DIC. Un traitement d'image permet d'encercler la zone endommagée. Le profil spatial du faisceau est ensuite centré et superposé au profil endommagé : la fluence locale dans le faisceau qui a illuminé les bords de la zone endommagée correspond à la fluence minimale nécessaire à l'initiation de l'endommagement. En d'autres termes, il s'agit de la fluence seuil d'endommagement ou LIDT. Cette technique est illustrée sur trois dommages différents sur la Figure 4-11. Les fluences seuils sont mesurées sur la section horizontale du dommage. Pour ces 3 exemples, elles sont égales à (a)  $5.64 \text{ J/cm}^2$ , (b)  $5.62 \text{ J/cm}^2$  et (c)  $5.36 \text{ J/cm}^2$ . Pour chacun de ces trois sites, nous avons également appliqué cette méthode à tout le pourtour de la zone endommagée. Des valeurs moyennes du LIDT sont mesurées à (a)  $5.68 \pm 0.20 \text{ J/cm}^2$ , (b)  $5.56 \pm 0.15 \text{ J/cm}^2$  et (c)  $5.34 \pm 0.14 \text{ J/cm}^2$ , l'incertitude étant définie comme deux fois l'écart-type. L'incertitude, ici inférieure à 3.5%, est du même ordre de grandeur que celle obtenue avec la méthode classique 1-on-1 (1% pour le test 1-on-1 présenté en Figure 4-8).

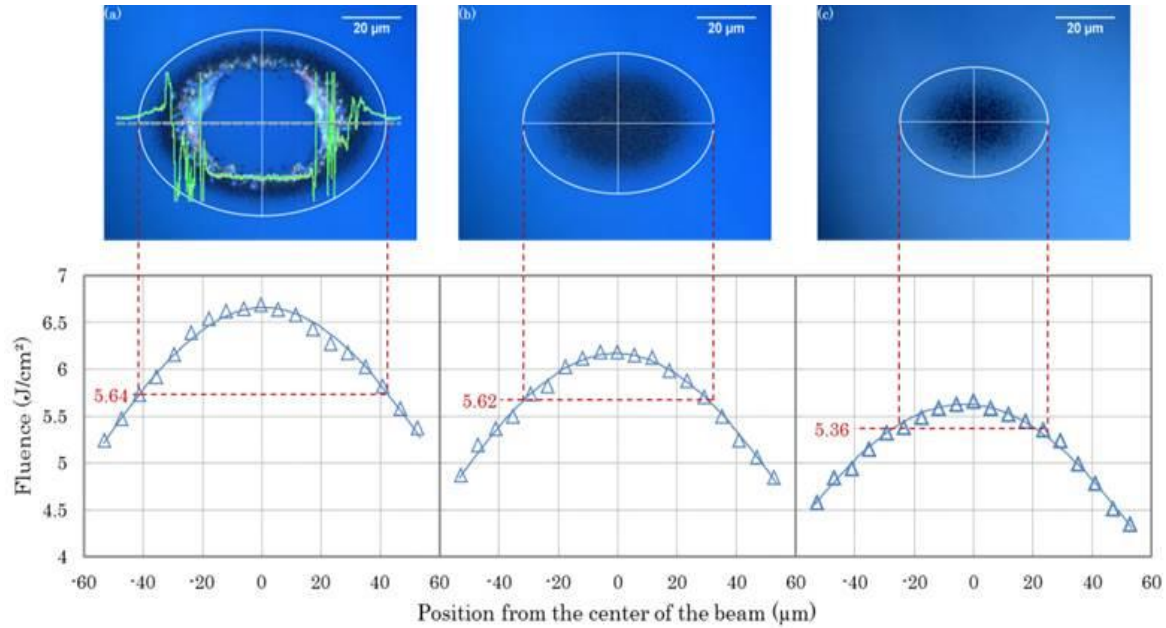


Figure 4-11 : Illustration de la méthode mono-shot sur trois dommages réalisés sur la monocouche de silice. Les fluences d'initiation des dommages sont respectivement (a)  $6.69 \text{ J/cm}^2$ , (b)  $6.19 \text{ J/cm}^2$  et (c)  $5.66 \text{ J/cm}^2$ . Des observations au microscope DIC permettent de cercler les surfaces endommagées. Pour les 3 dommages, les profils spatiaux sont superposés. La lecture des fluences locales correspondant aux limites des dommages permet de déterminer 3 fluences seuils : (a)  $5.64 \text{ J/cm}^2$ , (b)  $5.62 \text{ J/cm}^2$  et (c)  $5.36 \text{ J/cm}^2$ . Ces valeurs sont à comparer à la fluence seuil déterminée avec la procédure 1-on-1, égale à  $5.37 \pm 0.06 \text{ J/cm}^2$ .

Pour cet échantillon, un écart maximum de 5.8% a été mesuré entre la fluence seuil déterminée via la méthode mono-shot et la fluence seuil déterminée via la procédure classique 1-on-1 ( $5.37 \pm 0.06 \text{ J/cm}^2$ ). Ces résultats sont résumés dans la première ligne du Tableau 4-3. D'autres matériaux ont été testés avec des angles d'incidence différents et des polarisations différentes. Pour chaque matériau, nous rapportons quelques résultats de tests mono-shot dans le Tableau 4-3. Ces valeurs sont à comparer avec les seuils d'endommagement déterminés grâce à la méthode 1-on-1. Au total, l'écart moyen entre les mesures mono-shot et les mesures 1-on-1 est de 2.5%. Au maximum, il est de 6%. Parmi les paramètres pouvant expliquer cet écart, nous citons l'éclairage et le contraste sur les images issues des observations au microscope DIC qui peuvent biaiser la détermination de la surface endommagée. Egalement, des inhomogénéités des dépôts de couches minces optiques peuvent apporter une dispersion dans les valeurs de LIDT déterminées. Des variations d'épaisseurs physiques de couches d'environ 1% sont classiquement mesurées [97]. A l'inverse, à l'aide de plusieurs tirs laser en différents endroits du composant étudié, la méthode mono-shot permettrait de donner des informations quant à l'homogénéité du dépôt sur des surfaces centimétriques.



Echantillon	Technologie de dépôt	Angle d'incidence (°) et polarisation	Mono-shot LIDT (J/cm <sup>2</sup> )	1/1 LIDT (J/cm <sup>2</sup> )	Ecart absolu entre LIDT 1/1 et m-s LIDT (%)
Monocouche SiO <sub>2</sub>	E-beam + IAD	45 (S)	5.68	5.37	5.8
			5.56		3.5
			5.34		0.6
Monocouche HfO <sub>2</sub>	E-beam + IAD	45 (P)	5.33	5.43	1.8
			5.52		1.7
Monocouche Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	IBS	15 (S)	5.02	4.92	2.4
			5.01		2.0
Miroir R <sub>max</sub> HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub>	E-beam	45 (P)	2.86	2.93	2.4
			2.86		2.4
Miroir large bande [98]	E-beam + IAD	0	1.33	1.32	0.8
			1.34		1.5
		40 (P)	1.06	1.07	0.9
			1.11		3.7

Tableau 4-3 : Comparaison entre les seuils d'endommagement mesurés avec la procédure classique 1-on-1 et la procédure mono-shot pour différents composants optiques.

Cette technique présente l'avantage d'être très peu consommatrice en temps mais surtout en surface. Les résultats donnés par cette méthode sont cohérents avec ceux donnés par la méthode 1-on-1 définie par la norme ISO. Elle est par exemple adaptée aux tests d'échantillons rares ou difficiles à réaliser, dans un but de prospection. Elle peut également être réalisée sur les bords d'une optique (hors zone utile) avant son intégration dans une chaîne laser afin de mesurer sa tenue au flux effective et ainsi d'assurer les performances pour le bon fonctionnement du laser. En outre, l'utilisation d'un faisceau au profil spatial gaussien permet de tester un composant avec un continuum de fluence. L'utilisation d'un tel type de faisceau présente deux principaux avantages :

- La plupart des lasers commerciaux dans ce régime d'impulsion utilisent une cavité régénérative afin d'amplifier l'énergie des impulsions qu'ils délivrent. Ces cavités imposent le mode transverse du faisceau laser TM00. Les faisceaux commerciaux sont donc des faisceaux au profil spatial gaussien. Cette méthode est donc facile à implémenter et reproductible.
- Le gradient de fluence dans un profil spatial gaussien est « doux » par rapport à un faisceau Top-Hat. La méthode mono-shot repose sur l'utilisation d'un continuum de fluence locale dans le faisceau permettant le test du composant à de multiples fluences à l'aide d'un seul tir. Pour un faisceau gaussien ce continuum de fluence est réparti de façon homogène dans le faisceau, ce qui permet de distinguer finement la fluence seuil d'endommagement. En revanche, il est facile de comprendre que l'utilisation de faisceau Top-Hat (ou super-gaussienne d'ordre élevé) est défavorable pour cette méthode : les flancs du top-hat varient plus rapidement et le continuum de fluence est réparti sur une section plus étroite du faisceau. Ceci est illustré sur la Figure 4-12. Le faisceau Top-Hat illustré est celui obtenu sur le banc DERIC lors du développement d'une nouvelle voie d'analyse, décrit en Annexe.

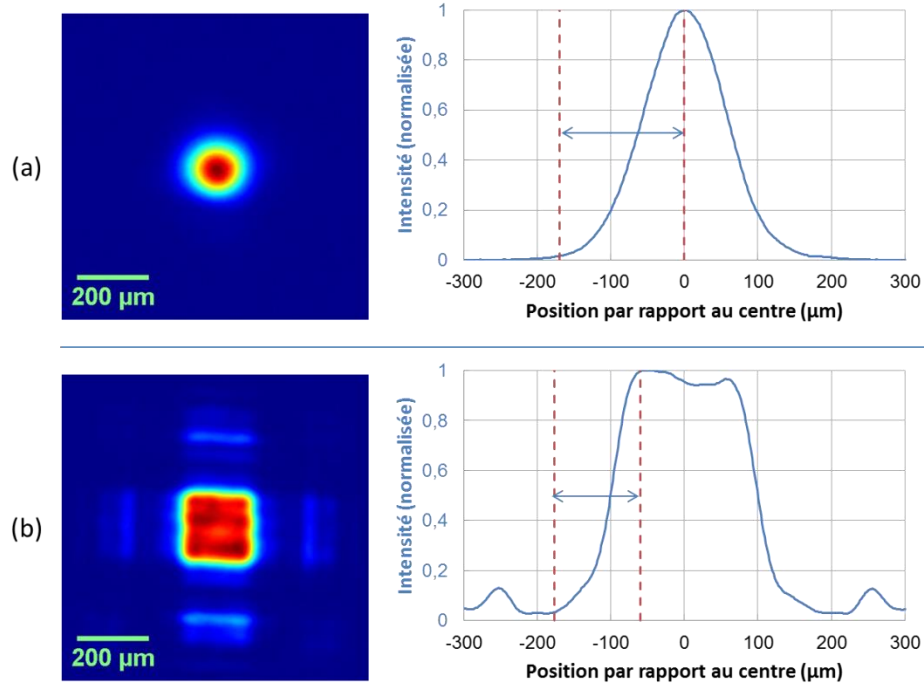


Figure 4-12 : Localisation de continuum de fluence (flèches bleues) pour (a) un faisceau gaussien et (b) un faisceau Top-Hat. Ces deux profils sont des profils expérimentaux obtenus sur le banc d'endommagement DERIC décrit au Chapitre 3. Pour le faisceau gaussien, le continuum s'étend du centre de la gaussienne à ses pieds. Pour le faisceau Top-Hat, il est réduit puisqu'il ne prend en compte que les flancs du faisceau.

Toutefois, étant donné que le profil spatial du faisceau est enregistré pour chaque tir et est corrélé à la morphologie du dommage, l'utilisation d'un faisceau présentant un profil spatial non-gaussien est possible théoriquement et cette méthode peut donc être appliquée à de nombreuses installations.

#### 4.C Méthode de détermination de la qualité d'une optique.

Dans le régime sub-picoseconde, la durée pendant laquelle l'énergie de l'impulsion est déposée dans le matériau est très courte ce qui conduit à des phénomènes d'absorptions multiphotoniques, très dépendants de l'intensité. L'endommagement résultant dans ce cas a un caractère principalement déterministe. Partant de l'hypothèse que l'endommagement en régime d'impulsions courtes est un phénomène à seuil, cela a poussé la communauté de l'endommagement en régime d'impulsions courtes à utiliser les techniques classiques 1-on-1 ou S-on-1 afin de qualifier les composants optiques. Cette première approche est importante mais limitée. Si cela permet en effet de juger de la qualité intrinsèque d'un matériau ou de l'efficacité d'un empilement, elles ne permettent pas d'évaluer leurs éventuels points faibles. Entre autres, des défauts particuliers sont généralement introduits dans les traitements lors des processus de fabrication des optiques [51, 99], comme cela a déjà pu être observé dans le domaine nanoseconde, les technologies de dépôts des couches minces étant les mêmes. Les couches qui seront déposées par-dessus vont « englober » le défaut. Il en résulte la formation d'un nodule [100]. Leur concentration peut être faible et les tests 1-on-1 et S-on-1, de par les faibles surfaces testées, négligent la présence de ces défauts. L'approche Rasterscan est très intéressante et nous a inspiré pour étudier le rôle des défauts dans le régime sub-picoseconde sur des phénomènes d'endommagement probabilistes [101].

Des nodules peuvent être créés artificiellement afin d'observer leur effet. Gallais et al. [83] ont cherché à voir le rôle de défauts connus sur la tenue au flux d'un miroir  $R_{\max}$  diélectrique. Pour cela, ils ont déposé une structure sur un substrat de silice initialement recouvert de microbilles de silice calibrées. A

l'emplacement des microbilles, des nodules sont créés. Un calcul 3D de la distribution du champ électrique dans cette structure perturbée par la présence d'un défaut a été réalisé. Il révèle l'apparition d'une forte sur-intensification du champ électrique dans la structure réfléchive au niveau des nodules, comme cela est représenté sur la Figure 4-13. Des surintensifications d'un facteur 20 ont été observées.

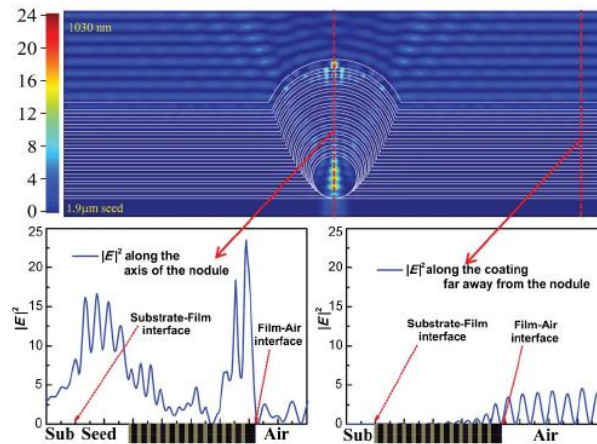


Figure 4-13 : Effet d'un nodule sur la distribution du champ électrique. Un miroir  $R_{max}$  est déposé sur un substrat de silice préalablement recouvert de microbilles de silice de taille connue. Un fort renforcement du champ électrique est calculé au niveau des billes [83].

Le point important pointé par cette étude est que ces défauts induisent des surintensifications. On s'attend intuitivement à une ionisation de la matière à des fluences plus basses que la fluence seuil 1-on-1 du miroir sans défaut. Cela a été observé expérimentalement et est montré dans la Figure 4-14. L'étude de Gallais et al. présente un comportement quasi-déterministe de l'endommagement puisque les défauts précurseurs sont identiques en taille, en nature et en localisation. Il est facile de concevoir que lors du dépôt d'un miroir sur un substrat, la distribution des défauts en taille, profondeur et nature est aléatoire. Leur effet sur le champ électrique sera différent d'un défaut à un autre et il n'est plus possible d'adopter la même approche déterministe. On constate bien sur cet exemple les limites des tests 1-on-1 en présence de défauts, même en faibles densités. Nous l'avons déjà pressenti lors des tests sur le miroir 3 (voir Figure 4-3). Pour cela, en s'inspirant des études qui ont été menées dans le domaine nanoseconde, nous avons développé un test RasterScan permettant de rendre compte du caractère statistique de l'endommagement induit par défauts en régime sub-picoseconde.

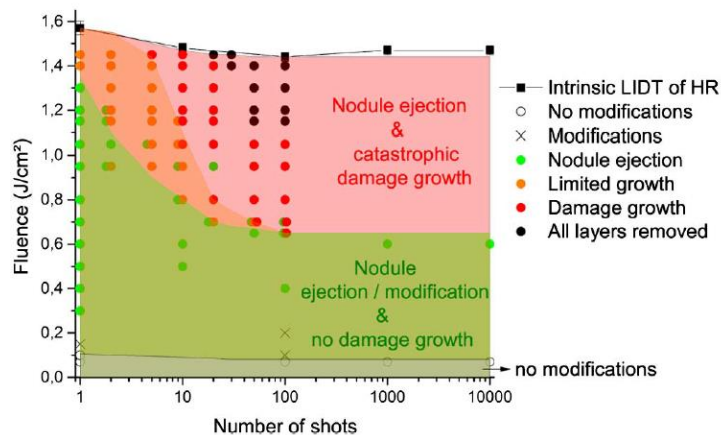


Figure 4-14 : Nature de l'endommagement induit par la présence de défauts dans un miroir  $R_{max}$  en fonction de la fluence d'irradiation [83].

Afin d'étudier la pertinence de ce test, nous l'avons appliqué aux trois échantillons de miroirs  $R_{max}$  décrits dans le Tableau 4-1. Ces miroirs sont, par précaution, initialement stockés dans des boîtes type PETG qui induisent une très faible contamination organique. De manière générale, il a été montré que de la contamination organique en régime sub-picoseconde a un impact négligeable sur la tenue au flux laser des optiques [102]. Les résultats des tests 1-on-1 et S-on-1 réalisés sur ces miroirs sur le banc d'endommagement laser DERIC sont donnés dans la Figure 4-3 et le Tableau 4-2. Ils illustrent le caractère, bien connu, déterministe de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes avec une évolution très rapide de la probabilité d'endommagement en fonction de la fluence.

Des tests Rasterscans sont réalisés sur ces composants réfléchissants, également dans leurs conditions d'utilisation décrites dans le Tableau 4-1, i.e. angle d'incidence et polarisation. Ces échantillons sont placés sur un support d'échantillon motorisé. L'échantillon est déplacé à une vitesse constante pendant le scan afin de balayer une partie de sa surface avec un petit faisceau et ainsi, de simuler une illumination globale de la zone, comme expliqué sur la Figure 4-15. Des surfaces de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  ont été balayées. Le faisceau qui a été utilisé est un faisceau gaussien. Afin que la plus grande fraction de la zone testée soit illuminée de façon homogène, c'est-à-dire à la même fluence, un recouvrement de faisceaux tir à tir est introduit. Dans notre étude, ce recouvrement est choisi arbitrairement à 80% du maximum d'intensité des faisceaux gaussiens. Un seul passage est réalisé lors de chaque Rasterscan : chaque site n'est irradié qu'une seule fois. Les fluences de balayage sont inférieures aux fluences seuils déterminées lors des tests 100-on-1, ce qui permet de dire que les effets de fatigue liés au recouvrement sont excessivement faibles voire négligeables durant les tests de Rasterscan. Le laser utilisé pour cette étude présente de très faibles fluctuations d'énergie et de profil spatial tir à tir (et donc de fluence). Pour une surface balayée de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$  et en considérant un recouvrement de 80%, environ 3200 tirs laser sont réalisés. L'écart-type sur la fluence typiquement mesuré lors des tests Rasterscan est de 2%.

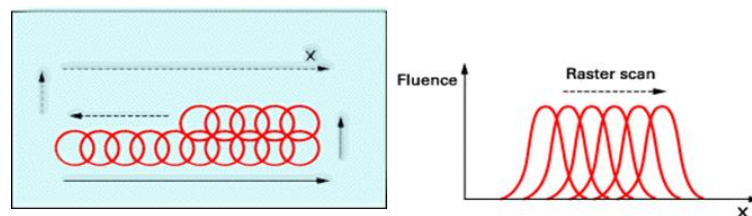


Figure 4-15 : Présentation de la méthode Rasterscan et illustration du principe de recouvrement des faisceaux.

Par rapport au test 1-on-1 présenté dans le paragraphe A.1., le nombre de sites testés est beaucoup plus important (environ 3200 contre 100 pour le 1-on-1). Le moyen de détection *in situ* présenté dans le Chapitre 3 est utilisé afin de détecter, en temps réel lors des scans, la formation d'un dommage. A la fin d'un scan d'une zone de  $5 \times 5 \text{ mm}^2$ , le nombre de dommages initiés est comptabilisé et traduit en termes de densités de dommages  $D(F)$  en fonction de la fluence de test. Grâce à la faible fluctuation du laser, une zone de test permet de déterminer une valeur de densité de dommage pour une fluence.  $D(F)$  est définie simplement comme le rapport entre le nombre de dommages et la surface scannée (dans notre cas,  $25 \text{ mm}^2$ ). Pour l'instant, peu d'installations disposent de ce moyen de mesure et les études sur la densité de dommages en régime sub-picoseconde sont rares. Il n'a pas été possible durant cette thèse de réaliser des mesures de densités de dommages avec des tailles de faisceau différentes. Dans le régime nanoseconde, nous avons vu que les résultats des tests Rasterscan sont déconvolués de la taille du faisceau, moyennant une hypothèse sur la distribution des défauts précurseurs qui suit une loi de Poisson [103]. Une hypothèse semblable serait à envisager pour le régime sub-picoseconde.

Les résultats de tests Rasterscan réalisés sur les trois miroirs précédemment introduits sont donnés dans la Figure 4-16. A titre de référence, nous avons rapporté sur ce même graphique les fluences seuil 1-on-1 de chaque composant. Pour chaque fluence de tests, 75 mm<sup>2</sup> (équivalents à 3 zones de scan) sont balayés afin d'augmenter la statistique. Egalement, ceci permet de vérifier l'homogénéité des composants testés. Plusieurs points importants ressortent de ces résultats :

- Premièrement, la densité de dommages croît avec la fluence d'irradiation, mais de façon différente pour les trois miroirs.
- Deuxièmement, nous mettons en évidence qu'il est possible d'initier des dommages pour des fluences aussi faibles que 20% de la fluence seuil 1-on-1.
- Troisièmement, les densités de dommages mesurées sont de l'ordre de quelques dizaines de dommages/cm<sup>2</sup>. A l'échelle des composants de PETAL par exemple, cela représenterait plusieurs dizaines de milliers de dommages.

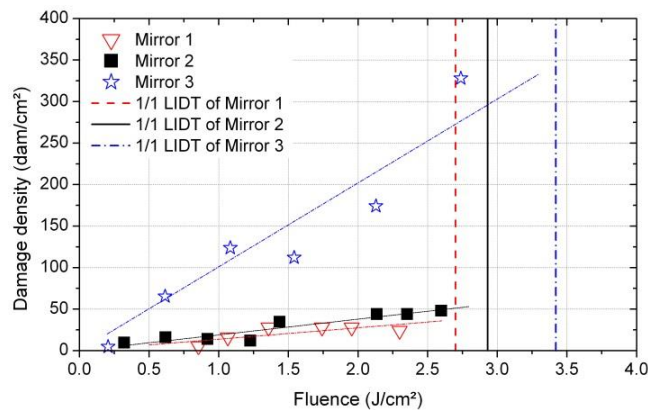


Figure 4-16 : Densité de dommages en fonction de la fluence sélectionnée lors du balayage. La densité est calculée comme le ratio entre le nombre de dommages initiés durant le scan et la surface de la zone testée. Les droites sont des guides pour l'œil.

Un autre constat important qui est fait est que la morphologie des dommages obtenus lors de ces tests est très différente de la morphologie des autres dommages obtenus lors des tests 1-on-1, comme cela est illustré sur la Figure 4-17 : les dommages probabilistes ont une taille beaucoup plus faible que les autres dommages et la morphologie de l'endommagement est sans lien particulier avec le profil spatial du faisceau, contrairement à ce qui a été montré dans le paragraphe précédent 4.B.

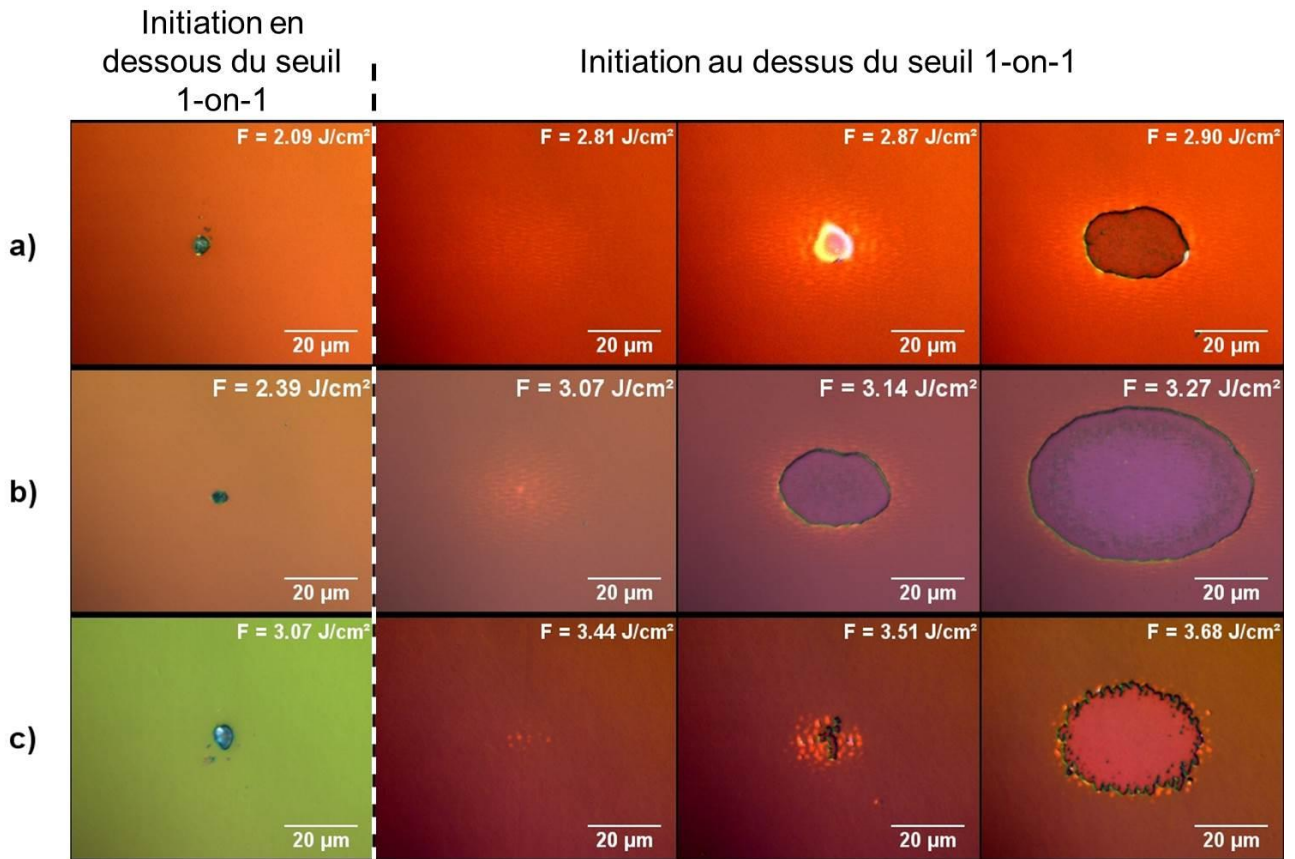


Figure 4-17 : Evolution de la morphologie des dommages en fonction de la fluence. a), b) et c) correspondent respectivement au miroir 1, 2, et 3 présentés dans le Tableau 4-1. Pour des dommages initiés à des fluences en dessus et en dessous de la fluence seuil d'endommagement 1-on-1 (donnée dans Tableau 4-2), on constate une rupture dans l'évolution de la morphologie des dommages.

Durant des tests Rasterscan, les cartographies des dommages montrent une répartition aléatoire et uniforme des dommages à la surface des composants, qui traduit une répartition aléatoire et uniforme des précurseurs de ces dommages dans les optiques. Egalement, aucune corrélation n'a pu être faite entre la fluence de balayage et la taille des dommages révélés. Ceci est illustré par la Figure 4-18, où nous rapportons des observations DIC de dommages initiés sur le miroir 2 à plusieurs fluences. Le diamètre de ces dommages d'environ  $5\mu\text{m}$  est du même ordre de grandeur pour tous les dommages.

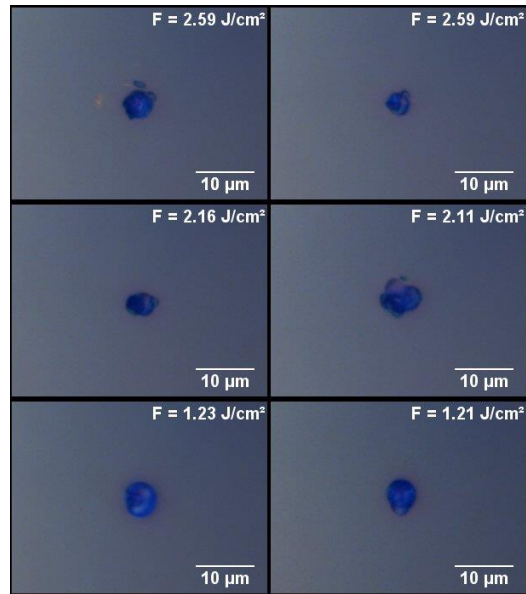


Figure 4-18 : Dommages révélés durant les Rasterscans sur le miroir 2 en fonction de la fluence de scan : indépendance de la taille des dommages par rapport à la fluence de balayage

Un dommage révélé lors d'un test RasterScan a été observé au microscope MEB (Figure 4-19) et met en évidence l'éjection de défauts nanométriques initialement présents dans le traitement interférentiel. Cette configuration est similaire à celle présentée dans la Figure 4-13.

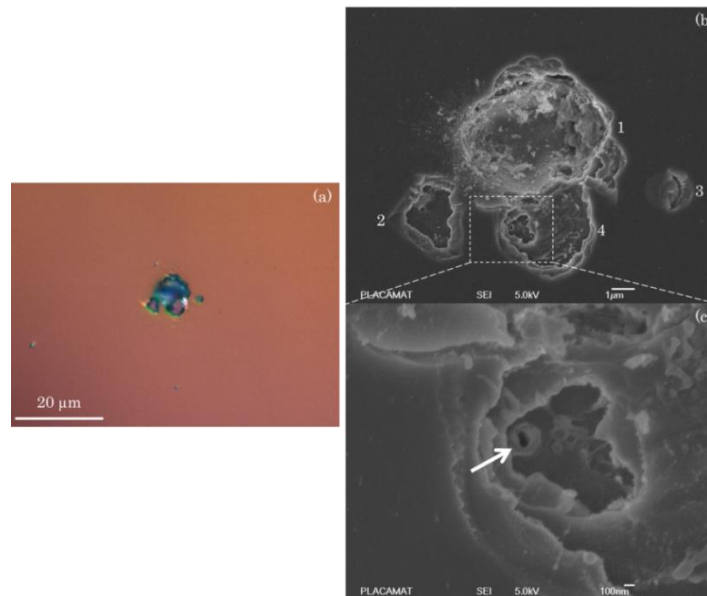


Figure 4-19 : (a) Observation au microscope DIC d'un dommage initié sur le miroir 2 lors d'un test RasterScan réalisé à une fluence  $F=0.9F_{th,2}$ . (b) et (c) Le même dommage a été observé au MEB à deux échelles différentes. Sur l'observation (b), il est possible de distinguer les éjections de 4 nodules, numérotées 1, 2, 3 et 4. L'éjection 1 est la plus importante, toutes les couches du miroir diélectrique ont été retirées et le dommage est large. L'éjection 2 est plus douce et seulement quelques couches ont été éliminées. L'éjection 3 est partielle et les couches supérieures sont encore liées au reste du miroir. Concernant l'éjection 4, un zoom sur la zone centrale du dommage permet de voir la localisation supposée du défaut précurseur (flèche blanche), ayant une taille inférieure à 100nm.

L'avantage de cette technique RasterScan est qu'elle apporte un nouveau point de vue de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde. Via les techniques 1-on-1, S-on-1 et Mono-shot, on s'intéresse aux propriétés intrinsèques des composants. Le RasterScan permet de révéler des défauts rares : il permet d'évaluer la qualité des procédés de fabrication d'un dépôt couche mince et se propose

comme un nouvel outil permettant l'optimisation des techniques de fabrication. Des progrès ont été réalisés dans ce sens, afin de réduire les densités de défauts sur les optiques. Parmi eux, on peut citer l'utilisation de cibles métalliques pour les matériaux à haut indice. C'est notamment le cas pour le dépôt d'oxyde d'hafnium  $\text{HfO}_2$ . Des cibles métalliques de Hafnium sont dorénavant privilégiées au lieu des cibles d'oxyde d'Hafnium, qui lorsqu'elles étaient vaporisées engendraient l'éjection de grosses particules. Avec l'utilisation des cibles métalliques, l'hafnium est vaporisé et réagit avec des molécules de dioxygène qui sont injectées dans le bâti. Cette technique réactive permet de déposer les couches d'oxyde, avec une densité de particules un ordre de grandeur plus faible par rapport à l'utilisation d'une cible d'oxyde [104]. Stolz et al. ont également étudié la possibilité de diminuer les défauts au fond d'un dépôt en déposant une couche épaisse de silice directement sur le substrat [100]. Cette couche permet « d'absorber » les défauts du substrat et ainsi de créer une couche initiale d'accroche de très bonne qualité, car très plane. Cette couche permet notamment de supprimer les nodules dus aux irrégularités du substrat et qui sont responsables d'une forte surintensification du champ électrique, et donc favorables à l'endommagement laser. La propreté des substrats est donc également cruciale. L'utilisation d'une source ionique avant même le dépôt des couches minces optiques est aujourd'hui classiquement faite : elle permet de nettoyer le substrat de ses impuretés. Des techniques de filtrations de l'atmosphère du bâti de dépôts ont également été développées pour limiter au maximum l'apport de contaminants particuliers lors des traitements [105].

A ce jour, l'influence de la taille du faisceau sur les résultats des Rasterscan n'a pas encore été étudiée. Le faisceau utilisé durant cette étude a un profil spatial gaussien avec un diamètre de  $155\mu\text{m}$ . Sur le banc DERIC, une nouvelle voie a été développée afin de mettre en forme spatialement le faisceau sur échantillon. Le faisceau résultant est un faisceau type Top-Hat dont le profil est donné sur la Figure 4-12(b). Ce nouveau faisceau offre de nombreuses perspectives pour des études sur la mesure de densité de dommages puisqu'il permettrait de réaliser une illumination beaucoup plus homogène et beaucoup plus représentative de celle faite par un grand faisceau type PETAL, comme cela est montré sur la Figure 4-20 :



Figure 4-20 : Intérêt de l'utilisation d'un faisceau « top-hat » spatialement pour réaliser le balayage d'une surface avec une fluence homogène.



## Conclusion du Chapitre 4

Le caractère déterministe de l'endommagement, qui est communément admis, permet de mesurer la résistance au flux laser, intrinsèque à un composant. La procédure 1-on-1 est une technique classique permettant de mesurer le seuil de tenue au flux laser d'un composant optique, ce seuil étant directement relié aux propriétés intrinsèques des matériaux. La procédure S-on-1 permet quant à elle de mesurer l'évolution du seuil d'endommagement laser en fonction du nombre d'irradiations et ainsi de mettre en évidence un effet de fatigue, également propre aux matériaux. Dans ce Chapitre 4, deux facettes de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde ont été abordées. Le premier concerne la *résistance au flux laser intrinsèque aux matériaux*. Elle est couverte par les méthodes 1-on-1 et S-on-1. Nous avons proposé une nouvelle procédure de test dite Mono-Shot : elle offre la possibilité de déterminer de façon précise la fluence seuil de tenue au flux laser d'une optique à l'aide d'une seule irradiation. Le deuxième aspect concerne l'impact des défauts initiateurs rares. Mal évalués par les techniques 1-on-1 et S-on-1, ils peuvent être très critiques, notamment à l'échelle de grands composants. Une étude statistique via la technique Rasterscan apporte un nouveau point de vue sur l'endommagement laser dans ce régime d'impulsions courtes. Elle permet de révéler les défauts locaux des composants, qui dégradent leur tenue au flux laser, et ainsi de qualifier la qualité des optiques. Les optimisations d'optiques réfléchives sont jusqu'à maintenant réalisées via un travail sur le design des structures, grâce à des modèles 1D qui permettent de mesurer les renforcements du champ électrique dans une structure couches minces interférentielles [106]. Au vu de ces résultats, un travail sur les défauts localisés est à réaliser, autant d'un point de vue procédés de fabrication des optiques que d'un point de vue modélisations numériques prenant en compte la taille, la nature et la position des défauts dans les structures interférentielles. Ces modélisations permettraient de mieux estimer la résistance au flux laser des optiques. Les dommages révélés par ces méthodes sont de taille micrométrique. Dans le cas d'installations telles que PETAL, la dimension des optiques est d'environ 40x60 cm<sup>2</sup>. La dimension de ces dommages est donc négligeable à l'échelle des composants. Une fois que ces dommages sont amorcés, il est nécessaire de connaître leur comportement lors d'irradiations supplémentaires. Pour cela, nous avons mené une étude sur la croissance des dommages. Elle est présentée dans le Chapitre 5.

## Chapitre 5 Etude de la croissance des dommages sous flux laser en régime sub-picoseconde.

Il a été montré que la résistance au flux laser des optiques dépend à la fois de leurs paramètres intrinsèques, liés aux propriétés des matériaux telles que le bandgap, les défauts électroniques qui peuvent être générés par les irradiations laser, mais également de la densité de défauts macroscopiques intégrés aux optiques lors de leur fabrication. Dans l'hypothèse qu'un dommage se forme sur un composant optique, comment va-t-il évoluer au tir suivant ? La problématique de la croissance des dommages sous irradiations laser est un thème de grande importance. Qu'il s'agisse de grandes installations nanosecondes telles que le NIF ou le LMJ, sub-picosecondes et picosecondes telles que PETAL [4], OMEGA-EP [107] ou NIF-ARC [108] ou même de lasers commerciaux, comprendre le phénomène de croissance des dommages sur leurs optiques permet de garantir et fiabiliser le fonctionnement des systèmes laser, d'estimer leur durée de vie mais également de prévoir leur coût d'exploitation. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons au phénomène de croissance des dommages en régime sub-picoseconde sur des miroirs diélectriques. Une approche expérimentale nous a permis de mesurer des probabilités de croissance. Lorsqu'un dommage croît, une évolution linéaire de l'aire endommagée est constatée et des coefficients de croissance sont mesurés en fonction de la fluence. Un modèle numérique permettant de simuler le phénomène de croissance a été mis en place. Ce modèle a été confronté avec succès à des expériences de croissance réalisées sur des dommages initiaux modèles finement caractérisés.



## 5.A Etude expérimentale de la croissance des dommages.

### 5.A.1 Dispositif expérimental utilisé pour l'étude de la croissance des dommages.

Des échantillons de miroirs  $R_{\max}$  ont été testés en croissance sur un banc d'endommagement développé à l'Institut Fresnel. La source laser utilisée est également une source *Amplitude Systèmes S-Pulse* qui délivre des impulsions de 1mJ à 1030nm dans le régime sub-picoseconde. Le schéma du dispositif expérimental est donné dans la Figure 5-1. Ce banc dispose d'un microscope permettant de réaliser *in situ* des observations des sites irradiés. Egalement, une expérience pompe-sonde a été développée sur cette installation laser permettant d'obtenir des images résolues en temps. Un système de conversion de fréquence positionné en sortie de la source laser permet de doubler en fréquence le faisceau infrarouge dans le vert (515nm). Lors des expériences pompe-sonde, le faisceau vert (d'énergie environ  $0,5\mu\text{J}$ ) est utilisé comme faisceau sonde. Il est élargi au moyen d'un système afocal pour pouvoir illuminer de façon homogène le champ d'observation du microscope. Le faisceau infrarouge est utilisé en tant que faisceau pompe, d'énergie environ 1mJ que l'on peut ajuster grâce à un système « lame demi-onde + polariseur ». Il traverse une ligne à retard permettant de régler le délai entre le faisceau pompe et le faisceau sonde. La ligne utilisée est une platine Thorlabs ODL220-FS/M, qui permet d'introduire au maximum un délai d'environ 1,5ns entre les deux faisceaux.

Ce système, couplé au microscope, permet de réaliser de la microscopie d'intensité résolue en temps qui a été présentée dans la thèse de Dam-Bé Douiti [109]. Dans le cadre de nos travaux, le régime transitoire n'a pas été étudié. A titre indicatif, en annexe, nous avons tout de même rapporté des exemples d'observations en microscopie d'intensité résolue en temps.

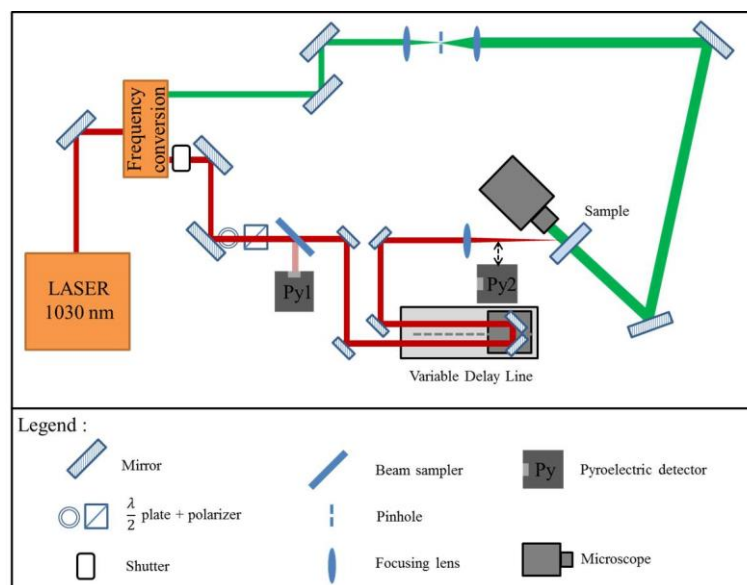


Figure 5-1 : Banc d'endommagement laser en régime sub-picoseconde de l'Institut Fresnel. Les expériences d'endommagement sont menées avec un faisceau infrarouge à 1030nm (faisceau « pompe »). Une fraction de ce faisceau est convertie dans le vert à 515nm au moyen d'un cristal convertisseur, illumine l'échantillon par la face arrière et sert d'éclairage pour l'observation (faisceau « sonde »). Une caméra couplée au microscope enregistre des images du composant avant et après le tir. Une acquisition pendant le tir est également possible en synchronisant les deux voies pompe et sonde via la ligne à retard.

Le banc décrit dans la Figure 5-1 a été utilisé pour réaliser des expériences de croissance des dommages avec une observation tir à tir de la zone irradiée à une incidence normale par rapport au plan de

l'échantillon. Le microscope utilisé est un microscope optique (Olympus BX51), couplé à un objectif 50x à longue distance de travail (Mitutoyo Plan Apo SL Infinity-Corrected Objective). La caméra qui est associée au microscope est une caméra PCO1600, à bruit thermique réduit par effet Peletier et à haute définition (1600x1200px<sup>2</sup>). Le système d'observation des dommages acquiert des images avant, pendant (délai géré par la ligne à retard) et après chaque irradiation laser. Le microscope possède un système d'éclairage type Koelher avec une lampe à lumière blanche large spectre. Toutefois, on préférera utiliser un éclairage par la face arrière de l'échantillon avec le faisceau laser vert. Cet éclairage par ombroscopie permet de résoudre non seulement les contours du dommage mais présente également l'avantage de résoudre le dommage en volume, i.e. de voir la délamination des couches en profondeur. La comparaison entre l'éclairage en lumière blanche et avec le faisceau laser vert d'un même dommage est donnée dans la Figure 5-2.

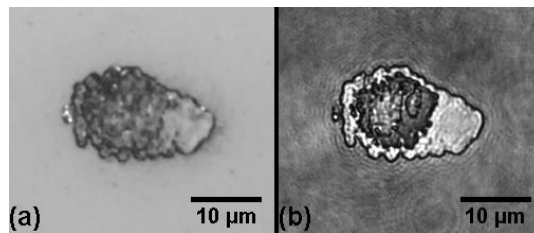


Figure 5-2 : Comparaison entre (a) l'éclairage type Koelher avec une lumière blanche et (b) l'éclairage par la face arrière du composant avec un faisceau laser vert pour la résolution de la morphologie des dommages. L'éclairage par faisceau laser vert permet de résoudre les différentes couches délaminées du miroir.

Sur la Figure 5-2, on voit que cet éclairage par la face arrière introduit des figures d'interférences dues à la diffraction par les différents défauts des optiques (poussières, piqûres...). Elles sont éliminées par traitement d'images. Le système de traitement d'image automatisé a été mis en place avec le logiciel ImageJ® [110] afin de segmenter les zones endommagées sur les différentes acquisitions. Les étapes de la segmentation sont données dans la Figure 5-3 : elles consistent en un seuillage d'une image débruitée.

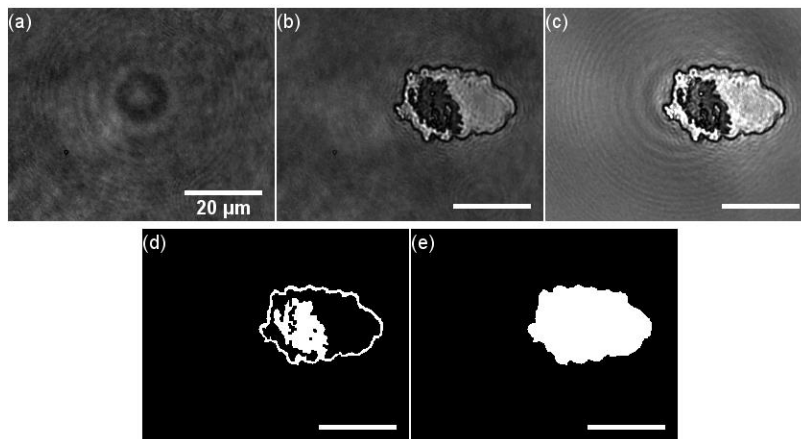


Figure 5-3 : Principe du traitement d'image. (a) Image de la zone vierge avant expérience pour acquisition du bruit de l'éclairage. (b) Image du dommage. (c) Division du bruit. (d) Seuillage de l'image et binarisation. (e) Segmentation du dommage pour calcul de sa surface.

### 5.A.2 Résultats expérimentaux de la croissance des dommages en régime sub-picoseconde.

Dans cette partie, la durée des impulsions délivrées par le laser de l'Institut Fresnel a été estimée à  $980 \pm 20$ fs, à partir de la mesure d'une trace d'autocorrélation obtenue avec un autocorrélateur mono-coup. Le faisceau laser infrarouge est focalisé au moyen d'une lentille de focale 150mm. Le diamètre du faisceau au

niveau de l'échantillon est de  $65\mu\text{m}$  à  $1/e$ , ce qui correspond à une surface équivalente de  $3350\mu\text{m}^2$  à  $1/e$  à une incidence normale. Les fluences rapportées par la suite sont calculées selon la méthode présentée dans le Chapitre 3 et sont données en termes de fluence en section droite, i.e. la fluence calculée dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau laser.

Le miroir considéré pour cette étude est un miroir  $R_{\text{max}}$   $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ , déposé par la technique PVD e-beam sur un substrat de silice. Nous l'appellerons dans la suite de ce chapitre « miroir e-beam ». La structure de ce miroir est [UVFS / (HB)<sup>17</sup> H 2B / Air] avec H et B des couches haut indice/bas indice quart d'onde à  $1053\text{nm}$ . Il fonctionne à un angle d'incidence de  $45^\circ$  et polarisation P. La largeur de la réponse spectrale du miroir est de  $100\text{nm}$ . Elle est donc suffisamment grande pour que le miroir conserve son pouvoir réfléchissant à  $1030\text{nm}$ . Les expériences sont donc menées à une longueur d'onde de  $1030\text{nm}$ , un angle d'incidence de  $45^\circ$  et une polarisation P [111].

### 5.A.2.i Etude expérimentale de la probabilité de croissance.

Dans ce paragraphe, nous allons nous intéresser à l'occurrence de la croissance des dommages. Lorsqu'un dommage se forme à la surface d'un composant optique, va-t-il croître sous l'effet d'irradiations successives ?

Une mesure de seuil de tenue au flux laser a été réalisée sur ce miroir. La fluence seuil 1-on-1 d'endommagement laser de ce miroir est  $F_{\text{th}} = 4.00 \pm 0.05 \text{ J/cm}^2$  dans les conditions opératoires décrites précédemment. Si on considère un composant optique dépourvu de défaut localisé, il est donc aisé de déterminer sa résistance au flux laser et de garantir son usage en l'irradiant à des fluences inférieures à cette fluence seuil. Toutefois, les défauts (nodules ou inclusions) présents dans les composants peuvent provoquer un endommagement prématuré du miroir, même à de faibles fluences comme cela a été montré dans le Chapitre 4. Une fois ces dommages générés, nous avons voulu étudier leur comportement lors d'irradiations laser supplémentaires, de façon à savoir si ces dommages défaut-induits sont pénalisants pour la durée de vie du composant.

Pour mener cette étude, 3 zones ont été balayées selon la technique Rasterscan, présentée dans le chapitre précédent, sur le banc DERIC, à 30% du 1-on-1 LIDT, 70% et 90%. Les densités de dommages révélées pour ces trois fluences sont respectivement 31 dommages/cm<sup>2</sup>, 48 dommages/cm<sup>2</sup> et 48 dommages/cm<sup>2</sup>. Le comportement de ces dommages est ensuite testé à des fluences comprises entre 20% et 85% du seuil d'endommagement 1-on-1 avec un pas d'environ  $0,4 \text{ J/cm}^2$  (soit 10% du seuil) sur le banc de l'institut Fresnel. Le protocole que nous avons utilisé afin de déterminer la probabilité de croissance de ces dommages est le suivant :

- Une séquence de 100 irradiations laser est réalisée à fluence constante sur le dommage initial.
- Si le dommage n'a pas évolué au cours de cette séquence, la fluence de consigne est augmentée et une nouvelle série de 100 tirs est faite.
- Lorsque le dommage croît, la rampe de fluence est stoppée.

Le fait d'appliquer une rampe de fluence peut entraîner un effet de conditionnement des dommages initiaux, i.e. une augmentation de leur résistance au flux laser. Une récente étude rapporte ce possible effet [40]. Toutefois, il n'a pas été pris en compte pour cette étude.

Les trois séries de dommages générés par Rasterscan ont été testées suivant ce protocole et l'évolution de la probabilité de croissance en fonction de la fluence durant l'expérience de croissance est donnée dans la Figure 5-4.

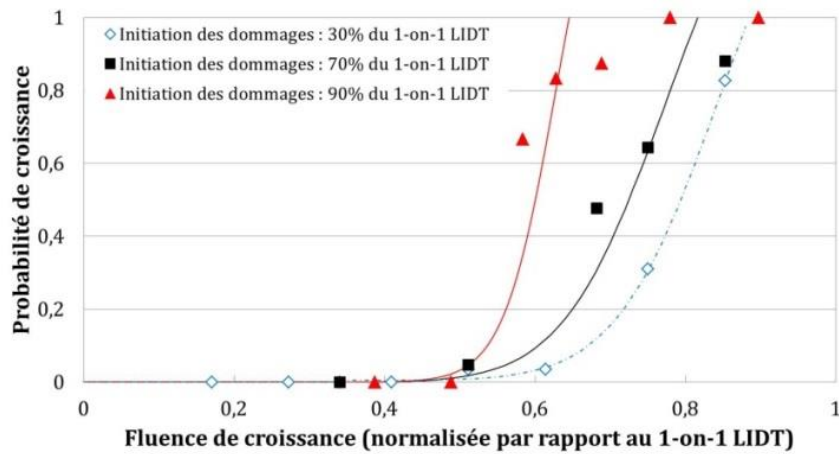


Figure 5-4 : Evolution de la probabilité de croissance sur des dommages défaut-induits initiés par Rasterscan en fonction de la fluence de croissance (normalisée par rapport à la fluence seuil d'endommagement 1-on-1). On représente 3 types de dommages initiés à 3 fluences différentes : en rouge, des dommages initiés à 90% de la fluence seuil d'endommagement du composant, en noir, des dommages initiés à 70% et en bleu des dommages initiés à 30%. Les courbes sont des guides pour l'œil.

Comme montré dans la Figure 5-4, pour une même fluence de croissance, la probabilité de croissance est d'autant plus grande que le dommage initial a été initié à une haute fluence. Dans le but d'expliquer cette tendance expérimentale, nous nous rapportons aux précédents travaux menés à l'institut Fresnel qui ont porté sur l'influence de la fluence d'irradiation sur l'éjection de défauts nodulaires artificiels [83]. Il a été montré que pour des fluences fortes les défauts nodulaires sont éjectés en arrachant plusieurs couches minces diélectriques. Le dommage résultant présente une morphologie chaotique. A l'inverse, pour de faibles fluences d'irradiation, l'éjection des défauts artificiels est douce entraînant une modification de la structure interférentielle modérée. Cette faible perturbation de la structure est favorable à une faible surintensification du champ électrique. Dans la Figure 5-5, nous avons simulé, pour un miroir quart d'onde opérant à une incidence de 45° et une polarisation P, les surintensifications du champ électrique induites par deux types de dommages : (a) un dommage superficiel impactant la première couche et (b) un dommage profond et large. Sur ces exemples très schématiques choisis, il est montré que le champ électrique pénètre beaucoup plus profondément dans le miroir dans le cas d'un gros dommage. Egalement la valeur maximale de l'EFI est de 2,75 dans la structure fortement endommagée (b) et de 2,10 dans la structure faiblement endommagée (a). La fluence d'endommagement étant liée à cette valeur, la différence de 25% entre les EFI est une piste pour expliquer les évolutions de probabilité d'endommagement données dans la Figure 5-4.

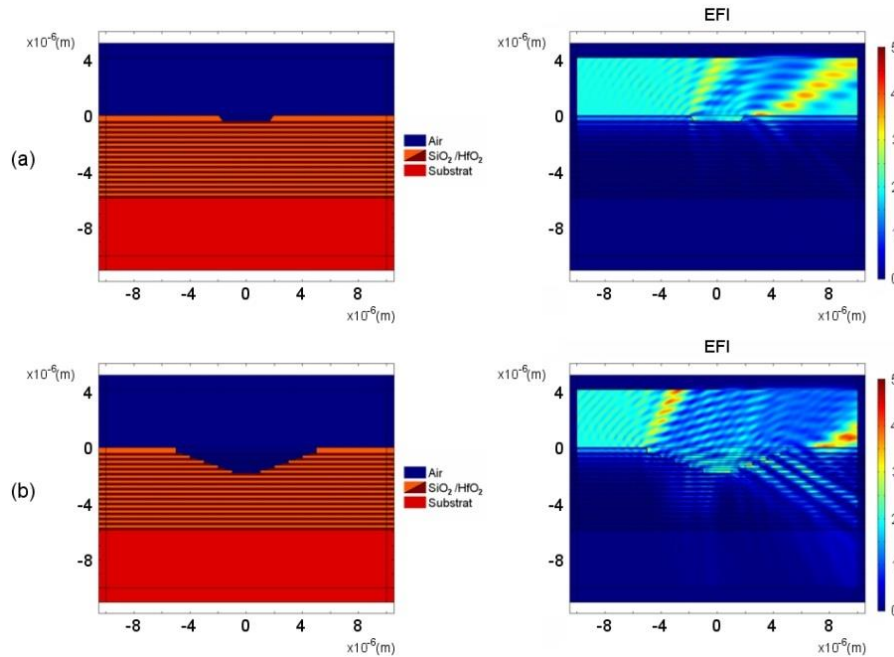


Figure 5-5 : Comparaison de la distribution du champ électrique dans (a) une structure réfléchissante interférentielle faiblement endommagée et (b) une structure fortement endommagée. La structure initiale considérée est un miroir quart d'onde opérant à un angle d'incidence de  $45^\circ$  en polarisation P. Pour ces simulations, le faisceau laser vient de la gauche. Le calcul de distribution du champ électrique a été effectué dans cette configuration pour une longueur d'onde de 1030nm. Dans l'exemple (b), on voit que la surintensification du champ électrique pénètre beaucoup plus profondément et est plus forte que celle observée dans l'exemple (a).

Un deuxième constat important est l'existence d'une fluence seuil de croissance à 50% de la fluence seuil d'endommagement du composant. Cette valeur est cohérente avec la valeur de fluence seuil de croissance relevée dans les travaux précédemment cités. [83].

Dans cette première partie, nous avons vu que lorsqu'un dommage s'initie dans une structure réfléchissante suite à un tir laser, des irradiations supplémentaires peuvent le faire croître. Un seuil de croissance existe cependant, lié à la densité d'énergie locale nécessaire pour endommager le matériau. Nous allons voir par la suite quelle est la dynamique de croissance des dommages.

### 5.A.2.ii Comportement des dommages en croissance.

A des fluences supérieures à la fluence seuil d'endommagement, une unique irradiation laser entraîne l'endommagement du composant. En revanche, pour des fluences inférieures, l'endommagement peut s'initier sur des défauts, comme cela a été montré lors des expériences Rasterscan. Egalement, l'endommagement laser peut être lié au phénomène de fatigue des matériaux (ou incubation) après un grand nombre de tirs laser. Sur le « miroir e-beam », nous avons donc considéré ces trois scénarios d'initiation de l'endommagement et nous avons étudié la croissance avec des irradiations laser à fluence constante sur les sites suivants :

- Des sites initiaux qui sont des dommages induits par la présence de défauts (Defect-induced Damage Sites, DDS). Ils ont été générés lors de tests rasterscan durant lesquels la fluence de balayage a été fixée à 90% de la fluence seuil d'endommagement 1-on-1  $F_{th}$ . Les défauts emprisonnés dans le traitement  $R_{max}$  engendrent une modification de la distribution du champ électrique et sont éjectés, laissant derrière eux des dommages de type cratère. Sur ce miroir, la densité de dommages générée lors d'un Rasterscan à 90% de la fluence seuil a été mesurée égale à 48 dommages/cm<sup>2</sup>. La morphologie typique de ces dommages est illustrée dans la



Figure 5-6 (a), image indexée #0. Les expériences de croissance sur ces dommages ont été réalisées à plusieurs fluences choisies entre 40% de  $F_{th}$  et 90% de  $F_{th}$ , intervalle également noté  $[0,4F_{th} ; 0,9F_{th}]$ .

- Des sites initiaux endommagés intrinsèquement (Intrinsic Damage Sites, IDS). Ces dommages ont été initiés à des fluences supérieures à la fluence  $F_{th}$ . La morphologie typique de ces dommages est illustrée dans la Figure 5-6 (b), image indexée #0. Les expériences de croissance sur ces dommages ont été réalisées à plusieurs fluences choisies dans  $[0,4F_{th} ; 0,7F_{th}]$ .
- Le dernier type de sites observés sont des sites vierges, dépourvus de défauts localisés. Chaque site vierge est soumis à de multiples irradiations à une fluence constante appartenant à l'intervalle  $[0,9F_{th} ; 1,1F_{th}]$ . Une fois le dommage amorcé, la fluence d'irradiation est maintenue constante. La fluence d'amorçage est donc la même que la fluence de croissance. Pour des fluences inférieures à  $F_{th}$ , la formation du dommage est liée au phénomène de fatigue décrit dans le Chapitre 1.

Environ 20 sites ont été testés pour chacune de ces trois configurations et pour chacune d'entre elles, nous rapportons dans la Figure 5-6 un exemple de séquence de croissance. Pour ces expériences, le faisceau laser arrive de la droite, comme représenté sur le schéma de gauche.

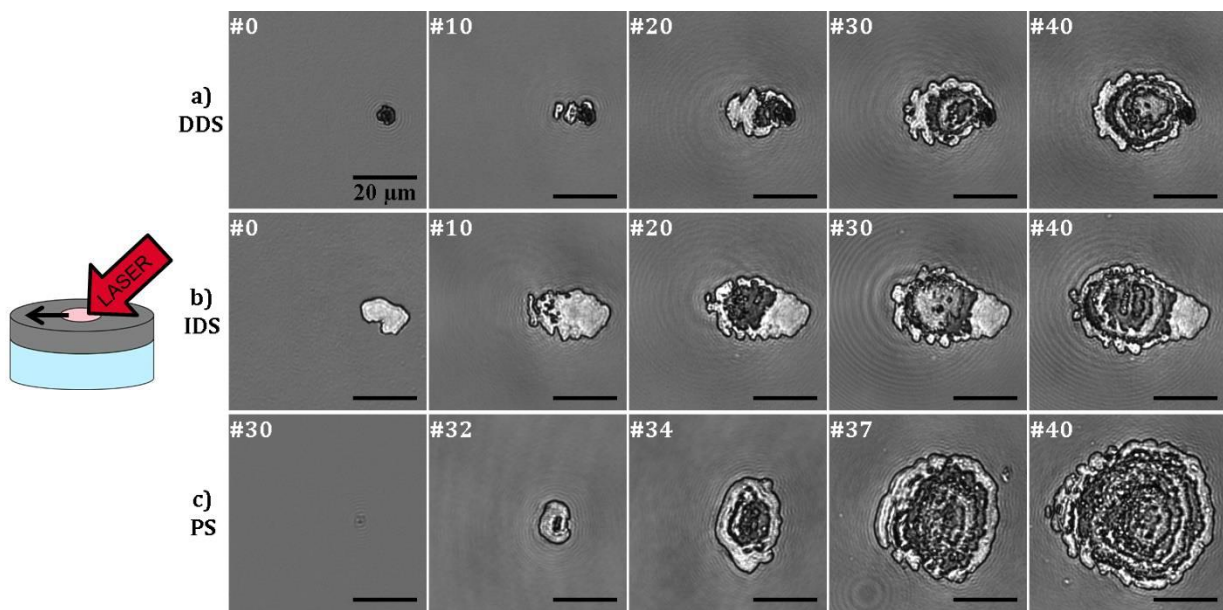


Figure 5-6 : Observation en temps réel au microscope optique de séquences de croissance de dommages sous flux laser. Le dispositif permettant l'observation a été présenté dans la section 5.A.1. Chaque ligne correspond à l'évolution d'un même dommage après un nombre de tirs indiqué en haut à gauche des images. Les sites initiaux (tir #0) sont (a) un site DDS et (b) un site IDS initié à une fluence de  $4,37 \text{ J/cm}^2$ . (c) Pour le site PS, nous rapportons l'observation au début de l'amorçage de l'endommagement (qui a lieu au tir #30, dû à la fatigue du composant). Pour ces trois séquences de croissances, les fluences fixées pendant la croissance sont respectivement (a)  $2,35 \text{ J/cm}^2$ , (b)  $2,39 \text{ J/cm}^2$  et (c)  $3,91 \text{ J/cm}^2$ .

Dans ce paragraphe, nous considérons uniquement les dommages qui croissent. 50 dommages croissants ont été analysés et leur surface endommagée est mesurée tir à tir, grâce au traitement présenté dans la Figure 5-3. Pour les trois sites représentés dans la Figure 5-6, les évolutions des surfaces endommagées sont données dans la Figure 5-7. Deux informations majeures sont apportées par cette figure. Premièrement, on observe sur les 3 graphiques de la Figure 5-7 que la surface endommagée évolue linéairement avec le nombre de tirs au début de la séquence de croissance. Deuxièmement, ce comportement linéaire a été observé pour l'ensemble des sites testés DDS, IDS et PS. Il ne dépend pas de l'origine des dommages initiaux. Pour l'ensemble de sites étudiés, la croissance des dommages est le

résultat d'une délamination des couches diélectriques du miroir. Cette altération de la structure du dommage a pour conséquence de modifier tir à tir la distribution du champ électrique à l'intérieur du traitement interférentiel, alimentant ainsi le phénomène de croissance. Nous reviendrons sur ce point dans le paragraphe 5.B. D'après la Figure 5-7, nous suggérons de décrire la phase linéaire de la croissance des dommages par l'Équation 5-1.

$$S_n = \alpha \times n + S_0$$

Équation 5-1 : Evolution de la surface endommagée.  $S_0$  et  $S_n$  sont respectivement la surface initiale du dommage au début de la phase linéaire et la surface du dommage après  $n$  tirs.  $\alpha$  correspond au coefficient de croissance linéaire des dommages.

Notre hypothèse d'évolution linéaire de la surface endommagée est cohérente avec les coefficients de corrélation mesurés lors des paramétrages des différentes courbes de croissance par l'Équation 5-1, tous supérieurs à 0,99. La phase linéaire est suivie par une saturation de la croissance, comme cela est présenté dans les encarts des graphiques (a) et (b) de la Figure 5-7 (pour le graphique (c), la croissance étant très rapide, nous l'avons interrompue afin de limiter la pollution particulaire de l'échantillon. Dans l'encart, le phénomène de saturation apparaît lors du dernier tir mais est faiblement visible). Nous relierons ce phénomène de saturation aux caractéristiques spatiales du faisceau laser utilisé pour ces expériences de croissance. Le faisceau utilisé est un faisceau spatialement gaussien qui présente une densité d'énergie maximale en son centre, et qui décroît en s'éloignant du centre. Lors des expériences de croissance, le faisceau gaussien est maintenu centré sur le dommage initial. Tir à tir, le dommage s'élargit et les bords du dommage sont donc illuminés à des densités d'énergie plus faibles. A saturation, l'énergie apportée au bord du dommage n'est plus assez grande pour maintenir la croissance. Une piste pour vérifier cette hypothèse serait de réaliser les expériences de croissance avec des faisceaux plus larges et idéalement à front d'énergie homogène, tels que le faisceau Top-Hat présenté dans le Chapitre 3. Cette considération du profil spatial gaussien a été faite en régime nanoseconde afin de corriger la fluence de croissance des dommages tir à tir [112]. Cette approche reste à mener en régime sub-picoseconde.

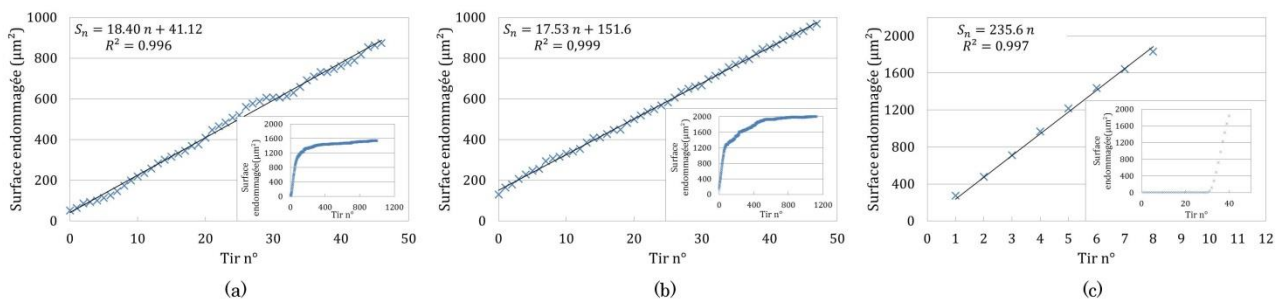


Figure 5-7 : Evolutions des surfaces endommagées en fonction du nombre de tirs laser. Les trois sites représentés sont (a) le DDS, (b) le IDS et (c) le PS de Figure 5-6. Des courbes de tendance linéaire avec leur coefficient de corrélation  $R^2$  sont appliquées à ces trois graphes. Egalement, dans les encarts, nous rapportons les séquences totales de croissance qui illustrent le phénomène de saturation de la croissance, limitée par la taille du faisceau. L'abscisse des graphes principaux correspond au numéro de tir laser à partir du début du comportement linéaire de la croissance.

Par la suite, nous nous intéresserons plus particulièrement au phénomène de croissance linéaire. La phase linéaire est extraite de la séquence intégrale de croissance du dommage en sélectionnant la portion de séquence la plus longue qui donne un coefficient de corrélation  $R^2 > 0.99$  lors du paramétrage par une fonction affine. Ce paramétrage donne également accès au coefficient de croissance linéaire  $\alpha$ . Pour les 50 sites testés, ce coefficient a été mesuré en fonction de la fluence de croissance. Le résultat est donné dans la Figure 5-8.

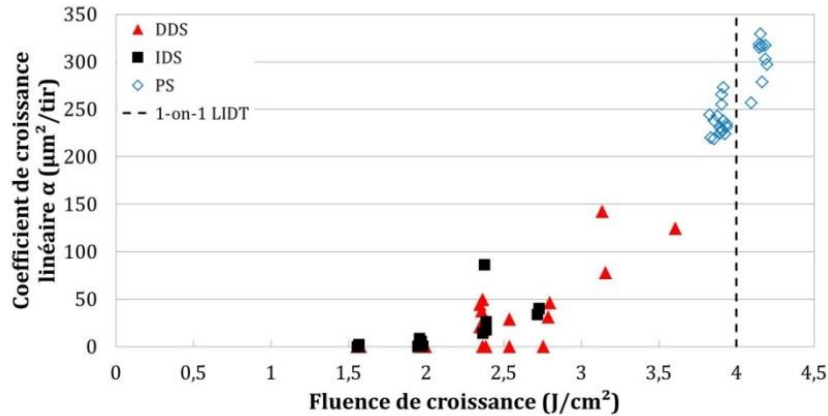


Figure 5-8 : Evolution du coefficient de croissance linéaire en fonction de la fluence de croissance pour l'ensemble des sites type DDS, IDS et PS testés sur le miroir e-beam.

Ce graphique met en évidence trois informations importantes :

- Le coefficient de croissance linéaire est d'autant plus grand que la fluence de croissance est élevée.
- Le comportement en croissance ne semble pas dépendre de la nature du dommage initial. Pour les dommages type DDS et IDS, on observe un recouvrement des coefficients de croissance.
- Pour ce composant, un seuil de croissance des dommages DDS et IDS se dessine à une fluence de  $2\text{J/cm}^2$ , soit 50% de la fluence seuil d'endommagement intrinsèque. Cette valeur est cohérente avec le seuil de probabilité de croissance déterminé dans le paragraphe 5.A.2.i. Cette information serait particulièrement importante pour un utilisateur puisqu'elle lui assurerait un point de fonctionnement non-endommageant pour le miroir intégré à un système laser.

### *5.A.2.iii Influence de la structure des composants sur le phénomène de croissance.*

Le comportement en croissance d'un second miroir issu d'un autre fournisseur a également été observé. Pour cette étude de la croissance, la durée d'impulsion est de 550fs et la longueur d'onde 1030nm. Le miroir diélectrique considéré est initialement un miroir quart d'onde réalisé par procédé PVD e-beam avec assistance ionique (IAD), dont la réponse spectrale à une incidence  $45^\circ$  est centrée à 1053nm. Sa réponse spectrale est suffisamment large pour opérer à 1030nm, aussi bien en polarisation S que P. Ce miroir va être étudié plus en détail dans la suite de ce chapitre. Nous l'appellerons donc miroir IAD. Il est réalisé à partir de silice (couche quart d'onde à  $45^\circ$  notée B) et d'oxyde d'Hafnium (couche quart d'onde notée H), avec une couche supérieure de silice optiquement neutre 2B. L'empilement de ce miroir est [BK7 / (HB)<sup>15</sup> H 2B / Air].

Ce miroir est différent du miroir présenté au début de ce paragraphe 5.A.2, dans le sens où les indices et épaisseurs des couches sont différents et qu'il a été déposé avec une technique différente. Cependant, un comportement similaire en croissance a été observé : une première phase linéaire de la croissance est observée, suivi d'une saturation.

Sur ce miroir IAD, une matrice de dommages initiaux a été réalisée. Il s'agit de dommages laser intrinsèques, initiés à  $45^\circ$  en polarisation P à une fluence de  $1,42 \pm 0,05\text{J/cm}^2$  (le seuil d'endommagement

1-on-1 en polarisation P étant pour le miroir IAD  $1,18 \pm 0,01 \text{ J/cm}^2$ ). Des expériences de croissance ont ensuite été réalisées sur ces dommages à différentes fluences de croissance. Sur la Figure 5-9, on compare les coefficients de croissance mesurés sur le miroir e-beam et le miroir IAD. La fluence est exprimée en termes de fluence normalisée par rapport à la fluence seuil 1-on-1 de chaque miroir.

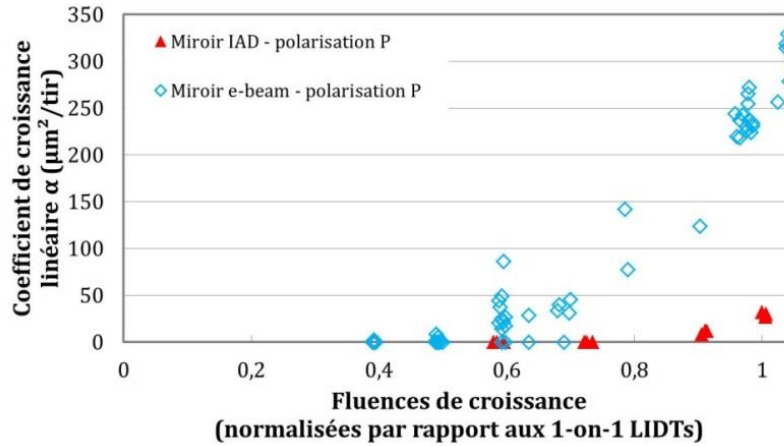


Figure 5-9 : Comparaison des coefficients de croissance linéaires mesurés sur le miroir e-beam et le miroir IAD. Les fluences ont été normalisées par rapport à la fluence seuil d'endommagement des matériaux dans les polarisations testées.

On note qu'après normalisation par les fluences seuil d'endommagement respectives, l'évolution des coefficients de croissance pour une même polarisation dépend des structures étudiées. Un constat qui est fait est que le comportement en croissance est fortement dépendant de la nature des miroirs interférentiels (bien que la fonction optique des 2 miroirs soit la même, le nombre de couches et leur épaisseur sont différentes), indices et tenues au flux des matériaux utilisés pour leur conception. Par exemple, pour du  $\text{HfO}_2$  déposé en couche par plusieurs fabricants ou laboratoires avec des techniques différentes, les études menées à l'Institut Fresnel ont révélé des écarts de tenue au flux laser d'environ 7% [23]. Cet aspect sera étudié via une modélisation dans la suite du chapitre.

#### 5.A.2.iv Influence de la polarisation sur le phénomène de croissance.

L'influence de la polarisation sur le comportement de la croissance a également été observée sur ce même miroir IAD. Toujours à partir de la même matrice de dommages initiaux décrite dans le paragraphe précédent, des expériences de croissance ont été menées dans les deux polarisations P et S à différentes fluences. Les coefficients de croissance linéaires ont été déterminés pour l'ensemble des dommages testés et les résultats sont rapportés dans la Figure 5-10.

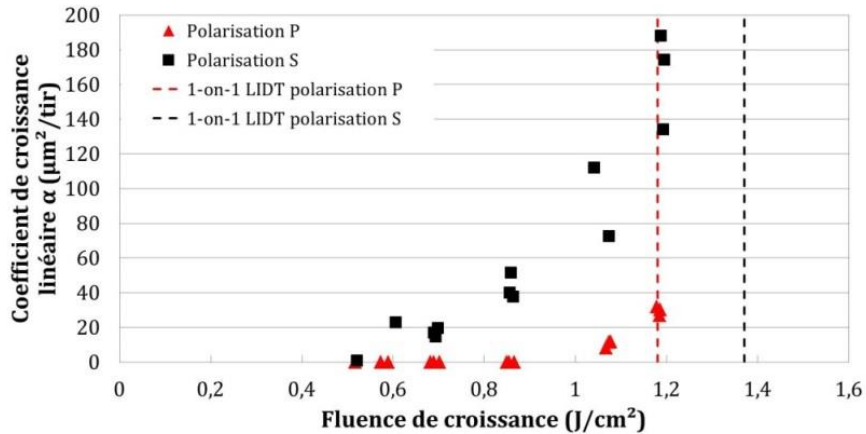


Figure 5-10 : Evolution du coefficient de croissance linéaire en fonction de la fluence de croissance en polarisation S et en polarisation P pour le miroir IAD.

Un constat immédiat peut être fait : pour une fluence donnée, les coefficients de croissance sont plus faibles pour la polarisation P que pour la polarisation S. Egalement, on voit que le seuil de croissance se décale : le seuil de croissance en polarisation P est plus élevé qu'en polarisation S. En résumé, la polarisation P est favorable à une faible évolution de la surface endommagée. C'est un comportement qui est contre-intuitif par rapport à la tenue au flux laser intrinsèque du miroir, meilleure en polarisation S qu'en polarisation P. Dans la suite de ce chapitre, nous avons voulu expliquer ce comportement, en modélisant le phénomène de croissance.

## 5.B Modélisation numérique de la croissance des dommages.

Comme illustré dans la section précédente, lorsqu'un dommage initié sur une structure réfléchive est soumis à de multiples irradiations, il est sujet à un phénomène de croissance. Jusqu'à maintenant, nous avons observé la croissance de dommages variés et mesuré des fluences seuils de croissance, des coefficients de croissance ainsi que des probabilités de croissance. Dans cette partie, nous nous sommes attachés à modéliser le phénomène de croissance des dommages présentant une structure basique (trou à bords droits), en utilisant le logiciel de calcul par méthode des éléments finis COMSOL. Afin de valider cette modélisation, des expériences de croissance similaires ont été réalisées sur le miroir IAD présenté dans la section précédente, sur lequel des dommages initiaux basiques ont été usinés. Pour cette partie, le miroir IAD a été finement caractérisé. Dans une 1<sup>ère</sup> partie, nous allons donner les caractéristiques de ce miroir, qui sert de point de départ à la modélisation. Le modèle sera, dans un 2<sup>ème</sup> temps, décrit et comparé aux expériences de croissance.

### 5.B.1 Présentation du miroir considéré pour la simulation.

L'objectif de cette étude est de comparer des expériences de croissance avec des modélisations numériques. Un jeu de paramètres d'entrées est nécessaire pour ce modèle. Ainsi les paramètres d'entrée de la modélisation correspondent aux caractéristiques réelles du miroir utilisé pour l'expérience. Elles sont décrites dans cette section. Le miroir considéré est le miroir IAD.

#### 5.B.1.i Description des propriétés optiques du miroir.

La réponse spectrale de ce miroir est donnée dans la Figure 5-11. Elle a été calculée à partir des données fournies par le constructeur. La largeur de la bande spectrale est suffisamment grande pour que le miroir

conserve son pouvoir réfléchif à 1030nm, longueur d'onde d'étude. Pour information, les coefficients de réflexion pour une incidence de 45° à 1030nm et 1053nm sont donnés dans Tableau 5-1.

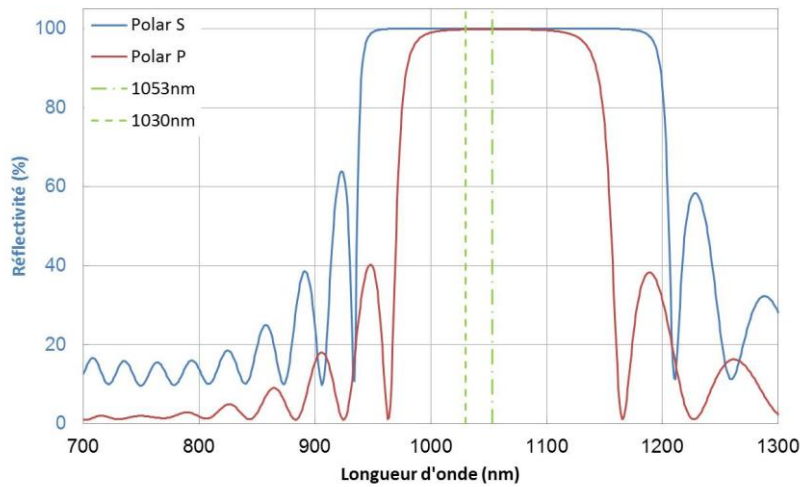


Figure 5-11 : Réponse spectrale à une incidence de 45° du miroir considéré dans cette section. La réponse est centrée sur 1053nm mais la largeur de la bande spectrale est suffisamment large pour conserver un fort pouvoir réfléchif à 1030nm (réflectivité supérieure à 99,5%).

Longueur d'onde	Polarisation	Réflectivité (%)
1030nm	S	99,9982
	P	99,7621
1053nm	S	99,9985
	P	99,8263

Tableau 5-1 : Coefficients de réflexion du miroir à 1030nm et 1053nm

En complément, la répartition du champ électrique dans ce miroir a été calculée pour une incidence de 45° et une longueur d'onde de 1030nm. Elle est donnée dans la Figure 5-12 pour une polarisation rectiligne horizontale (P) et verticale (S) de la lumière. De façon classique pour un miroir quart d'onde (cf. Chapitre 2), on observe un renforcement maximal du champ électrique dans les premières couches du miroir diélectrique suivi d'une atténuation rapide du champ électrique. En d'autres termes, le champ électrique pénètre difficilement dans les couches profondes du miroir. Les valeurs des intensités maximales du champ électrique dans les deux premières couches sont données dans le Tableau 5-2.

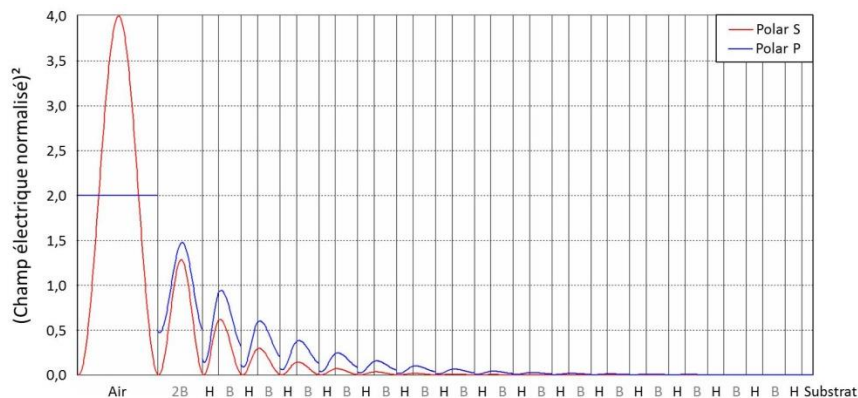


Figure 5-12 : Représentation 1D de la distribution du champ électrique dans le miroir étudié pour une incidence de 45° et une longueur d'onde de 1030nm. Il correspond à l'EFI, i.e. le champ électrique au carré normalisé par le champ incident. Une surintensification importante a lieu dans les deux cas de polarisation au milieu de la couche supérieure du miroir. La seconde surintensification a lieu à l'interface entre les 2 couches H et B suivantes. Le calcul a été réalisé grâce au logiciel TFCalc® [68].

Polarisation	EFI <sub>max</sub> dans la 1 <sup>ère</sup> couche (2B)	EFI <sub>max</sub> dans la 2 <sup>ème</sup> couche (H)
S	1,286	0,617
P	1,476	0,941

Tableau 5-2 : Valeurs des intensités maximales du champ électrique dans les deux premières couches du miroir IAD.

La suite des modélisations numériques va être réalisée avec le logiciel multiphysique COMSOL® pour une structure 2D simulant la propagation du champ électrique dans un empilement interférentiel à haute réflectivité en présence d'un dommage.

### 5.B.1.ii Résistance du composant au flux laser.

La tenue au flux laser de ce miroir a également été mesurée. Des tests 1-on-1 (décrits dans le Chapitre 4) dans les deux polarisations S et P ont été effectués sur ce miroir et les résultats de ces tests sont reportés dans le Tableau 5-3.

Type de test	Polarisation	Seuil de tenue au flux (J/cm <sup>2</sup> )
1-on-1	S	1,37 ± 0.01
	P	1,18 ± 0.01

Tableau 5-3 : Résultats des tests de tenue au flux laser réalisés sur le miroir IAD.

Parallèlement, les matériaux ayant servi à la conception du miroir IAD ont été testés au flux laser indépendamment. Les seuils intrinsèques de tenue au flux 1-on-1 de la silice et de l'oxyde d'Hafnium, déposés en monocouches sur des substrats de BK7, sont donnés dans le Tableau 5-4. La définition de fluence seuil intrinsèque a été introduite dans le Chapitre 2. Pour rappel, elle est calculée comme étant la fluence seuil d'endommagement mesurée expérimentalement, dans un plan normal à l'axe de propagation du faisceau, corrigée par la surintensification maximale du champ électrique (EFI<sub>max</sub>).

Type de test	Fluence seuil intrinsèque d'une monocouche SiO <sub>2</sub> (J/cm <sup>2</sup> )	Fluence seuil intrinsèque d'une monocouche HfO <sub>2</sub> (J/cm <sup>2</sup> )
1-on-1	1,81 ± 0.03	1,44 ± 0.02

Tableau 5-4 : Seuil intrinsèque d'endommagement de monocouches de SiO<sub>2</sub> et de HfO<sub>2</sub>, matériaux qui constituent le miroir IAD.

A partir de la mesure de la fluence seuil intrinsèque des monocouches, l'Équation 2-17 permet de calculer la tenue au flux théorique du miroir. La couche limitant la tenue au flux laser est la première couche 2B de silice (le rapport  $\frac{F_{int,SiO_2}}{EFI_{max,1ere\ couche}}$  est plus faible que le rapport  $\frac{F_{int,HfO_2}}{EFI_{max,2eme\ couche}}$ ) et les valeurs de tenue au flux théorique du miroir sont données et comparées aux valeurs réelles mesurées durant un test 1-on-1 dans le Tableau 5-5.

Polarisation	Fluence seuil théorique (J/cm <sup>2</sup> )	Fluence seuil 1-on-1 mesurée (J/cm <sup>2</sup> )	Ecart
S	1,41	1,37 ± 0.01	3%
P	1,23	1,18 ± 0.01	4%

Tableau 5-5 : Comparaison entre le seuil théorique du miroir IAD et le seuil mesuré avec des tests 1-on-1. La fluence seuil théorique est déduite de la répartition du champ électrique et de la tenue au flux des matériaux.

L'écart entre la fluence seuil théorique et la fluence seuil mesurée est faible et du même ordre de grandeur que l'incertitude sur la mesure relative de la fluence seuil d'un composant optique (pour ce miroir IAD, elle

est de 1%). Si la distribution du champ électrique est modifiée du fait de la présence d'un défaut structurel dans le miroir, la tenue au flux du miroir peut s'en voir affaiblie [83]. En particulier, si un dommage est formé à la surface du miroir, son influence sur la propagation du champ électrique peut provoquer un phénomène de croissance. Dans la suite de ce chapitre, nous nous sommes appuyés sur le lien entre surintensification du champ électrique et endommagement laser pour développer un modèle numérique décrivant le phénomène de croissance des dommages.

## 5.B.2 Modélisation numérique de la croissance des dommages.

### 5.B.2.i Présentation de la modélisation.

Le miroir considéré pour illustrer ce modèle est le miroir IAD dont les caractéristiques (épaisseurs des couches, indices des matériaux et fluence seuil des matériaux) sont utilisées comme paramètres de la modélisation. A partir de cette structure, la façon la plus simple de décrire un dommage laser sur un miroir est de considérer qu'il s'agit d'un trou à fond plat et à bords lisses à la surface du traitement optique. Il est représenté sur la Figure 5-13 avec le sens de propagation de la lumière. Les simulations qui suivent ont été réalisées grâce au logiciel COMSOL en utilisant deux modules :

- Le module « Radio-Frequency » permettant de résoudre les équations de Maxwell et ainsi de calculer via la méthode de calcul par éléments finis la distribution du champ électrique dans une structure.
- Le module « LiveLink Matlab » permettant de faire la passerelle entre le logiciel COMSOL et le logiciel MATLAB et ainsi de profiter des outils matriciels et algorithmiques proposés par ce dernier.

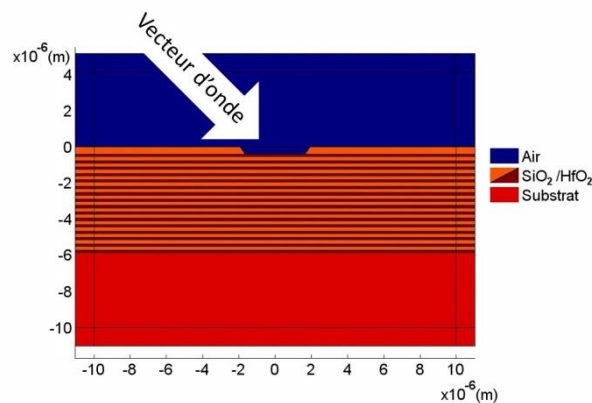


Figure 5-13 : Structure initiale : présence d'un dommage modèle qui correspond à un trou à la surface du miroir et de profondeur  $2B$ , i.e. qui consiste en une délamination localisée de la première couche.

Afin de décrire un phénomène de croissance, nous avons développé un algorithme itératif. Lors de chaque itération, nous calculons la distribution du champ électrique modifiée par la présence d'une structure. Connaissant la fluence seuil intrinsèque des matériaux utilisés dans le design du miroir et la répartition du champ électrique, il est possible de calculer la fluence seuil d'endommagement en chaque point de la structure en utilisant l'Équation 2-16. Considérons ensuite une fluence de tir  $F_{tir}$  : si la fluence seuil locale d'endommagement est supérieure à  $F_{tir}$ , la structure est laissée intacte. Si la fluence seuil locale d'endommagement est inférieure à  $F_{tir}$ , le miroir est localement endommagé. Une hypothèse forte prise dans notre modèle est de considérer uniquement un phénomène de délamination, i.e. lors d'une forte surintensification du champ dans la structure, la zone où la surintensification a lieu est éliminée



uniquement si elle est à l'interface avec l'air. Cette géométrie modifiée est ensuite utilisée dans la nouvelle itération. Cet algorithme est résumé dans la Figure 5-14.

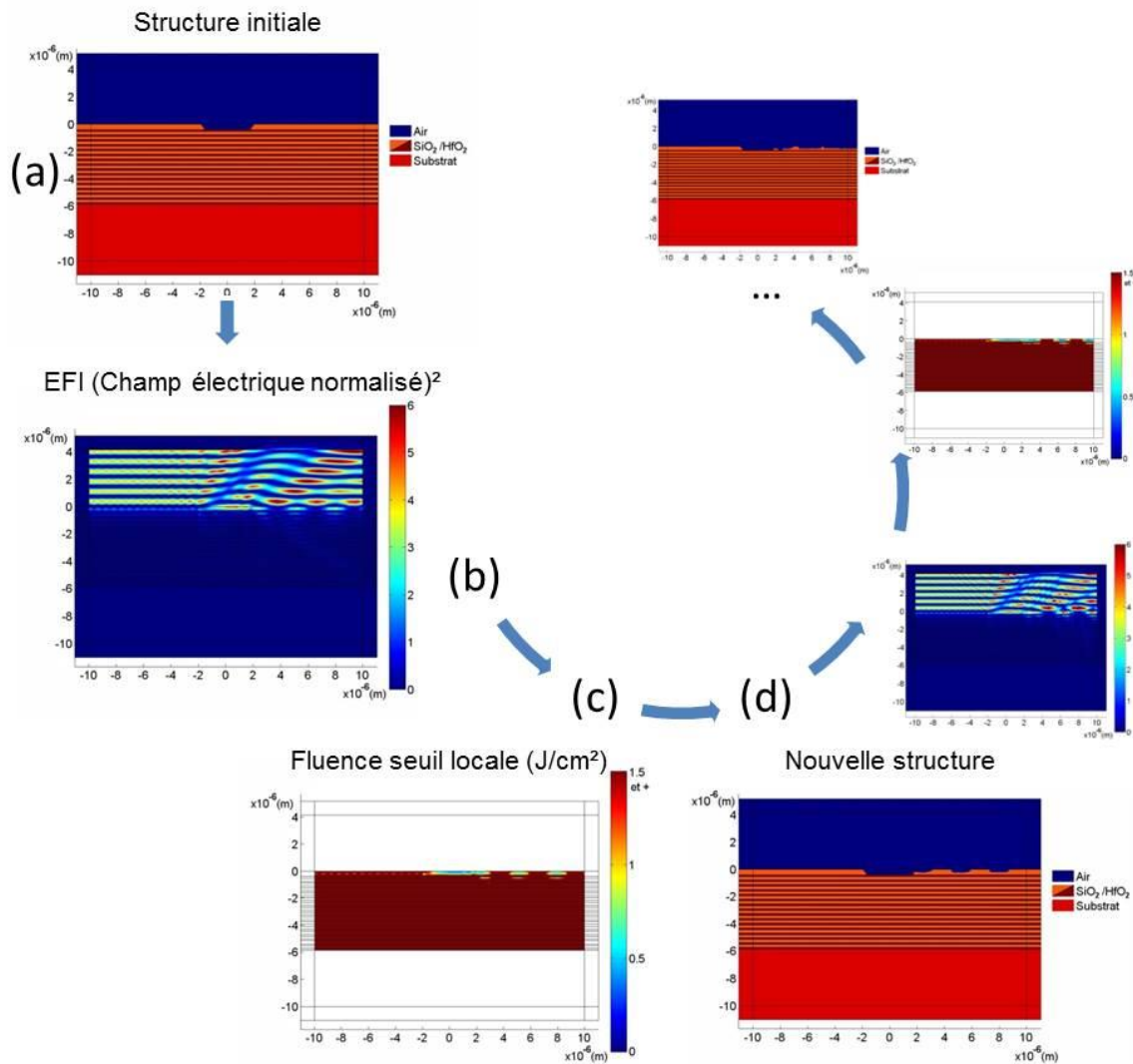


Figure 5-14 : Principe de la modélisation de la croissance des dommages : a) La structure initiale est définie. Une onde plane avec un champ électrique polarisé rectilignement (polarisation S dans cet exemple) est appliquée à cette structure. b) Le champ électrique est perturbé et modifié par la présence du trou à la surface du miroir, générant des surintensifications du champ. c) En divisant localement la fluence seuil intrinsèque du SiO<sub>2</sub> ou du HfO<sub>2</sub> par l'intensité du champ électrique normalisée, on obtient la fluence locale seuil en chaque point de la structure. d) Dans cet exemple, la fluence de tir est de 0,95 J/cm<sup>2</sup>. Chaque point du miroir qui a une fluence seuil locale supérieure à 0,95 J/cm<sup>2</sup> n'est pas impacté. Les zones où la fluence seuil locale est inférieure à 0,95 J/cm<sup>2</sup> sont délaménées. Cette nouvelle structure est ensuite utilisée pour une nouvelle itération.

Dans l'exemple présenté dans la Figure 5-14, l'onde lumineuse incidente est une onde polarisée rectilignement S. Le modèle développé pour cette étude permet également de simuler un phénomène de croissance pour un autre état de polarisation. Il est intéressant de regarder l'influence de la dimension des dommages sur le phénomène de croissance. Dans la section qui suit, nous allons vérifier la validité de ce modèle en le confrontant à l'expérience.

### 5.B.2.ii Les paramètres généraux de la modélisation.

Tout type de structure diélectrique est paramétrable dans ce modèle. Les données d'entrée sont :

- Le nombre de couches diélectriques,
- L'épaisseur des couches interférentielles,

- Les indices de matériaux utilisés,
- Les fluences seuil d'endommagement de ces matériaux,
- Les conditions opératoires (angle d'incidence, longueur d'onde, état de polarisation et la fluence des irradiations laser lors de la séquence de croissance).

Dans un premier temps, le champ électrique dans le miroir parfait, dépourvu de défaut est calculé, supposant une structure infinie périodique. Ce champ est ensuite utilisé comme un terme source pour calculer l'effet d'un dommage sur la propagation du champ électrique. Des couches absorbantes, appelées PML (Perfect Matched Layer) sont activées autour du domaine de simulation afin d'éviter les phénomènes de réflexion par les bords de la fenêtre de calcul.

Nous avons donc utilisé ce modèle pour modéliser la croissance des dommages sur le miroir IAD, connaissant les caractéristiques de ce miroir (voir section 5.B.1). La géométrie des dommages initiaux utilisée dans ce modèle est une coupe 2D d'un trou trapézoïdal localisé à la surface du miroir au niveau des premières couches. La dimension totale de la géométrie du modèle a été limitée par 2 critères :

- Obtenir un temps de calcul raisonnable (environ 1 heure pour une séquence de croissance avec 10 tirs)
- La cohérence avec les expérimentations menées avec un faisceau au profil spatial gaussien.

Concernant le temps de calcul, il est dépendant du nombre d'éléments utilisés dans le maillage du modèle pour la résolution par méthode des éléments finis. Afin de résoudre convenablement les équations de Maxwell dans les couches interférentielles du miroir, 2 critères de maillage sont imposés :

- Les couches du miroir doivent être découpées au minimum en 4 cellules de calcul.
- La taille maximale d'une cellule doit être 7 fois plus petite que la longueur d'onde.

Le maillage imposé par ces critères est donc très fin et demande un temps de calcul important. La dimension totale de la géométrie est donc limitée à un rectangle de  $20 \times 14 \mu\text{m}^2$ . Egalement, dans le modèle COMSOL, l'onde incidente est une onde plane avec un profil énergétique plan. Lors des expériences menées en laboratoire, le faisceau utilisé est un faisceau gaussien focalisé de diamètre  $65 \mu\text{m}@1/e$  dans le plan de focalisation. Pour une incidence de  $45^\circ$ , il est possible de considérer que le profil énergétique du faisceau est quasiment plan sur une section de faisceau de  $20 \mu\text{m}$  centré sur le dommage (variation de la densité d'énergie dans cette section inférieure à 5%) : les conditions expérimentales dans cette fenêtre sont ainsi cohérentes avec le modèle numérique. Enfin, la dimension du dommage initial a été adaptée à la taille de la fenêtre de calcul et est identique à la dimension des dommages usinés que nous présentons dans le paragraphe suivant. Le trou initial est donc un trapèze de diamètre supérieur (à la surface)  $3,9 \mu\text{m}$  et de diamètre inférieur (au fond du trou)  $3,3 \mu\text{m}$ .

### 5.B.3 De la modélisation à l'expérience.

#### *5.B.3.i Fabrication de dommages modèles pour l'expérimentation.*

D'un point de vue expérimental, nous avons donc reproduit cette morphologie de dommage modèle initial sur le miroir IAD afin de confronter modélisations numériques et expériences. Des dommages modèles ont été réalisés à l'Institut Fresnel en utilisant un FIB (Focus Ion Beam) qui est une technique d'abrasion ionique. La largeur des trous a été gardée fixe pour tous les profils gravés. Plusieurs profondeurs de gravure ont été réalisées. Pour chaque paramètre de gravure, environ 10 trous modèles sont réalisés.

L'échantillon, placé dans une enceinte à vide est irradié par un faisceau d'ions Gallium focalisé aux moyens de lentilles électrostatiques. En frappant la surface de l'échantillon, les ions Gallium vont ablater la matière de façon très précise et contrôlée. Le dispositif FIB est couplé à un microscope électronique à balayage (MEB) qui permet d'observer la structure juste après usinage sans casser le vide de l'enceinte. Pour pouvoir réaliser les gravures au FIB, la surface du composant doit être métallisée. La fine couche métallique déposée sur le composant a pour but de protéger les zones non-usinées des éjections de matière ablatée. Egalement, le profil spatial du faisceau d'ions focalisé étant généralement chahuté, la couche métallique permet de protéger le composant en limitant la zone érodée uniquement là où le faisceau est le plus intense. Le composant sera gravé uniquement là où le faisceau est le plus intense, ce qui permet d'améliorer la précision de l'abrasion ionique. Enfin, le FIB étant couplé à un MEB, la métallisation est avantageuse pour réaliser des observations avec un faisceau d'électrons. Pour rappel, la technique MEB consiste à envoyer un faisceau d'électrons sur la surface d'un composant. Les électrons secondaires réémis par la surface sont utilisés pour déterminer la topographie et la morphologie de la surface. La métallisation permet d'écouler les charges superficielles qui se forment à la surface du composant. La gravure au FIB est réalisée perpendiculairement à l'échantillon et l'observation au MEB se fait avec une incidence oblique. Il est à noter qu'une observation avec le FIB de la topographie du composant est possible en analysant les ions secondaires réémis par la surface. Toutefois, cette méthode est légèrement destructive et il est préférable dans le cas de composants fragiles d'observer la surface avec un faisceau d'électrons, beaucoup moins destructeur. Les observations au MEB faites avec ce même dispositif sont données dans la Figure 5-16. Nous souhaitons après usinage retrouver les caractéristiques initiales du composant. Il faut donc que la couche métallique soit facilement retirable. Une solution consiste à déposer préalablement une couche de résine sur le composant. Cette résine, appelée PMMA (Polyméthacrylate de Méthyle), est facilement soluble dans un solvant de type acétone ou dichlorométhane. La métallisation est ensuite réalisée directement sur la couche de résine et est retirée en même temps que cette dernière. La résine est déposée sur le composant par une méthode appelée « spin-coating ». Cette technique consiste à déposer une goutte de matériau sur un composant en rotation. La force centrifuge va répartir le traitement sur la surface avec une épaisseur homogène. Une fois la couche de résine réalisée sur le composant, il est alors possible de déposer une fine couche nanométrique d'or par évaporation d'une cible métallique à l'intérieur d'une cloche d'évaporation. Cette couche d'or sera éliminée en même temps que la résine. La photographie du dispositif ainsi que le principe de fonctionnement sont donnés dans la Figure 5-15.

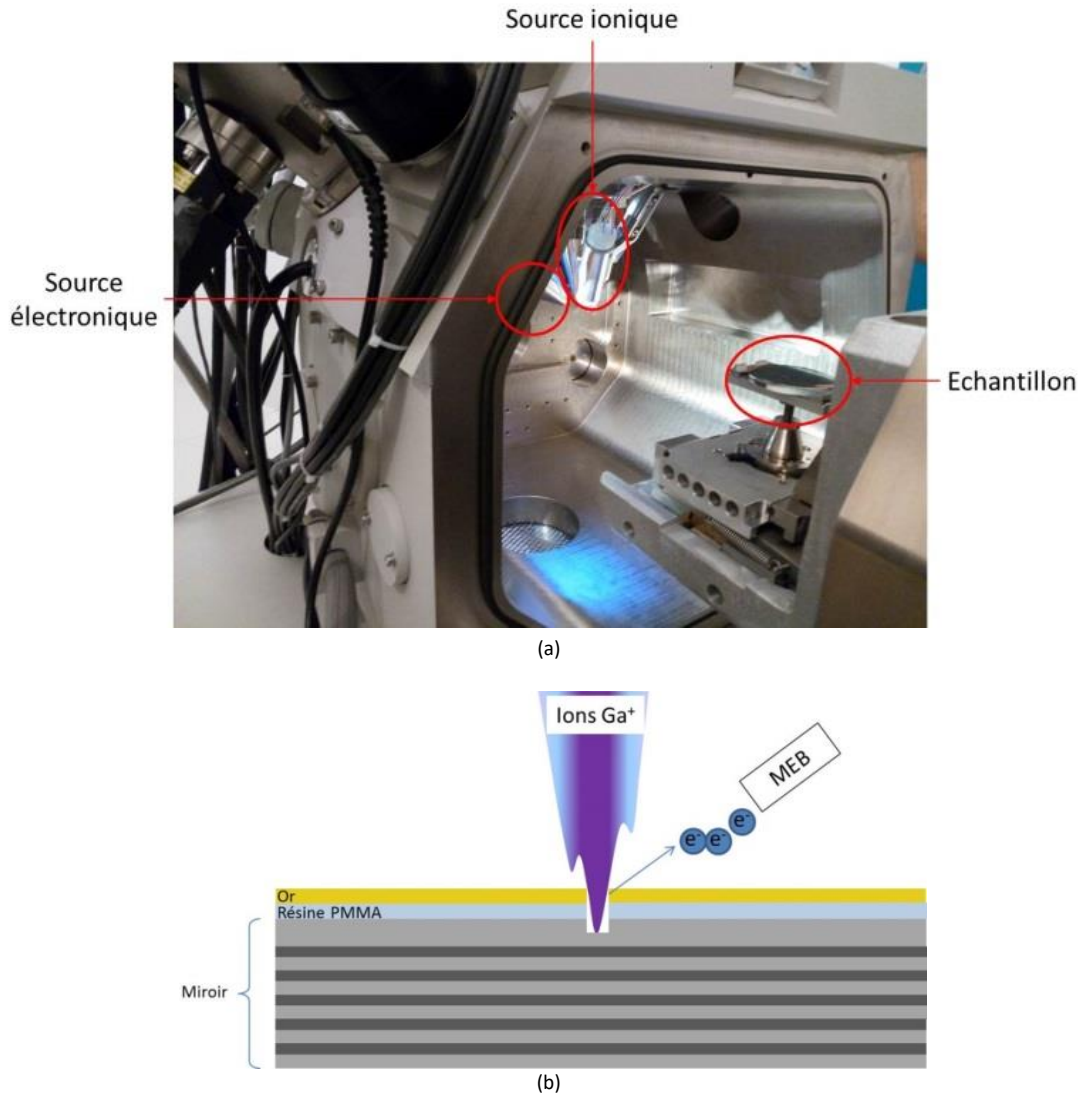


Figure 5-15 : (a) Photographie de l'enceinte du dispositif FIB (Focused Ion Beam) ouverte dans laquelle l'échantillon est déposé pour gravure et (b) schéma de principe : des ions Gallium sont focalisés sur un composant recouvert d'une résine et d'une couche d'or. La source ionique est positionnée à la normale du composant à graver. La source électronique permettant une observation au MEB (Microscopie électronique à balayage) est positionnée à une incidence oblique par rapport au plan de l'échantillon.

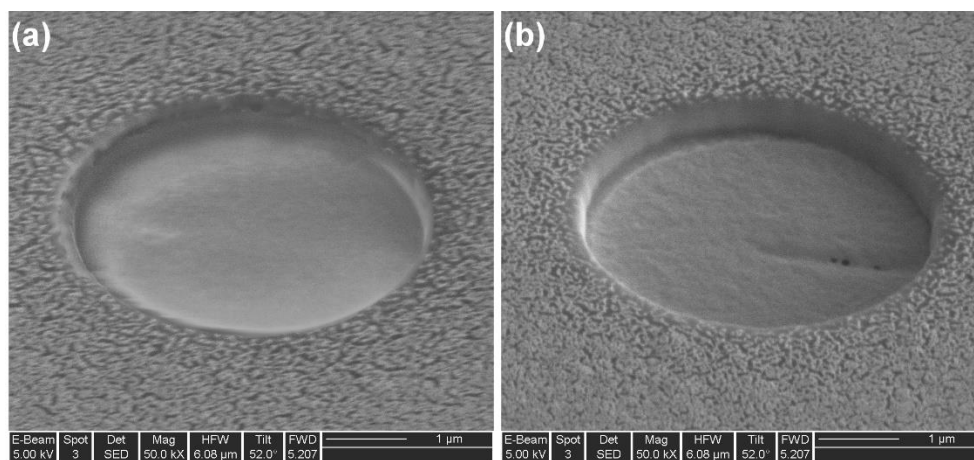


Figure 5-16 : Observation au MEB des deux profils usinés sur le miroir IAD. La couche de résine PMMA et la couche d'or n'ont pas été retirées pour cette observation. L'observation est réalisée à une incidence oblique par rapport au plan de l'échantillon. La largeur des trous gravés est maintenue constante pour les deux profils. Seule la profondeur est différente ((a) est moins profond que (b)). La profondeur abrasée est établie avec une mesure réalisée à l'aide d'un AFM (voir Figure 5-18).

Après l'usinage au FIB, les couches d'or et de PMMA sont retirées dans un bain d'acétone chauffé à 40°C. Un deuxième lavage est réalisé dans un bain de dichlorométhane (solvant plus agressif) afin de retirer les résidus de résine qui ont davantage adhéré au composant, comme observé sur la Figure 5-17. Enfin un nettoyage final de l'échantillon est réalisé à l'éthanol avec la technique Dry-Wipe, utilisé sur les composants optiques afin d'éviter les traces de nettoyage.

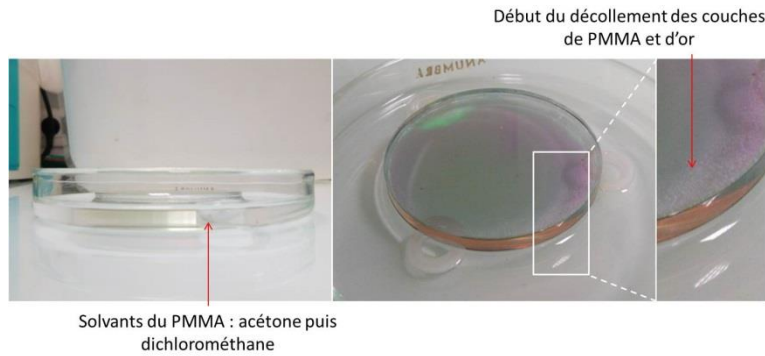
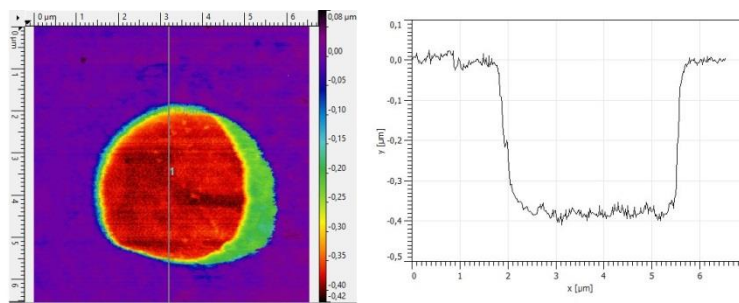
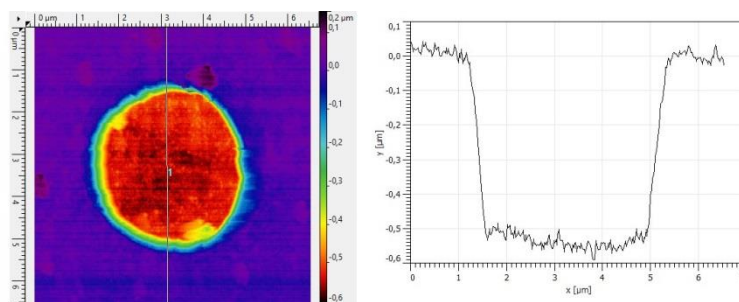


Figure 5-17 : Etape de nettoyage du composant. Le composant est plongé dans un bain d'acétone puis dans un bain de dichlorométhane pendant 2 heures.

Des structures ont été laissées intactes afin de caractériser de façon complète les profils gravés. Elles sont observées à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM, Atomic Force Microscopy). Des exemples d'observations sont donnés dans la Figure 5-18. Les dommages modèles ainsi créés sont des trous circulaires de diamètre en surface  $3,9 \mu\text{m}$  et de profondeurs  $400\text{nm}$  ou  $550\text{nm}$ , ce qui correspond respectivement à l'ablation de la première couche de silice d'épaisseur  $2B$ , ou à l'ablation de la première couche  $2B$  et de la couche suivante H d'oxyde d'Hafnium.



(a) Trou de profondeur  $400\text{nm}$



(b) Trou de profondeur  $550\text{nm}$

Figure 5-18 : Observation au microscope à force atomique de trous réalisés à l'aide d'un FIB sur un miroir diélectrique. Des coupes verticales des profils sont rapportées (figures de droite). Les trous usinés ont une forme trapézoïdale avec un diamètre de la base haute d'environ  $3,9\mu\text{m}$ , de la base basse de  $3,3\mu\text{m}$  et une profondeur de (a)  $400\text{nm}$  et de (b)  $550\text{nm}$ . Sur l'exemple (a), l'épaisse bande à droite du trou (de profondeur environ  $200\text{nm}$ ) est un artefact de mesure AFM qui n'est pas observé au MEB.

Pour s'assurer que la procédure de nettoyage n'a pas altéré les propriétés du composant, des tests 1-on-1 ont été réalisés sur ce composant et un composant jumeau issu du même lot de fabrication. Les résultats de ces tests donnent une valeur de tenue au flux laser identique pour ces deux composants.

### 5.B.3.ii Comparaison entre modélisations et expériences.

Afin de vérifier la cohérence de notre code par rapport aux expériences, il a été nécessaire de définir des paramètres d'études aisément modifiables aussi bien d'un point de vue modélisation que d'un point de vue expérimental. Un paramètre d'étude simple à modifier est la polarisation. Dans le code de simulation, COMSOL permet aux utilisateurs de passer rapidement du cas S au cas P pour la résolution des équations de Maxwell. D'un point de vue expérimental, il est aisé de passer d'une polarisation horizontale P, à une polarisation verticale S, en utilisant une lame demi-onde.

Dans la Figure 5-20 qui suit, nous rapportons les résultats de la simulation de la croissance d'un dommage initial de profondeur 400nm, équivalent à l'épaisseur de la première couche, dans le cas d'une irradiation avec une onde polarisée S. La fluence de tir pour la simulation est de  $0,95 \text{ J/cm}^2$ , soit 70% de la fluence seuil d'endommagement en polarisation S. Nous avons choisi cette valeur pour la simulation afin de comparer les résultats avec une séquence de croissance réalisée sur un dommage modèle de 400nm. L'irradiation, dans la modélisation comme dans l'expérience, est réalisée à  $45^\circ$ , le faisceau venant de gauche. Elle est représentée sur la Figure 5-19. Expérimentalement, pour l'ensemble des trous modèles, un tir d'amorce à la même fluence a été nécessaire avant d'initier et d'observer le phénomène de croissance. La nécessité de ce tir d'amorce peut éventuellement s'expliquer par la présence de résidus de résine après le nettoyage, que le faisceau élimine lors du premier tir. Ainsi, sur la Figure 5-20 et la Figure 5-21, l'observation *in-situ* du tir 1 correspond en réalité à l'observation après 2 tirs laser.

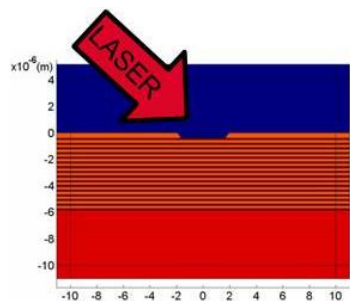
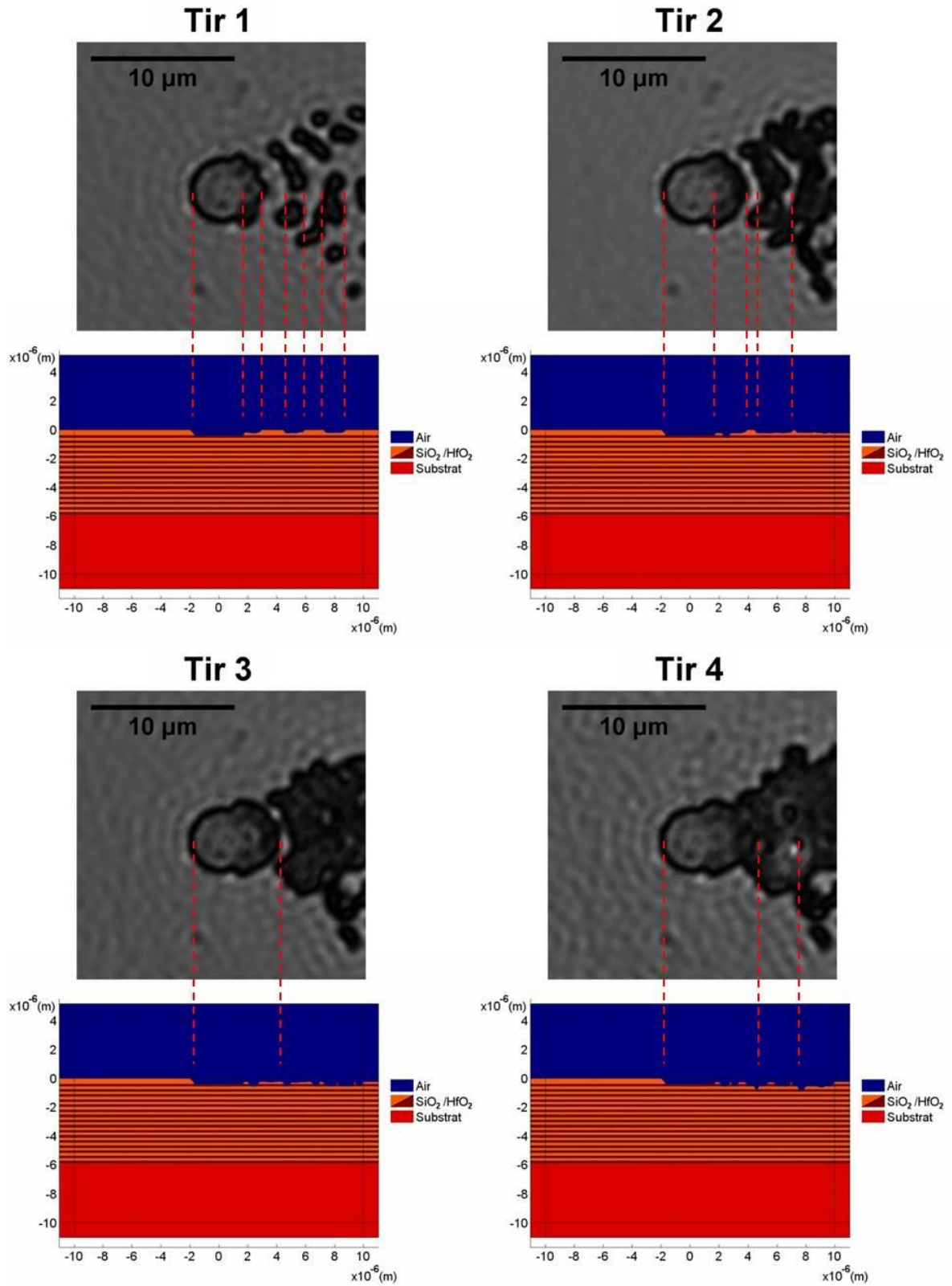


Figure 5-19 : Orientation du faisceau laser par rapport au dommage initial.

Pour les premiers tirs, une structure périodique apparaît à droite du trou initial, résultant d'une forte surintensification du champ à pas réguliers. Via l'expérience, nous retrouvons cette figure en arc de cercle autour du dommage initial, suivi tir à tir par une délamination unilatérale des différentes couches du miroir.

**Cas 1 : polarisation S**



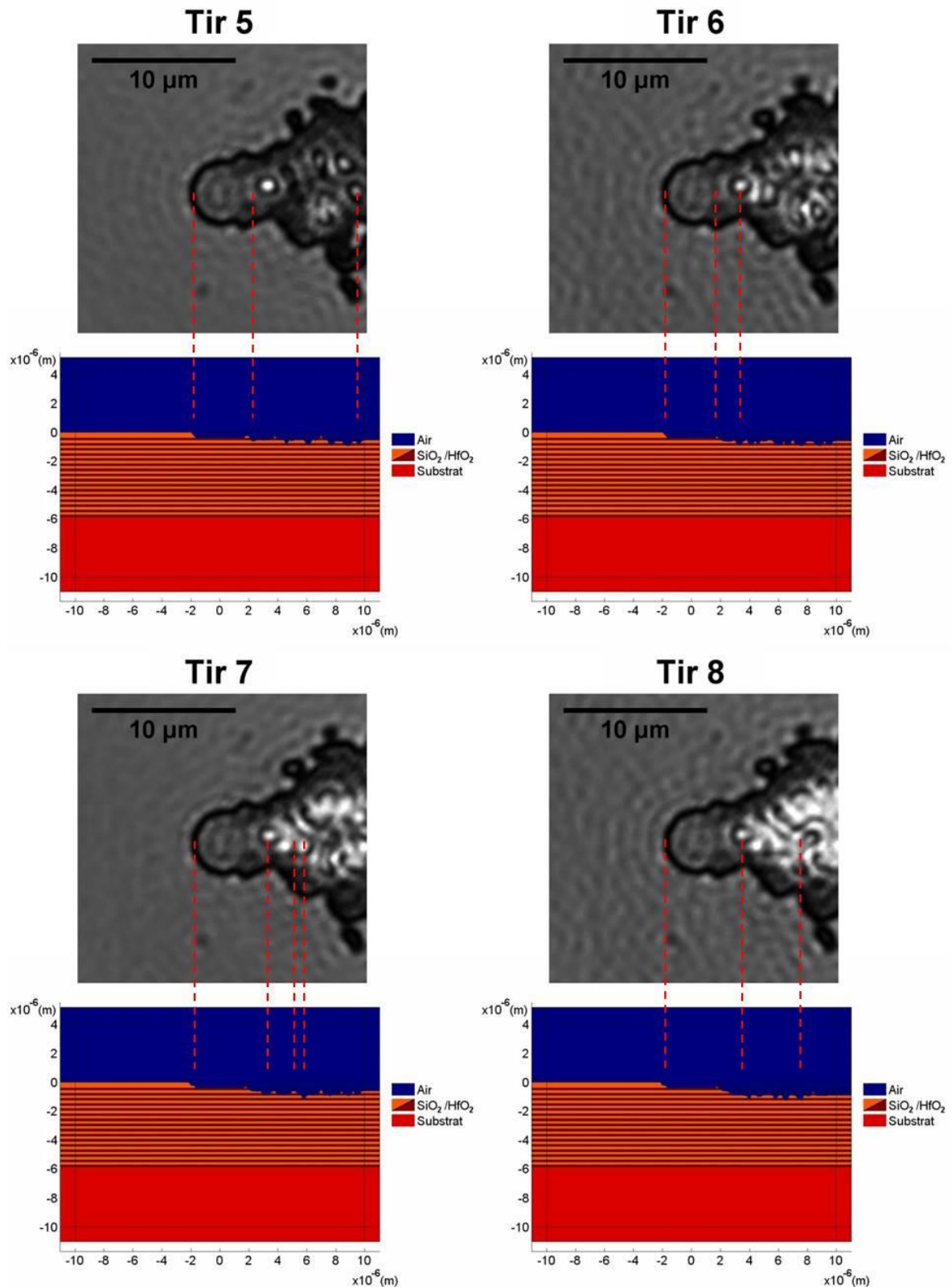
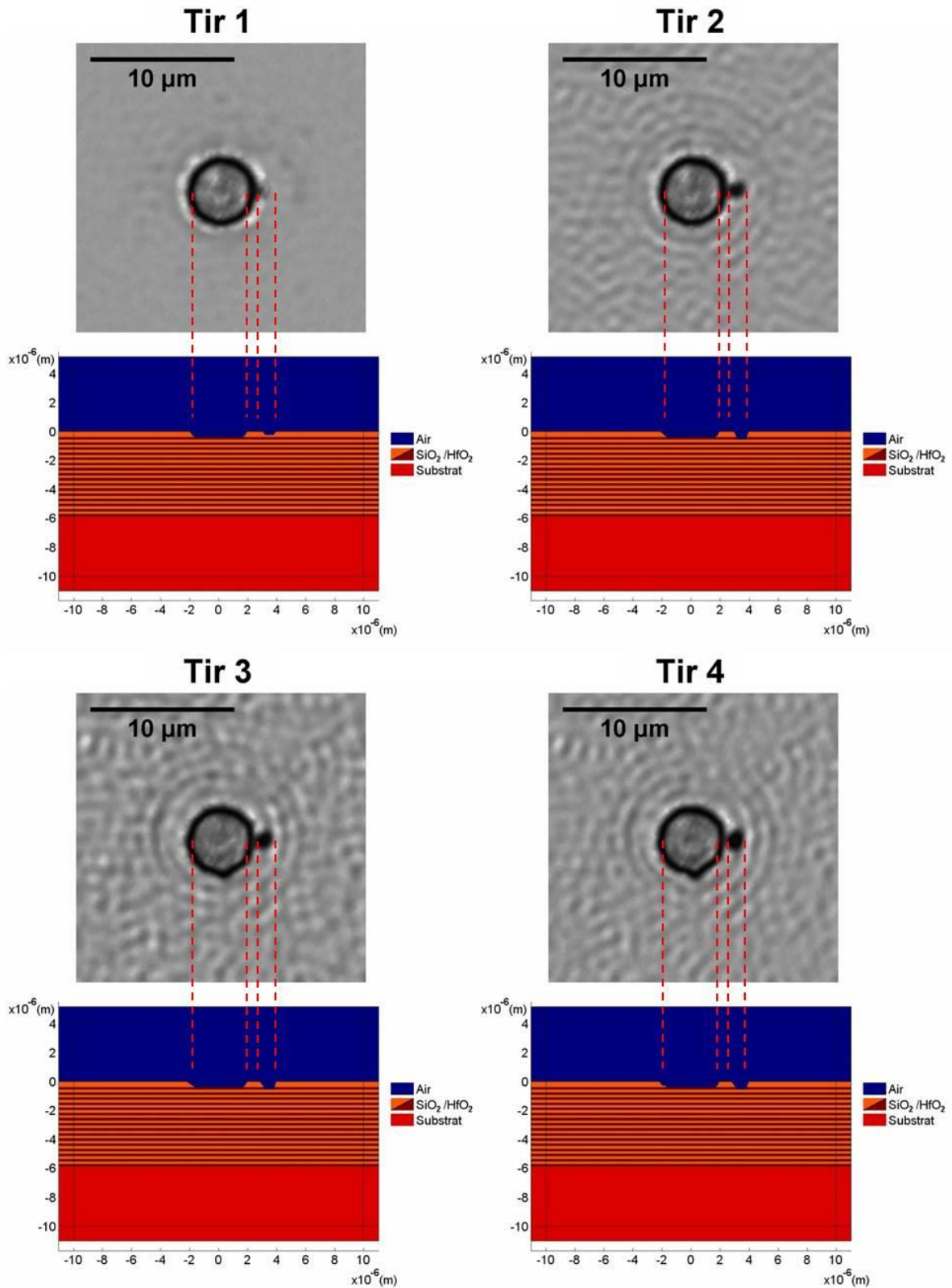


Figure 5-20 : Séquence de croissance d'un dommage avec une irradiation polarisée S. Pour la modélisation, la structure initiale du dommage modèle est celle présentée dans la Figure 5-13. Pour la croissance expérimentale, le dommage initial est présenté dans la Figure 5-16(a). Afin d'être le plus cohérent avec les trous initiaux réalisés par FIB, un profil trapézoïdal de dommage initial a été rentré dans la modélisation, avec une grande base de 3,9 $\mu\text{m}$  et une petite base de 3,3 $\mu\text{m}$ . La fluence expérimentale des tirs est de 0,94 J/cm<sup>2</sup>. La fluence de croissance utilisée pour la modélisation est de 0,95 J/cm<sup>2</sup>. 8 tirs successifs sont réalisés. Pour chaque tir, on superpose le résultat de la modélisation à l'observation expérimentale. Des structures similaires sont repérables.



Nous avons réalisé la même simulation et la même séquence de croissance en polarisation P et les résultats sont illustrés dans la Figure 5-21. La fluence de tir pour la simulation est également de  $0,95 \text{ J/cm}^2$ , soit 80% de la fluence seuil d'endommagement en polarisation P.

**Cas 2 : polarisation P**



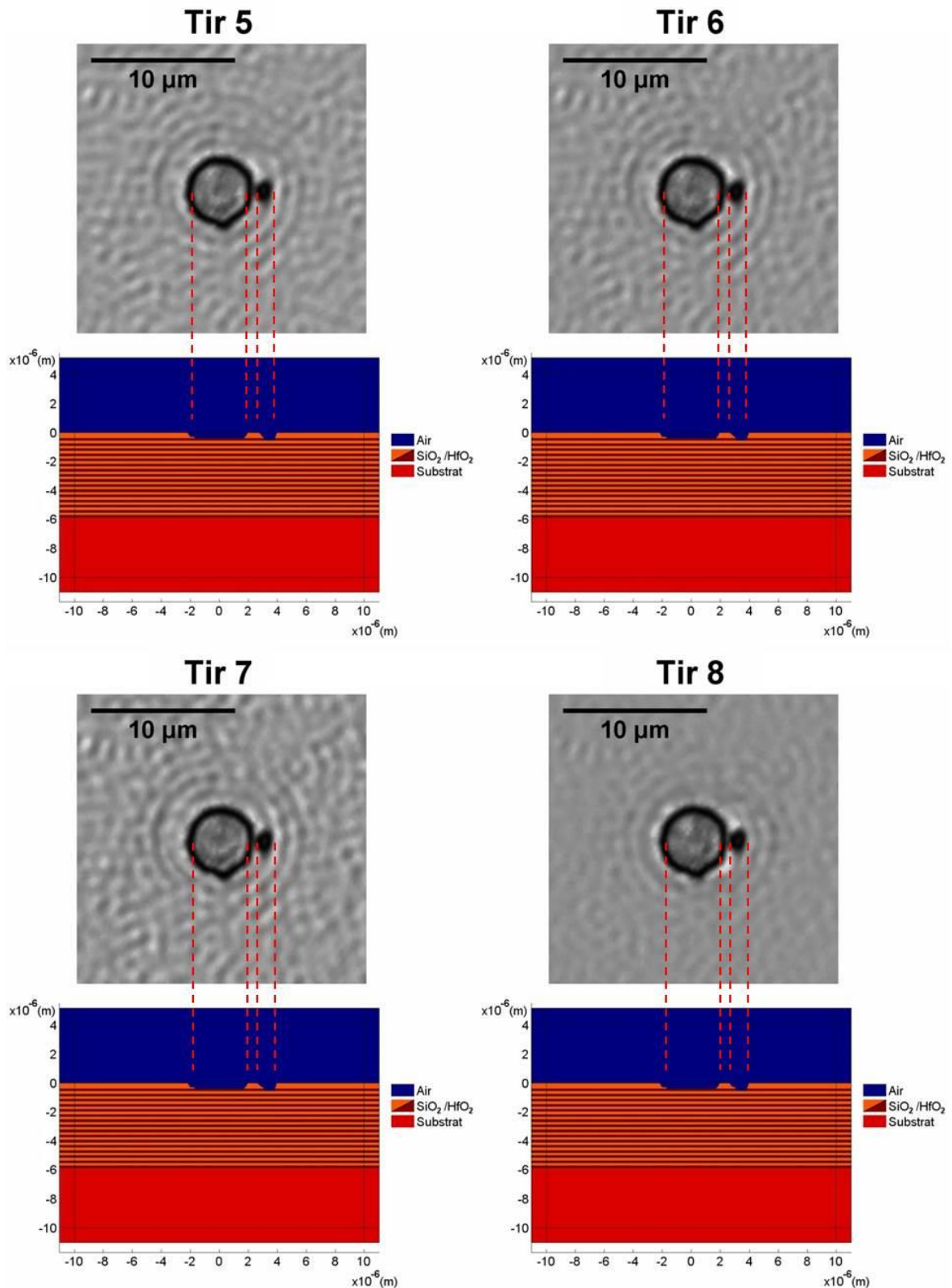


Figure 5-21 : Séquence de croissance d'un dommage avec une irradiation polarisée P. Pour la modélisation, la structure initiale du dommage modèle est celle présentée dans la Figure 5-13. Pour la croissance expérimentale, le dommage initial est présenté dans la Figure 5-16(a). Le dommage initial possède la même morphologie que celui illustré sur la Figure 5-20. La fluence expérimentale des tirs est de  $0,96 \text{ J/cm}^2$ . La fluence de croissance utilisée pour la modélisation est de  $0,95 \text{ J/cm}^2$ . 8 tirs successifs sont réalisés. Pour chaque tir, on superpose le résultat de la modélisation à l'observation expérimentale. L'évolution du dommage en polarisation P est très faible.

A l'inverse du cas d'une polarisation S, la croissance des dommages, pour une même fluence, en polarisation P est très limitée, voire inexistante. Ce constat est observé aussi bien dans les résultats de la modélisation qu'expérimentalement.

Des résultats forts ressortent de cette comparaison entre expériences et simulations. Tout d'abord, les résultats de la modélisation, obtenus en considérant uniquement l'évolution du champ électrique, semblent cohérents avec les observations des croissances expérimentales. L'évolution des dommages lors des premières itérations du modèle sont semblables à l'expérimentation. Egalement, elles permettent de comprendre le comportement de la croissance en polarisation P, très lent par rapport à la croissance en polarisation S.

Après ces expériences de croissance, des profils de dommages ont été mesurés à l'AFM et permettent d'établir l'endommagement en profondeur du miroir, tel que calculé avec COMSOL. Sur la Figure 5-22, nous rapportons (a) le résultat d'une croissance menée en polarisation S et (b) en polarisation P avec 20 tirs laser. L'observation in-situ au microscope optique est reliée à la mesure du profil réalisée à l'AFM. Il est à noter que les échelles des deux figures sont très différentes. Egalement, sur la Figure 5-22(a), le dommage mesure environ  $50\mu\text{m}$  alors que la fenêtre de la modélisation est de  $20\mu\text{m}$  : ceci explique la fenêtre tronquée sur le graphe du bas.

Si on compare les mesures AFM aux résultats du modèle après 20 tirs, on remarque que le trou modèle initial reste inchangé aussi bien expérimentalement que numériquement.

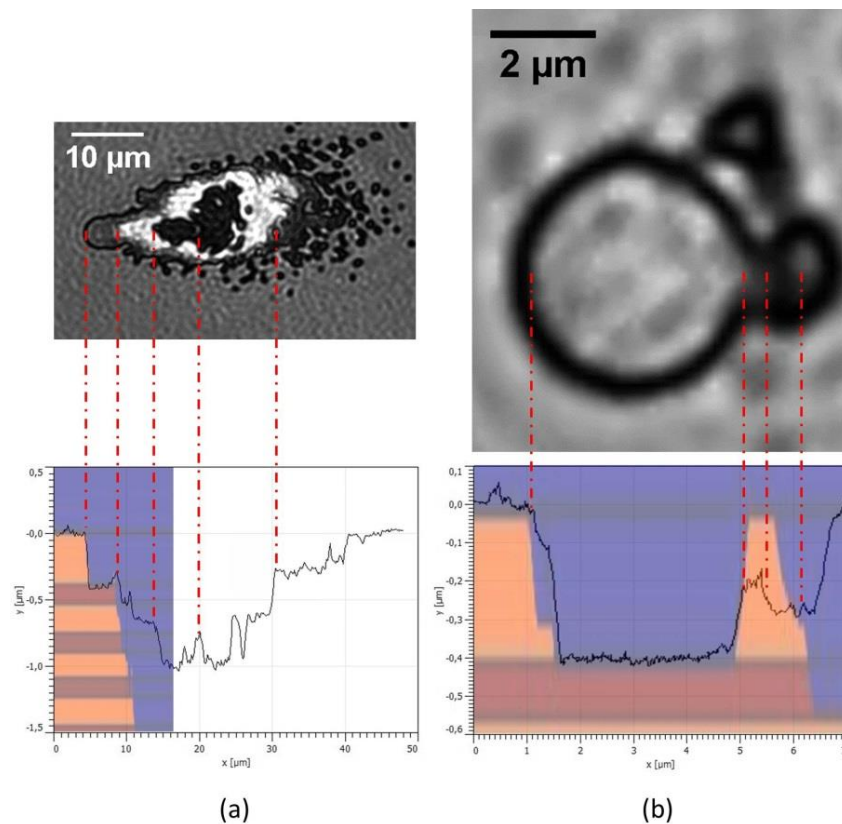


Figure 5-22 : Superposition de l'observation au microscope optique, du profil mesuré à l'AFM (courbe en noir) et du résultat de la modélisation (image en fondue superposée : le bleu représente l'air et le rouge/orange représente le  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ). Sur la figure (a), le dommage expérimental est très grand par rapport à la fenêtre de calcul : seule une partie du dommage est comparée à la modélisation. Le dommage initial est un trou trapézoïdal avec une grande base de  $3.9\mu\text{m}$  et une petite base de  $3.3\mu\text{m}$ , de profondeur  $400\text{nm}$ . (a) Dommage issu d'une séquence de croissance en polarisation S. (b) Dommage issu d'une séquence de croissance en polarisation P.

Quelques écarts sont constatés quant aux profondeurs ablatées. Plusieurs hypothèses sont émises :

- La connaissance du miroir utilisé comme paramètre d'entrée de la simulation : les données utilisées sont les données du fabricant et de possibles différences entre le miroir déposé et le miroir supposé peuvent, tir à tir, amener une divergence entre la modélisation de la croissance et l'expérience.
- La tenue au flux laser des différents matériaux. Les matériaux testés indépendamment n'ont peut-être pas exactement la même tenue au flux que les matériaux intégrés dans la structure interférentielle.
- Le code utilisé est un code 2D alors que le dommage est un trou 3D. La dimension supplémentaire du dommage peut avoir un impact sur la distribution du champ électrique dans le miroir. Notamment, la morphologie en arc de cercle qui se profile au début de la séquence de croissance en polarisation S n'est pas restituée sur notre modèle COMSOL 2D.
- Pendant la croissance, lorsque le dommage commence à présenter une structure chaotique, des effets de diffusion peuvent s'ajouter.
- Dans le modèle, la maille possède une dimension finie : d'un point de vue expérimental, des structures plus petites que la maille considérée peuvent être générées durant la croissance, entraînant un écart entre observation et modélisation.
- Le caractère mécanique est négligé lors cette étude. Cependant, la structure en couches minces optiques est une structure très contrainte. Ce paramètre peut modifier la façon dont le miroir est délaminé tir à tir. L'influence du substrat par exemple sur le dépôt diélectrique peut être très importante. A titre d'exemple, sur la Figure 5-23, nous rapportons des observations de dommages réalisés sur deux miroirs identiques (fabriqués dans le même bâti de dépôt lors du même cycle de fabrication) mais déposés sur 2 substrats différents (BK7 et Silice fondue). Il est à noter que lors du dépôt, les substrats sont maintenus à une température élevée. La différence de coefficients de dilatation thermique entre ces deux matériaux peut engendrer des contraintes mécaniques différentes lors du refroidissement. Ce phénomène peut éventuellement justifier la différence de morphologie entre les deux dommages. Une étude plus poussée serait à mener sur ce sujet.

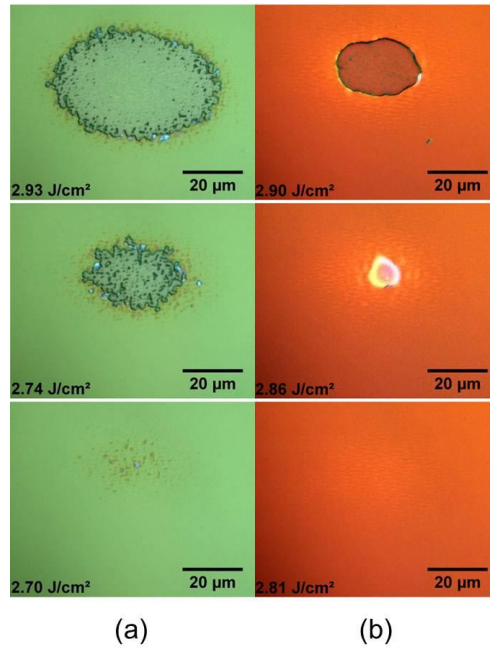


Figure 5-23 : Différence de morphologie pour un même miroir (même dépôt diélectrique réalisé en même temps dans la même enceinte) déposé sur deux substrats différents. (a) Substrat de BK7 (b) Substrat de silice fondue. Les miroirs ont été testés à 45° et les fluences d’irradiation mesurées en section droite sont données en bas à gauche des observations.

Toutefois, le rôle de la polarisation sur le phénomène de croissance a bien été représenté par la modélisation. Bien que défavorable pour la tenue au flux laser de miroirs quart d’onde, la polarisation P (ou TM) limite le phénomène de croissance. En d’autres mots, pour une même fluence de croissance, le même dommage évolue beaucoup plus rapidement avec le nombre de tirs en polarisation S qu’en polarisation P. Ce résultat, issu de la modélisation est confirmé par les expériences menées sur des dommages initiaux modèles, tous identiques. En régime nanoseconde, Qui et al. ont travaillé sur la stabilisation des dommages laser sur miroirs diélectriques par un laser femtoseconde [113]. Le laser femtoseconde est utilisé afin de restructurer le profil de la zone endommagée de façon à réduire l’effet de surintensification. La structure stabilisée consiste en un retrait total du traitement réfléchif autour de la zone initialement endommagée afin de créer un cratère aux bords très propres. Ils ont calculé, pour les deux polarisations S et P, la valeur maximale du champ électrique dans les structures stabilisées en fonction du profil remodelé et de l’angle d’incidence. Pour l’ensemble des profils stabilisés simulés, ils calculent un renforcement plus important du champ électrique dans le cas d’une polarisation S, comme cela peut être observé sur la Figure 5-24. Ce résultat est cohérent avec les modélisations de croissance présentées et également avec les expériences de croissance.

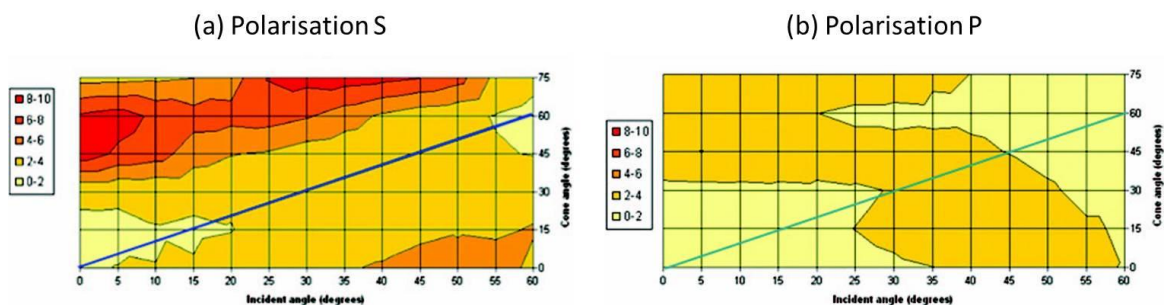


Figure 5-24 : Calculs du renforcement maximal du champ électrique (a) en polarisation S et (b) en polarisation P dans des structures coniques. Il s’agit de trous réalisés dans un miroir diélectrique qui permettent d’éliminer/stabiliser un dommage. Un renforcement plus important du champ électrique est constaté en polarisation S (figures issues de [113]).

Un autre point qui a été observé lors de notre étude est le caractère déterministe du phénomène de croissance. A titre d'exemple, nous avons rapporté dans la Figure 5-25, des séquences de croissance de plusieurs dommages modèles identiques. Dans la Figure 5-26, nous avons reporté l'évolution de l'aire endommagée mesurée sur ces 6 sites. Des comportements quasi identiques sont observés pour toutes les croissances en polarisation S et toutes les croissances en polarisation P. Egalement, le caractère interférentiel de l'endommagement, notamment observé lors du 2<sup>ème</sup> tir avec l'apparition systématique d'une structure périodique endommagée en polarisation S, nous conforte dans l'idée qu'il est possible de modéliser numériquement la croissance grâce à un phénomène lié à la propagation du champ électrique.

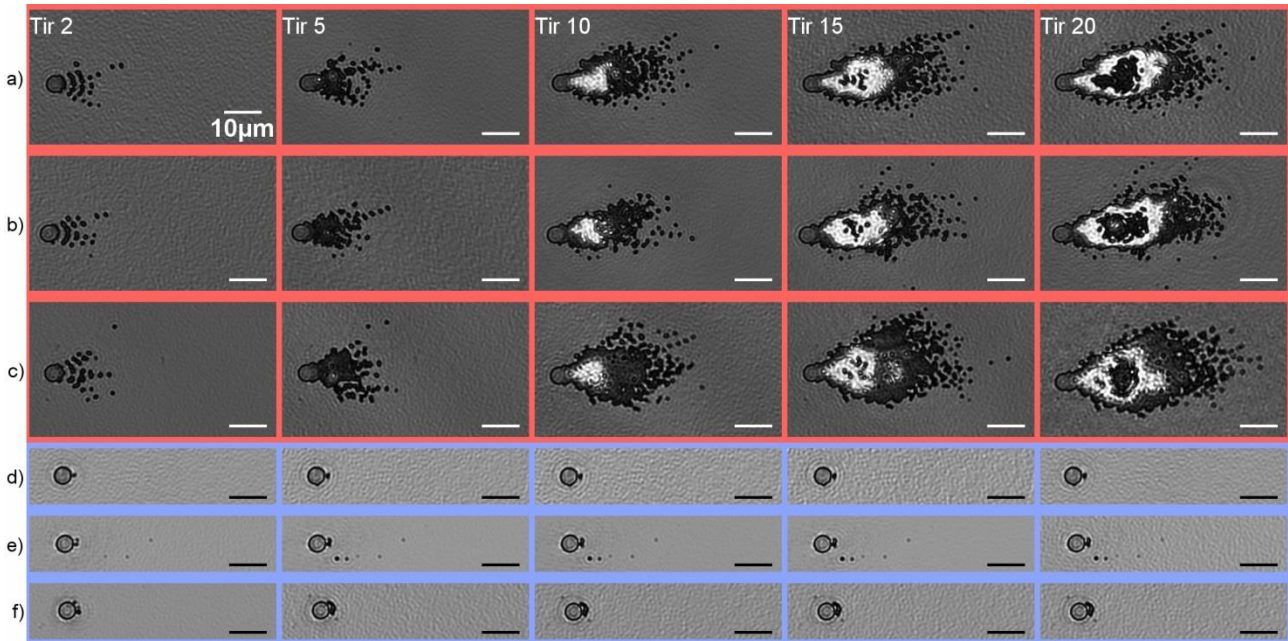


Figure 5-25 : Reproductibilité des expériences de croissance. Plusieurs séquences de croissances ont été réalisées expérimentalement en polarisation S (en rouge) et en polarisation P (en bleu). Chaque ligne correspond à un même dommage observé pendant la séquence de tir. Les dommages initiaux sont identiques de diamètre  $4.3\mu\text{m}$  et de profondeur  $400\mu\text{m}$ , créés artificiellement avec le procédé décrit dans la section 5.B.3.i. La fluence de croissance pour l'ensemble de ces dommages est de  $0.95 \pm 0.03 \text{ J/cm}^2$ .

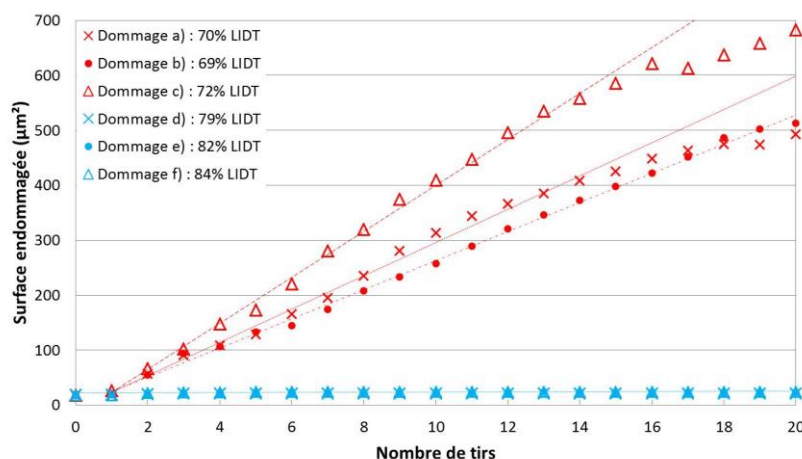


Figure 5-26 : Evolution de l'aire endommagée en fonction du nombre de tirs pour les dommages présentés dans la Figure 5-25. Des courbes de tendances ont été ajoutées. La surface endommagée évolue linéairement avec les 15 premiers tirs puis on observe un phénomène de saturation.

Pour l'ensemble de ces dommages, des coefficients de croissance linéaires ont été mesurés, de la même manière que présenté dans le paragraphe 5.A.2. Dans la Figure 5-27, on superpose les coefficients de

croissance linéaires de dommages initiaux obtenus par irradiation laser et ceux obtenus artificiellement avec le procédé FIB. Les coefficients de croissances sont du même ordre de grandeur, ce qui montre la pertinence de notre étude et notamment que les dommages modèles sont bien représentatifs des dommages laser.

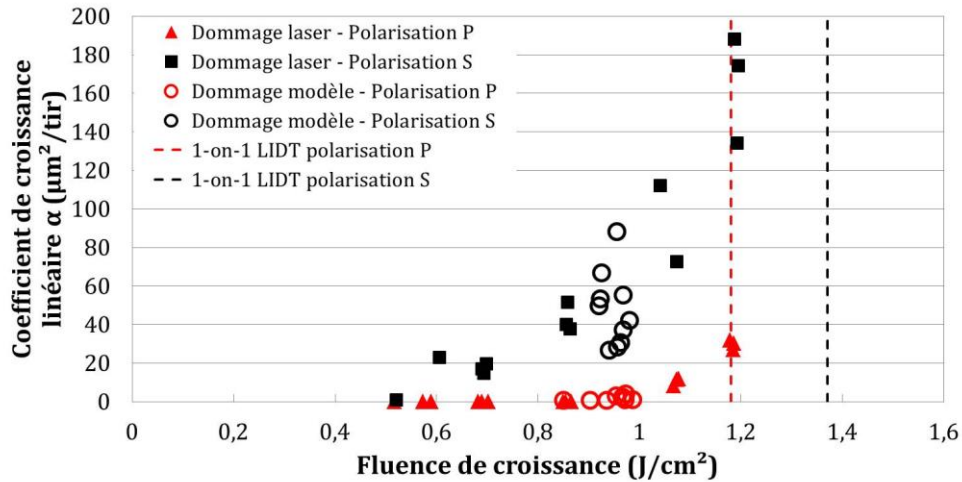


Figure 5-27 : Coefficients de croissance linéaire des dommages modèles : comparaison aux coefficients de croissance des dommages initiés par tir laser.

#### 5.B.4 Comparaison avec des observations réalisées sur PETAL.

Durant cette thèse, des campagnes expérimentales ont été menées sur l'installation PETAL. Nous avons déjà cité parmi elles la campagne permettant la validation d'un nouveau design de miroir dans le Chapitre 2. Une autre campagne visant à assurer la garantie des performances de l'installation a été réalisée durant cette thèse en 2015. L'objectif de cette campagne était de tester la résistance au flux laser d'un miroir de transport directement après la section de compression du laser PETAL. La polarisation à ce niveau est verticale S. Ce miroir est représentatif de l'ensemble de composants optiques illuminés par un faisceau sub-picoseconde en fin de chaîne laser. La mesure de sa résistance laser permet de déterminer un point de fonctionnement sûr pour l'installation. Cette configuration de test est décrite dans la Figure 5-28.

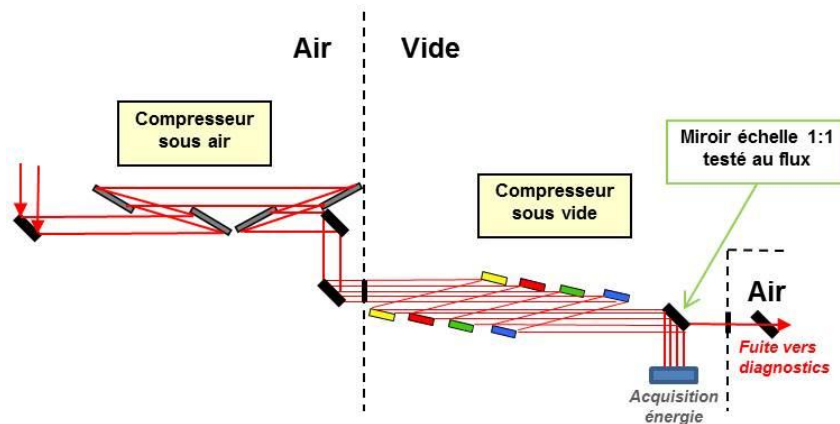


Figure 5-28 : Configuration de l'installation PETAL permettant le test de tenue au flux laser d'un composant pleine échelle, représentatif des composants réfléchissants de fin de chaîne laser. Le faisceau qui illumine le composant est polarisé TE.

Le miroir testé dans cette configuration est le miroir Echelle 1:1 ( $40 \times 60 \text{cm}^2$ ) correspondant à l'échantillon miroir IAD. Il est placé dans le caisson de compression du laser PETAL, sous vide. Sur ce miroir, deux tirs laser ont été réalisés, le premier à une énergie de 594J et le deuxième à une énergie de 1004J. Durant la campagne, un contrôle visuel de l'endommagement a été réalisé *in situ*, à travers les hublots du caisson, afin de ne pas casser le vide de l'enceinte. Les observations de ce miroir après les 2 tirs sont données dans la Figure 5-29. Il est possible de voir que, parmi les 4 pupilles du faisceau PETAL, des traces légères d'endommagement sont visibles sur les 3 pupilles seulement après le deuxième tir.

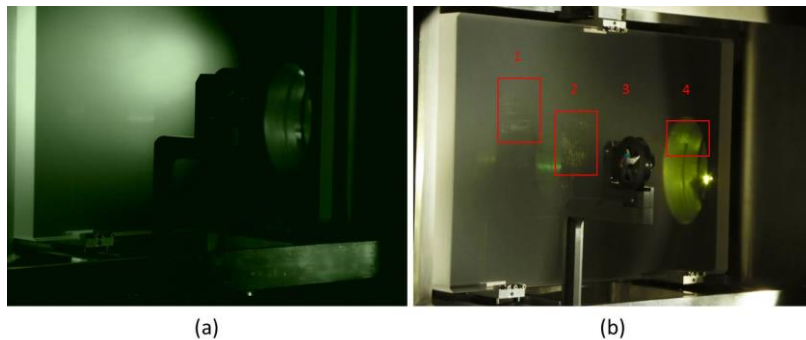


Figure 5-29 : Observation *in-situ* du miroir échelle 1:1, à travers les hublots du caisson de compression sous vide du laser PETAL, après (a) un premier tir laser à 594J pour une durée d'impulsion de 1ps et (b) un tir laser à 1004J à 1ps. Un endommagement commence à être visible pour le 2<sup>ème</sup> tir sur 3 pupilles du faisceau PETAL (les lieux d'impact des 4 pupilles du faisceau sont numérotés de 1 à 4).

Après cette campagne, le miroir a été retiré du caisson de compression et a été observé par une équipe du Laboratoire de Métrologie Optique du CEA/CESTA. Dans la Figure 5-30, nous comparons ces observations (Figure 5-30(a) et (c)) avec celles réalisées sur échantillon ayant le même traitement  $R_{\text{max}}$  et qui a été testé en laboratoire avec un faisceau sub-millimétrique (Figure 5-30(b) et (d)). Sur le miroir échelle 1:1, deux types de dommages ont été observés. Un premier type, illustré sur la Figure 5-30(a), est caractérisé par une morphologie en grains. Ce type d'endommagement est à comparer aux dommages intrinsèques obtenus sur l'échantillon en laboratoire à une fluence de tir supérieure à la fluence seuil (Figure 5-30(b)). Egalement, la morphologie en grains est à relier aux contraintes mécaniques imposées par le substrat (voir Figure 5-23), le miroir échelle 1:1 et l'échantillon ayant tous deux été réalisés sur un substrat de BK7. Un deuxième type de dommage est illustré dans la Figure 5-30 (c) : il s'agit d'un dommage de quelques microns à partir duquel une structure périodique en arc de cercle s'est formée. La même structure périodique a été observée en laboratoire lors des expériences de croissance de dommages modèles de dimension environ  $5 \mu\text{m}$  : après 1 tir en polarisation S, une structure identique a été générée.

A partir de ces observations, nous avons fait l'hypothèse du scénario suivant : lors du premier tir PETAL à 594J, la fluence d'irradiation du miroir est bien en dessous de la fluence seuil d'endommagement intrinsèque du composant réfléchissant. Toutefois, l'éjection de défauts (défauts emprisonnés dans le traitement lors du dépôt et qui forment des nodules) a généré des dommages ponctuels sur le miroir. Au tir suivant, à 1004J, ces dommages ponctuels de diamètre de l'ordre de  $5 \mu\text{m}$  ont été à nouveau irradiés par une onde lumineuse polarisée S : sous l'effet de cette impulsion, ils ont crû, générant ce motif en arc de cercle, dans le sens de propagation du faisceau laser. Egalement, pour une énergie de 1004J, la fluence dans le faisceau est supérieure à la fluence seuil d'endommagement du miroir : des dommages intrinsèques se forment.



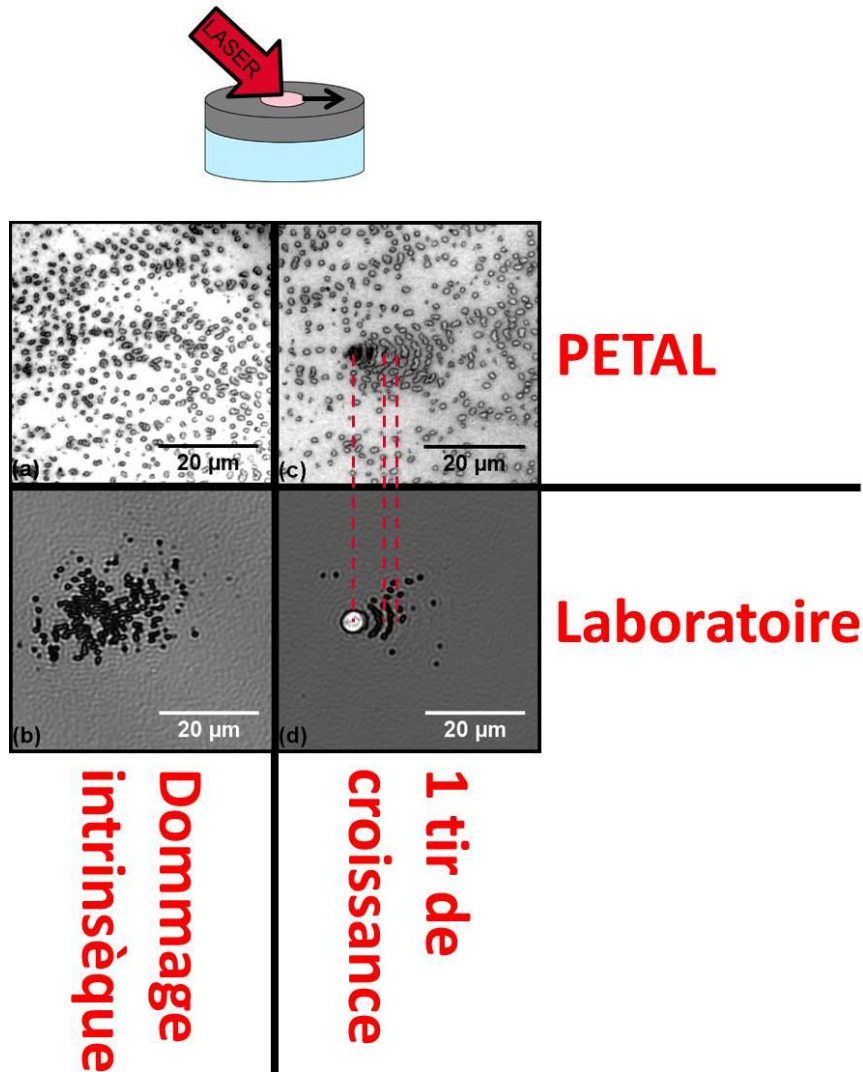


Figure 5-30 : Observation au microscope optique des dommages sur le miroir échelle 1:1 et comparaison aux tests réalisés en laboratoire sur un échantillon représentatif de ce composant. (a) et (c) Observation du miroir échelle 1:1 testé sur PETAL. (b) et (d) Observation de dommages réalisés en laboratoire. (a) et (b) Endommagement intrinsèque du composant pour une fluence de tir supérieure à la fluence seuil de tenue au flux laser : la formation de petits grains est caractéristique de l'endommagement intrinsèque de ce miroir. (c) et (d) Début de croissance de dommage en polarisation S : formation de la structure en arc de cercle. Le pas entre les arcs de cercles est très similaire sur les deux composants.

Ainsi, l'observation des comportements de croissance en laboratoire nous a fourni des informations permettant de mieux comprendre le phénomène d'endommagement rencontré sur chaîne laser. La grande similitude entre les dommages obtenus sur PETAL et en laboratoire nous conforte dans la pertinence de nos travaux sur l'étude de l'endommagement laser et de la croissance. Sur la base de ces dernières expériences, ainsi que celles rapportées dans le Chapitre 2, la transposition des résultats obtenus en laboratoire à une installation telle que PETAL semble possible.

Bien évidemment, ces premières études du phénomène de croissance en régime sub-picoseconde sont à compléter. Nous pouvons donner les perspectives d'études suivantes :

- Réaliser des tests de croissance sur des dommages modèles à des fluences variables.
- Réaliser des tests de croissance sur des dommages avec des géométries différentes (diamètres des trous, profondeurs des trous).

- Réaliser ces études paramétriques sur différents miroirs afin de vérifier l'effet de la structure interférentielle sur le phénomène de croissance.
- Compléter la modélisation (considération du faisceau gaussien, calcul 3D, fenêtre de calcul agrandie...)
- Imaginer et définir des empilements permettant de limiter la croissance en polarisation S.

## Conclusion du Chapitre 5

En réponse au chapitre précédent, nous avons montré dans ce chapitre que la probabilité de croissance d'un dommage dépendait de son initiation. A travers des tests de croissance, nous avons montré que la probabilité de croître était d'autant plus forte que la fluence d'initiation de ces dommages était forte.

Dans ce chapitre, nous avons également montré qu'après initiation d'un dommage sur une structure réfléchive, lorsqu'un dommage croît, son évolution lors d'irradiations supplémentaires suit toujours le même comportement, quel que soit l'origine du dommage initial. Lors de séquences de croissance, la surface endommagée évolue linéairement avec le nombre de tirs. A partir de ces croissances linéaires, des coefficients de croissance ont été mesurés en fonction de la fluence de croissance et il apparaît que ces coefficients sont d'autant plus élevés que la fluence de croissance est forte.

Afin d'investiguer ce phénomène, une modélisation numérique de la croissance a été développée et confrontée à des expériences de croissance sur des dommages modèles. Cette étude montre que la connaissance de la répartition du champ électrique lors des tirs successifs permet de restituer totalement le comportement en croissance des dommages. Une très bonne corrélation a été observée entre les surintensifications localisées du champ électrique dans la structure interférentielle, la tenue au flux des matériaux dans lesquelles elles se forment et l'évolution de la morphologie du dommage. L'influence de la polarisation sur le phénomène de croissance a aussi été montrée. Un résultat important à retenir est que la polarisation P est favorable à une faible croissance de la surface endommagée.

Enfin, l'observation des miroirs endommagés de l'installation PETAL montre que les morphologies observées sur des échantillons testés en laboratoire sont similaires à celles observées sur des composants réels, illustrant ainsi la cohérence et la pertinence de ces études en base arrière.

---

## Conclusion générale et perspectives

Le principal objectif de ces travaux consistait à étudier la tenue au flux laser des composants réfléchissants destinés à être utilisés dans les lasers de puissance dans le régime sub-picoseconde. De nombreux travaux ont porté jusqu'à aujourd'hui sur l'étude des mécanismes physiques responsables de l'endommagement laser dans ce régime. Avec le développement en France du laser PETAL sur le site du CEA-CESTA, mais également l'émergence de projets européens tels que ELI, ou le développement d'autres installations dans le monde telles que OMEGA-EP, ces travaux trouvent toute leur importance. Cette thèse a permis de compléter nos connaissances sur le phénomène d'endommagement laser et la façon d'évaluer la résistance au flux laser de composants optiques.

### (a) Conception d'optiques réfléchissantes.

Le principe de fonctionnement des empilements interférentiels a été introduit ainsi que leurs techniques de dépôts. Dans les installations de puissance, l'usage de matériaux diélectriques pour réaliser les différents composants optiques est quasiment systématique. Un deuxième aspect abordé concerne l'influence du champ électrique sur la tenue au flux laser des optiques. A partir des travaux précédemment menés sur le sujet, la définition d'un nouveau miroir destiné à une utilisation sur PETAL a été faite. Des tests en laboratoire ont révélé un gain de 2 sur la tenue au flux par rapport à l'ancienne version de ce miroir. Sur cette thématique, un second axe d'étude a concerné la définition de structures diffractives. Cette étude menée en collaboration avec l'équipe CLARTE de l'Institut Fresnel avait pour but de définir des structures qui induisent un faible renforcement du champ électrique. L'analyse paramétrique réalisée a été faite grâce à un modèle utilisant la méthode différentielle pour résoudre les équations de Maxwell dans des structures périodiques. Un second modèle numérique, a été développé sur COMSOL et utilise la méthode des éléments finis pour calculer la distribution du champ électrique. Les résultats fournis par ces deux méthodes sont identiques. Au cours de cette thèse, 4 structures réalisées à partir de silice, d'oxyde de scandium et d'une mixture de ces deux matériaux ont été définies. Elles sont à jour en cours de fabrication et restent à tester.

### (b) Mise en place d'un banc d'endommagement laser pour la caractérisation de ces optiques.

Afin de pouvoir tester des échantillons d'optiques, un banc d'endommagement laser fonctionnant en régime sub-picoseconde a été développé au CEA-CESTA. Il porte le nom de DERIC. L'ensemble des instruments permettant de qualifier l'énergie et le profil spatial du faisceau qui irradie les échantillons testés a été caractérisé. Les différentes sources d'incertitude sur la mesure absolue de la densité d'énergie des irradiations laser ont été identifiées : une incertitude sur la mesure absolue de la fluence de 10% a été estimée. Une attention toute particulière a également été portée à la mesure du profil temporel des impulsions délivrées par la source laser. La mise en place sur le banc DERIC de 2 diagnostics réalisés en interne au CEA-CESTA nous a permis de qualifier finement les caractéristiques temporelles des impulsions. Le premier diagnostic nous a permis de mesurer le contraste de l'impulsion : la présence de 2 pré-

impulsions et une post-impulsion a été mise en évidence. Toutefois, leurs intensités sont très faibles au regard de l'impulsion principale (d'un rapport  $10^{-3}$ - $10^{-4}$ ) et n'ont donc pas d'influence sur les tests d'endommagement qui sont réalisés sur DERIC. Le second diagnostic donne accès à la phase spectrale des impulsions. La connaissance de cette phase et du spectre en amplitude permet, par transformée de Fourier, de connaître directement les profils temporels des impulsions. Les traces d'autocorrélation calculées à partir de ces profils ont été comparées aux traces d'autocorrélation mesurées avec un autocorrélateur : une très bonne correspondance a été observée. Ainsi, la qualification fine du banc d'endommagement DERIC nous a permis d'assoir la métrologie réalisée sur cette installation.

(c) L'endommagement laser en régime sub-picoseconde et son caractère déterministe.

Ce banc d'endommagement DERIC a été utilisé pour réaliser des mesures de tenue au flux laser de composants optiques. L'endommagement laser dans le régime d'impulsion courte est connu pour avoir un comportement déterministe lié aux propriétés électroniques des matériaux et à la répartition du champ électrique. Partant de ce postulat, nous avons développé une méthode permettant de mesurer le seuil d'endommagement d'un composant grâce à une seule irradiation laser. Elle repose sur la corrélation entre le profil du dommage et le profil spatial du faisceau. Des écarts inférieurs à 6% ont été mesurés entre les résultats donnés par cette technique dite mono-shot et les procédures standards. Cette nouvelle procédure offre la possibilité de mesurer rapidement et avec précision la tenue au flux d'un composant, tout en limitant la surface consommée sur le composant.

(d) Caractère probabiliste de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde : application à une nouvelle métrologie.

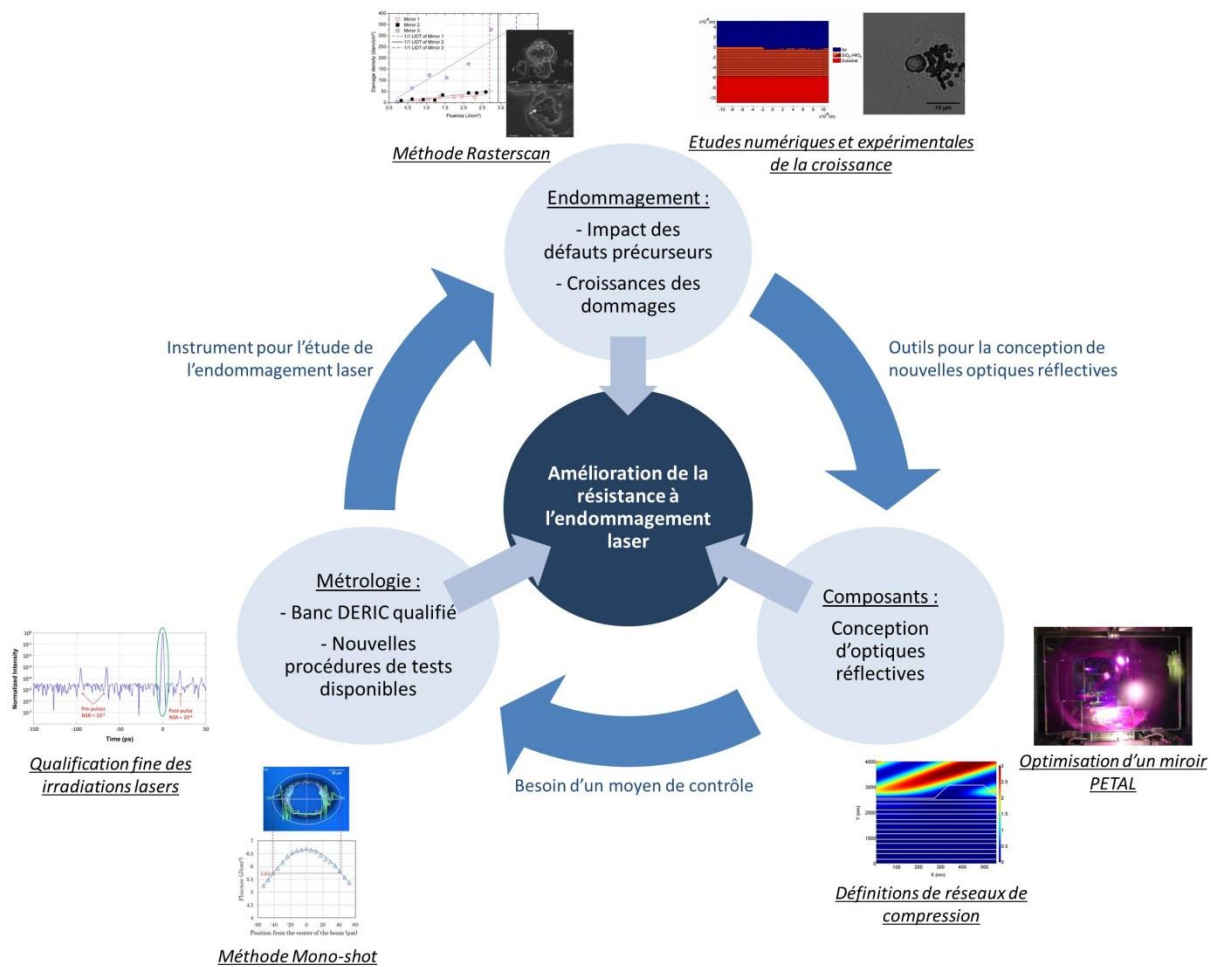
Jusqu'à maintenant, l'aspect déterministe de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde a prévalu sur l'aspect probabiliste. A l'instar de l'endommagement nanoseconde, la présence de défauts dans les traitements optiques couches minces abaissent fortement leur résistance au flux laser. Des endommagements induits par la présence de ces défauts peuvent être observés pour des fluences très basses (typiquement 20% du seuil d'endommagement « déterministe » des composants). Afin d'estimer la qualité d'un composant, nous avons développé et appliqué la procédure Rasterscan au régime sub-picoseconde. Les résultats de ces tests sont donnés en termes de densité de dommages et apportent un nouveau point de vue pour la qualification des optiques réfléchives. Le Rasterscan se présente donc comme un nouvel outil pour l'optimisation des procédés de fabrication des optiques.

(e) De l'initiation des dommages à leur croissance.

Une fois qu'un dommage est initié, nous avons voulu connaître son comportement lors d'irradiations supplémentaires. Des expériences menées sur différents dommages (initiés sur des défauts, initiés à des fluences supérieures à la fluence seuil d'endommagement des composants ou fabriqués artificiellement) ont révélé que la surface des dommages croissait linéairement avec le nombre de tirs lors des séquences de croissance. Le coefficient de croissance linéaire est d'autant plus grand que la fluence des irradiations est forte. Un modèle numérique conçu grâce au logiciel COMSOL a été développé afin de comprendre le phénomène de croissance. Il calcule tir à tir l'évolution de la distribution du champ électrique dans les composants optiques et corrèle les surintensifications à un phénomène d'endommagement. Une très bonne correspondance a été observée entre le modèle numérique et la croissance de dommages modèles réalisés artificiellement.

(f) Comportement des optiques réfléchives sur chaîne laser.

En dernier lieu, un point important que nous avons voulu vérifier au cours de cette thèse est la cohérence des études menées en laboratoire et l'endommagement sur chaîne laser. Une campagne d'endommagement laser réalisée sur l'installation PETAL en 2015 nous a apporté une réponse positive. Tout d'abord, lors de l'optimisation de la tenue au flux d'un miroir, un gain d'un facteur 2 a été mesuré en laboratoire entre les échantillons représentatifs du miroir optimisé et de ceux de son prédécesseur. Ce même gain a également été observé sur chaîne laser sur le miroir échelle 1:1. Egalement, sur les miroirs endommagés de l'installation PETAL, les morphologies des dommages observées présentent de grandes similitudes avec celles observés sur des échantillons testés en laboratoire. On retrouve des morphologies de dommages dus à un endommagement intrinsèque, un endommagement induit par un défaut ou à la croissance, illustrant ainsi la cohérence et la pertinence des études réalisées en base arrière.



**Perspectives :**

Nous avons présenté dans cette thèse les prémisses d'études concernant la croissance des dommages. Notamment, l'aspect modélisation est à compléter, par exemple en développant un modèle 3D. On peut également penser que l'utilisation des modèles numériques permettra de prévoir le phénomène d'endommagement. Egalement, ils pourront être utilisés afin de concevoir des optiques réfléchives optimisées pour limiter ce phénomène de croissance. Les travaux débutés sur la conception d'optique diffractives sont également à poursuivre. Les études que nous avons menées sur la croissance portent à ce

jour uniquement sur les miroirs à haute réflectivités. La transposition aux réseaux de diffraction est à envisager.

D'un point de vue métrologie, l'utilisation d'un faisceau spatialement Top-Hat, présenté en annexe, ouvre de nouvelles perspectives pour la réalisation des tests d'endommagement, sans besoin de déconvoluer les résultats par la forme du faisceau. Les premiers résultats donnés par la voie Top-Hat développée sur le banc DERIC sont très encourageants. Dans la suite, on pourra notamment penser à l'utiliser afin de réaliser des tests de Rasterscan. Les zones balayées seraient illuminées de façon très homogène, permettant ainsi une révélation de l'ensemble des défauts précurseurs de l'endommagement. L'utilisation d'un faisceau Top-Hat pour l'étude de la croissance est très intéressante puisqu'elle nous permettrait de nous affranchir de la répartition gaussienne de l'énergie sur le dommage. Egalement, elle nous permettrait de réaliser les tests avec des faisceaux plus larges et par exemple d'étudier le phénomène de saturation observé lors des expériences de croissance.

Enfin, l'ensemble des expériences réalisées dans ce manuscrit a été faites à des durées d'impulsions sub-picosecondes. Nous avons vu que le laser Amplitude Systèmes permet d'atteindre des durées d'impulsion supérieures. Du plus, nous savons mesurer les profils temporels de ces impulsions. Une perspective à nos travaux serait d'étudier les phénomènes d'amorçage et de croissance pour des profils temporels différents.

## Annexe 1 : Mesure des profils temporels.

Dans cette annexe, nous présentons différentes mesures du profil temporel des impulsions DERIC réalisées avec le dispositif SPIRITED présenté dans le Chapitre 3. Ils sont obtenus pour différentes configurations du compresseur du laser Amplitude Systèmes. Pour rappel, le compresseur du laser Amplitude est composé d'un réseau de compression et d'un dièdre placé sur une platine de translation. Cette platine permet d'ajuster la longueur du compresseur afin de compenser le déphasage introduit par l'étireur. Sa position optimale est définie arbitrairement comme  $x = 0\mu m$ . Pour d'autres positions autour de cette valeur centrale, la compression est déréglée et la remise en phase des différentes composantes spectrales n'est pas totale : l'impulsion est élargie temporellement.

Sur la Figure A1 - 1, nous donnons différents profils temporels pour différentes positions de la platine. En réalisant un produit d'autocorrélation pour chaque profil temporel, il est possible d'obtenir une trace d'autocorrélation *calculée* grâce au dispositif SPIRITED. En parallèle, nous avons mesuré les traces d'autocorrélation correspondant à chaque configuration du compresseur avec un autocorrélateur intensimétrique récurrent APE PulseCheck disposant de la fonction *SlowTrig*, adaptée à la mesure de traces pour les lasers à faible récurrence (<1kHz). Dans la Figure A1 - 2, on rapporte les largeurs des traces d'autocorrélation mesurées avec l'autocorrélateur et les celles calculées à partir des mesures SPIRITED. Pour des configurations autour de la compression optimale ( $x \in [-3000\mu m ; 3000\mu m]$ ), la correspondance entre les mesures SPIRITED et les mesures avec l'autocorrélateur est très bonne : on trouve un écart inférieure à 10% entre les mesures SPIRITED et autocorrélateur. Pour des positions hors de cette gamme, on observe une plus grande différence entre les mesures. Cela est sans doute dû au fait que les motifs des franges acquis sur le SPIRITED se brouille lors que le compresseur est très déréglé : la détermination de la phase est plus difficile. Dans la Figure A1 - 3, on rapporte les interférogrammes acquis pour  $x = -4000\mu m$ ,  $x = 0\mu m$  et  $x = 4000\mu m$ .



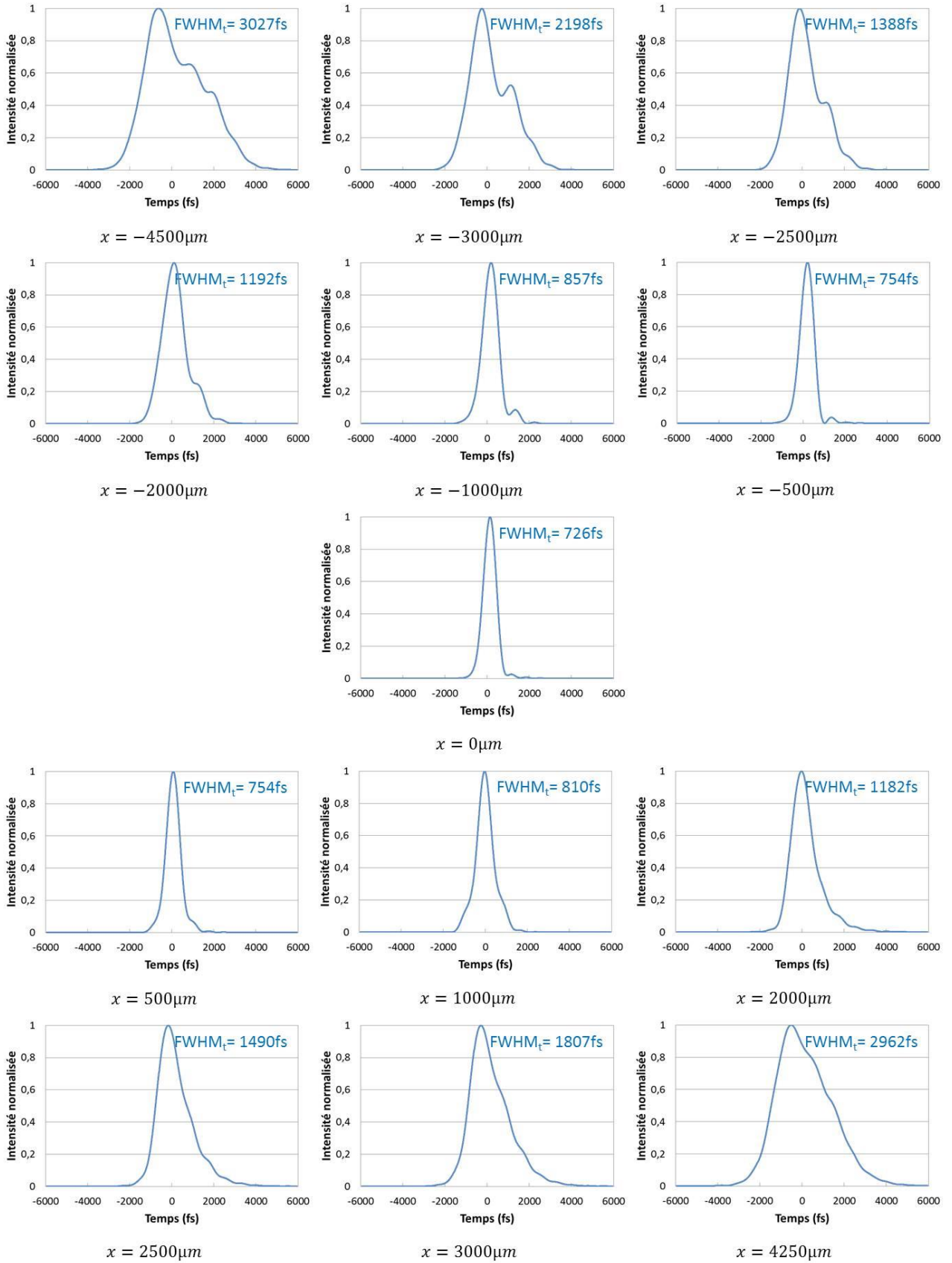


Figure A1 - 1 : Profils temporels mesurés avec le dispositif SPIRITED. Chaque courbe est donnée pour une position  $x$  de la platine de translation dans le compresseur du laser, i.e. pour une configuration du compresseur. La position  $x = 0 \mu\text{m}$  correspond à la compression optimale. Pour chaque courbe, on donne la largeur à mi-hauteur (FWHM<sub>t</sub>) du profil temporel.

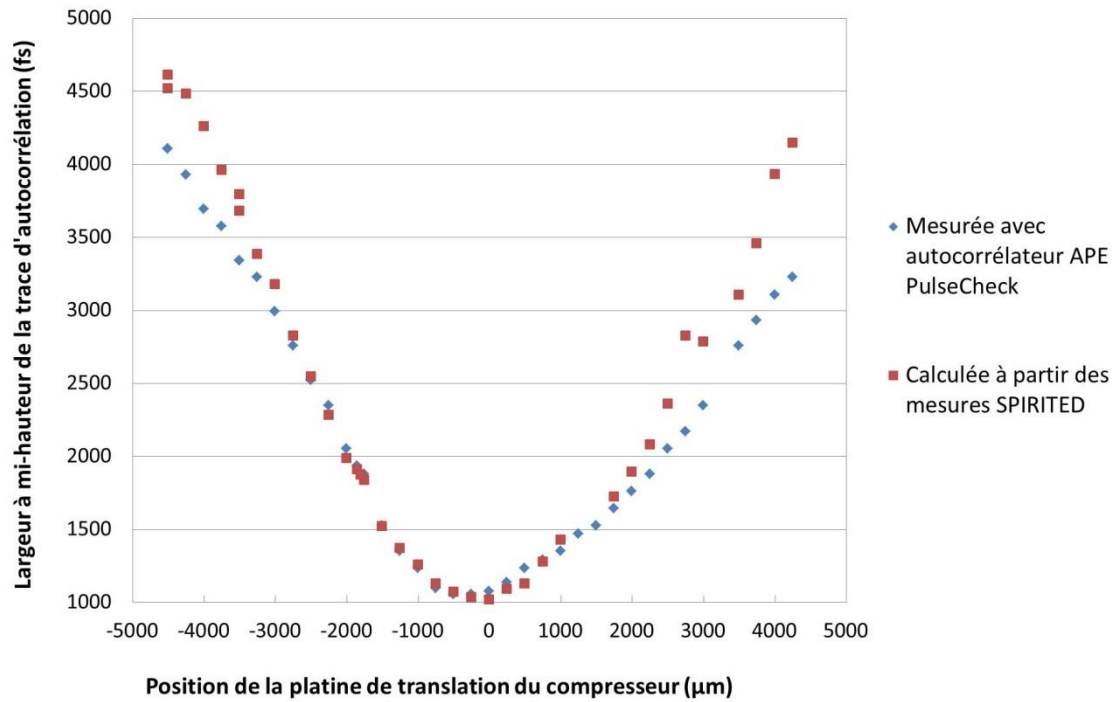


Figure A1 - 2 : Mesures de la largeur à mi-hauteur de la trace d'autocorrélation calculées à partir des mesures SPIRITED et évaluées grâce à un autocorrélateur récurrent APE.

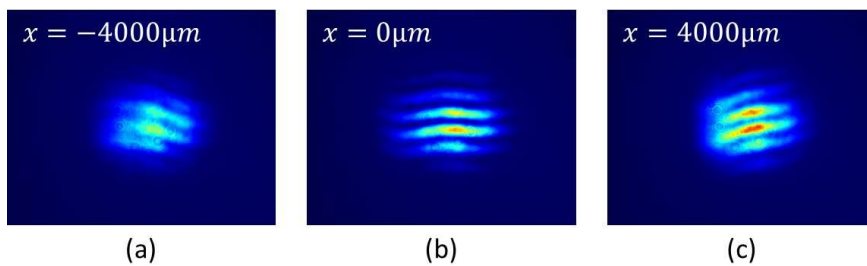


Figure A1 - 3 : Interférogrammes enregistrés avec le SPIRITED pour la détermination de la phase, pour différentes configuration du compresseur : (a)  $x = -4000\mu\text{m}$ , (b)  $x = 0\mu\text{m}$  et (c)  $x = 4000\mu\text{m}$ . Lorsque le compresseur est dérégulé, on observe un brouillage des franges.

## Annexe 2 : Mise en forme spatiale Top-Hat.

Dans cette annexe, nous présentons la démarche utilisée pour obtenir un faisceau au profil spatial gaussien. Le montage est réalisé sur le banc DERIC, en parallèle du montage gaussien présenté dans le Chapitre 3. Ces expériences ont été réalisées dans le cadre du stage fin d'étude de Sébastien Verge, que j'ai eu la chance d'encadrer durant ma troisième année de thèse. L'exploitation de ce faisceau pour les expériences de tenue au flux des optiques réfléchives n'est pas encore effective mais il sera utilisé lors des prochaines études menées sur le banc DERIC.

### I. Première partie : Premier montage et effets non-linéaires

#### a. Obtention du profil top-hat

##### 1. La lame de phase

Pour donner un profil top-hat à notre faisceau, on utilise une lame de silice sur laquelle un motif a été gravé. Le profil gravé est illustré dans la Figure A2 - 1. Le profil de gravure est calculé de façon à ce qu'un faisceau gaussien passant par la lame adopte un profil top-hat après passage à travers une lentille. Le principe de fonctionnement est donné dans la Figure A2 - 2.

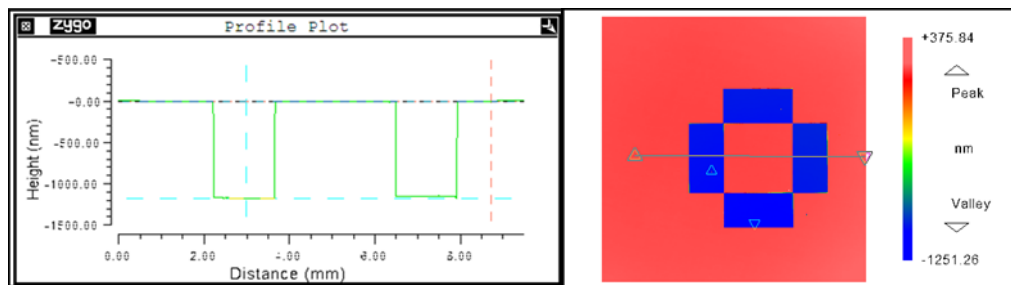


Figure A2 - 1 : Mesure au profilomètre optique du motif gravé sur la lame de silice servant à la mise en forme spatiale du faisceau.

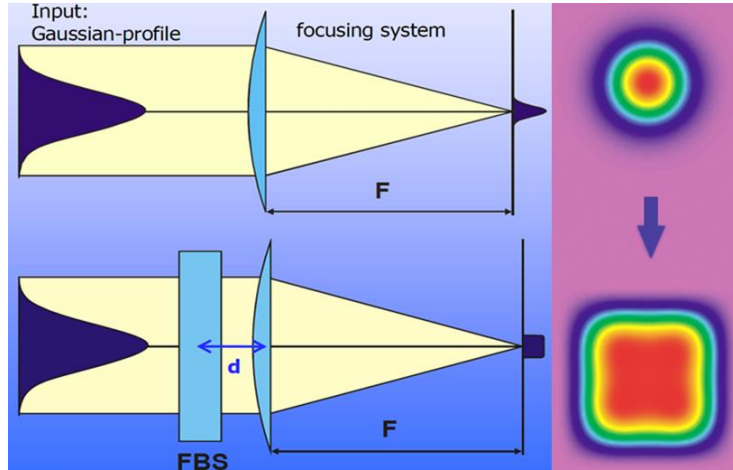


Figure A2 - 2 : Principe d'obtention du profil top-hat à partir d'un faisceau gaussien (données constructeur). En haut, le montage de départ avec le faisceau gaussien qui reste gaussien au plan focal image de la lentille. En bas, le placement de la lame de phase (FBS, focus beam shaper) avant la lentille de façon à avoir un profil top-hat dans le plan focal image de cette dernière (informations constructeurs).

En réalité, il existe deux positions axiales où le faisceau a un profil spatial carré : dans le plan focal image de la lentille, et dans un plan situé un peu avant. Cette position peut être estimée en réalisant des calculs de propagation de faisceau. Des abaques fournis par le constructeur permettent de positionner convenablement le plan Top-Hat en fonction de la taille du faisceau gaussien collimaté incident et de la focale de la lentille utilisée. Un exemple d'abaque est donné dans la Figure A2 - 3.

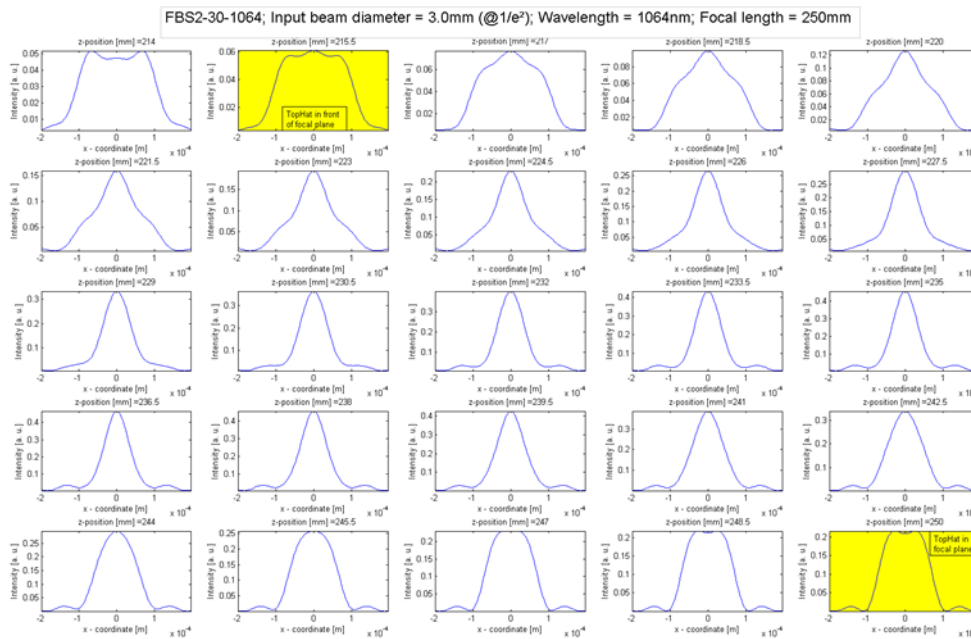


Figure A2 - 3 : Exemple d'évolution du profil du faisceau le long de l'axe optique (Données constructeur). Ici la lentille considérée à une focale de 250mm. Dans les montages qui suivent, la lentille utilisée a une focale de 200mm. La localisation des différents profils sera légèrement différente. Les cases jaunes correspondent aux deux profils Top-Hat possibles. Le dernier se situe dans le plan focal image de la lentille, le premier est celui qui va nous intéresser. Il est localisé en amont du plan focal de la lentille.

## 2. Montage de la voie top-hat

Le premier montage réalisé dans le cadre de ce stage est schématisé sur la Figure A2 - 4.

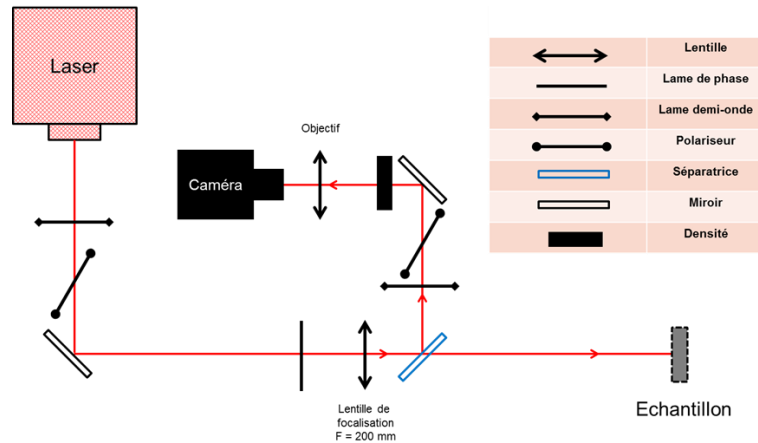


Figure A2 - 4 : Premier montage pour la voie top-hat envisagé.

Le laser délivre une énergie constante d'environ 2,5 mJ, et fonctionne en régime impulsif à 10 Hz. L'énergie arrivant sur l'échantillon est modulée par un couple lame « demi-onde/polariseur » positionné à la sortie du laser. Le faisceau arrive ensuite sur la lame de phase puis sur une lentille de focale 200 mm. Une lame séparatrice permet d'envoyer le faisceau vers deux directions différentes : la voie où se trouve l'échantillon, et la voie où se trouve la caméra, échantillon et caméra devant être situés à égale distance, du point de vue du chemin optique, de la séparatrice. Une autre couple « demi-onde/polariseur » est placé devant la caméra afin de régler l'énergie arrivant sur celle-ci.

### 3. Le profil top-hat

La caméra permet de connaître en direct l'apparence du profil top-hat. Une acquisition est présentée Figure A2 - 5. La dimension du carré est d'environ  $200\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ .

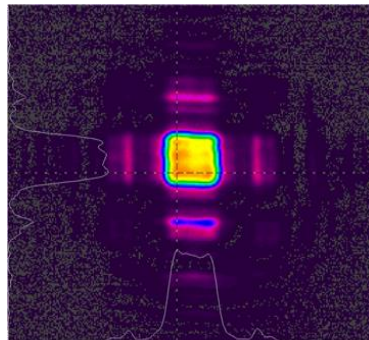


Figure A2 - 5 : Un exemple de profil top-hat.

La première observation que l'on peut faire, c'est que le profil du faisceau n'est pas constitué d'un simple top-hat. Il présente en effet des pieds situés de part et d'autre du carré central. Cela présente un inconvénient quant à l'acquisition de la fluence du faisceau. En effet, l'idée de départ était d'acquérir l'énergie contenue dans le faisceau pour ensuite calculer la fluence induite, étant connue la surface du faisceau. Or, la présence des pieds fausse ce calcul, puisque ces derniers contiennent de l'énergie, et ce en proportion relativement importante. Une rapide analyse a montré qu'ils contenaient environ 30 % de l'énergie du faisceau.

Par ailleurs, il peut être intéressant de voir l'évolution du profil du faisceau le long de l'axe optique. On pose arbitrairement que le plan focal image de la lentille est placé à une position  $z=0\text{mm}$ . On déplace donc la caméra dans la direction de la source laser pour déterminer quatre principaux profils de faisceau.

En premier lieu, donc, on observe le « petit » profil top-hat, tel que montré sur la Figure A2 - 6. On remarque que celui-ci n'est guère satisfaisant du fait de son uniformité qui laisse à désirer, ayant plus l'apparence d'un anneau que celle d'un carré.

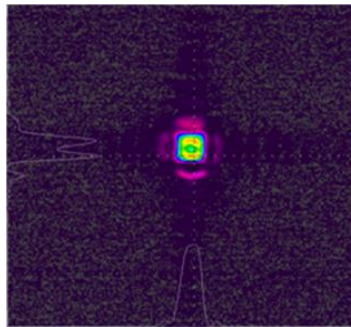


Figure A2 - 6 : Profil « petit top-hat ».

En avançant la caméra de 20 mm en direction de la lentille, on observe un profil de base carré mais avec une forte excroissance en son centre, illustré sur la Figure A2 - 7. Ce profil, que nous qualifierons abusivement de gaussien, trouve son intérêt dans le fait que son marquage sur échantillon va être très localisé, ce qui va le rendre reconnaissable et donc utile pour établir la correspondance entre la voie échantillon et la voie caméra.

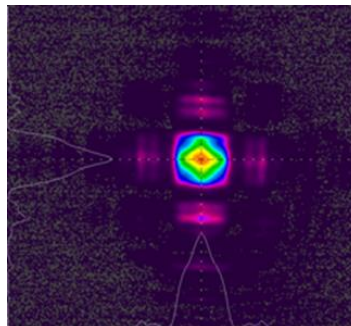


Figure A2 - 7 : Profil « gaussien ».

À 2 mm de là, on trouve le profil qui nous intéresse, à savoir un top-hat de plus grande taille que le précédent, de côté 200  $\mu\text{m}$  environ, donné dans la Figure A2 - 8.

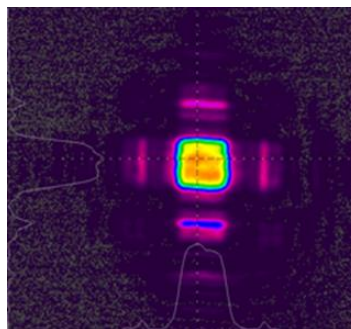


Figure A2 - 8 : Profil « grand top-hat ».

Enfin, en déplaçant la caméra de 3 mm, on trouve un profil constitué de quatre maxima locaux, placés à chaque coin du carré. Il est illustré dans la Figure A2 - 9. Par la suite, ce profil sera qualifié de « château fort ».

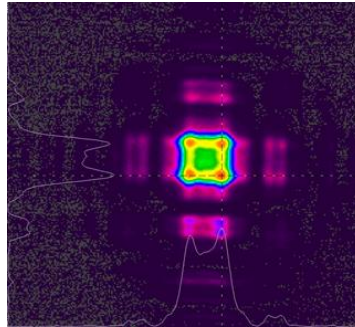


Figure A2 - 9 : Profil « Château fort ».

## b. Impact des effets non-linéaires

### 1. Observation de la défocalisation

Rapidement, une anomalie est observée sur la voie top-hat. En effet, on constate sur la Figure A2 - 10 que la position du profil carré se déplace lorsque l'énergie est modifiée. Etant donné que son emplacement est directement lié à la focale de la lentille, on en déduit que ce phénomène de défocalisation est dû à un effet Kerr. Cela est d'ailleurs confirmé par le fait que cette défocalisation n'est visible qu'aux plus hautes intensités.

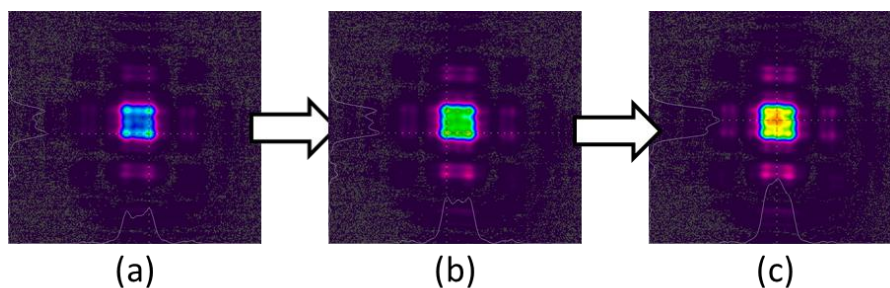


Figure A2 - 10 : Evolution du profil du faisceau à une même position sur l'axe optique pour trois énergies différentes : (a) 1 mJ, (b) 1,6 mJ et (c) 2 mJ.

Cette défocalisation est très problématique. En effet, le top-hat est le profil qui nous intéresse ici. Si sa position est modifiée, cela signifie qu'il faudra déplacer systématiquement l'échantillon, ce qui n'est absolument pas pratique dans le cadre des tests envisagés. Il faut d'ailleurs vérifier si la position du top-hat se déplace de la même façon sur la voie caméra et sur la voie échantillon. Si oui, cela signifiera que les effets non-linéaires sont dus aux optiques situées avant la séparatrice et qu'au moins, ce qu'on voit sur la caméra correspond à ce que « voit » l'échantillon. Dans le cas contraire cela signifiera que les effets non-linéaires observés ne sont dus qu'aux optiques comprises entre la séparatrice et la caméra, et cela sera bien plus ennuyeux quant à la correspondance échantillon-caméra.

## 2. Quantification de la défocalisation sur la caméra

Une première étape dans la résolution de ce problème est de quantifier ce phénomène sur la voie caméra. Pour cela on va calculer le contraste du profil spatial du faisceau, qui sera le critère utilisé. L'idée est d'observer l'évolution de ce contraste le long de l'axe optique, moyennée sur cent acquisitions par position, et ce pour sept énergies différentes. Le contraste est en principe minimal lorsque l'on est en présence du profil top-hat.

Les résultats de cette analyse, donnés dans la Figure A2 - 11, montrent que pour une fluence passant de 0,5 J/cm<sup>2</sup> à 4 J/cm<sup>2</sup>, on a une défocalisation de 7 mm, ce qui est très important dans le cadre de nos expériences. Par ailleurs, on observe que les graphes représentant l'évolution du contraste deviennent de moins en moins convexes au fur et à mesure que l'énergie augmente. Cela provient du fait que plus l'énergie est élevée, moins les frontières séparant les différents profils château-fort, carré et gaussien sont nettes. En effet, on passe du profil château au profil gaussien sans passer par un profil carré parfaitement déterminé. Pour illustration, une acquisition du meilleur profil top-hat obtenu à haute énergie est montrée sur la Figure A2 - 12. On y voit très clairement une forme qui rappelle le château-fort ; et de celle-ci émergera la pointe du profil gaussien sans qu'on ne soit passé clairement sur un carré uniforme.

Pour une meilleure lisibilité du graphique, les barres d'erreurs n'ont pas été ajoutées sur ce rapport. Il convient toutefois de préciser qu'en raison de l'instabilité du faisceau, dont les effets s'aggravent lorsqu'on augmente l'énergie et donc les variations d'amplitudes, les incertitudes deviennent de plus en plus grandes au fur et à mesure que l'énergie augmente. C'est probablement ce qui justifie qu'à la plus haute énergie exploitée pour ce graphe, le contraste se mette brusquement à baisser sans que rien ne permette a priori de l'expliquer.

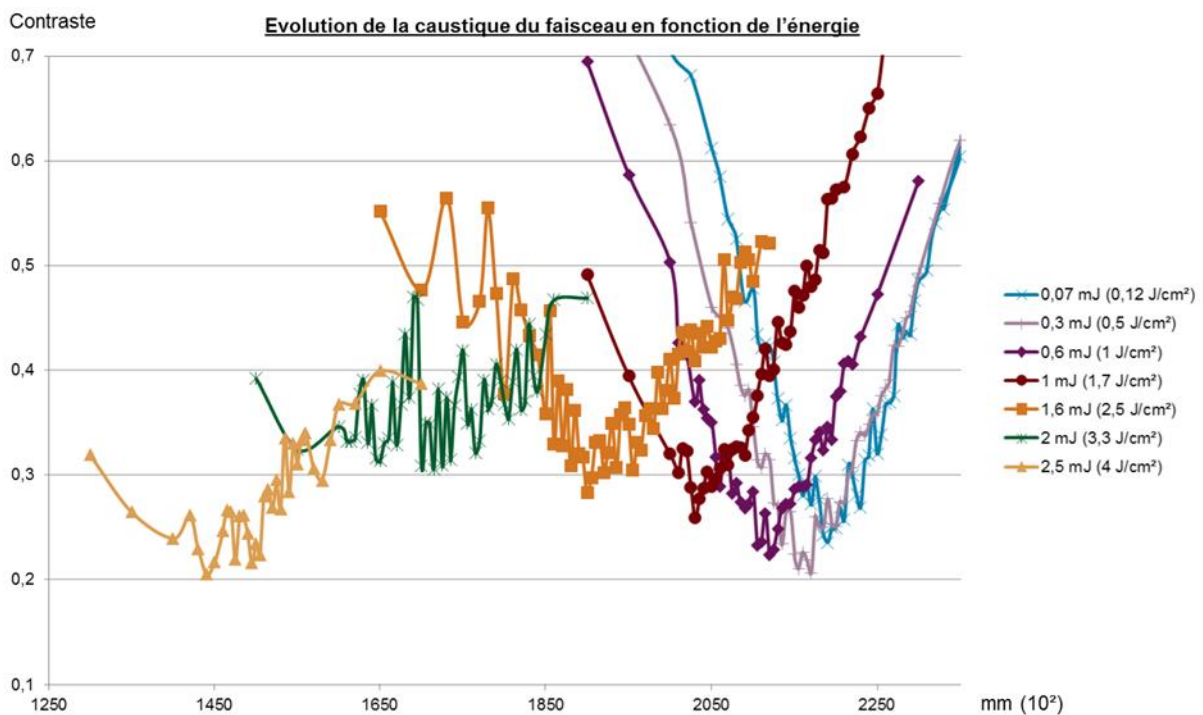


Figure A2 - 11 : Evolution du contraste du profil du faisceau en fonction de l'énergie et de la position sur l'axe optique. Le zéro est placé arbitrairement. L'abscisse augmente lorsqu'on s'éloigne de la source laser.



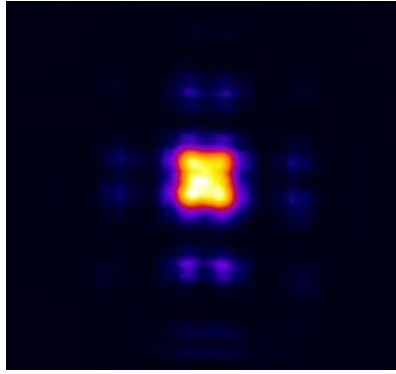


Figure A2 - 12 : Meilleur profil top-hat à haute énergie.

### c. Correspondance échantillon-caméra

Une fois que l'évolution du profil spatial sur la voie caméra est connue, il faut la comparer avec celle observée sur la voie où se trouve l'échantillon. Le moyen le plus fiable pour cela reste encore d'endommager le dit-échantillon et de comparer avec le profil du faisceau.

#### 1. Intérêt du silicium

N'étant pas envisageable de faire les tests de correspondance avec des miroirs, c'est vers un autre matériau que l'on se tourne. Le silicium est un matériau intéressant car, étant un semi-conducteur, il a un comportement connu une fois soumis à une impulsion laser femtoseconde [114].

En effet, sous l'influence d'une impulsion laser, on observe différents phénomènes dépendant de la fluence locale incluant la fonte, l'ébullition et l'ablation du matériau. On observe ensuite une resolidification du matériau fondu à travers deux étapes : l'amorphisation et la recristallisation. La différence des deux processus tient juste à la quantité d'énergie déposée sur le matériau (et donc à la température du dit matériau) et à la vitesse de refroidissement. Aux températures basses, le matériau n'a pas assez de temps pour recristalliser, et passe de l'état liquide à l'état amorphe, tandis qu'aux températures hautes, le processus de refroidissement est suffisamment lent pour permettre une recristallisation. Ceci est représenté sur la Figure A2 - 13.

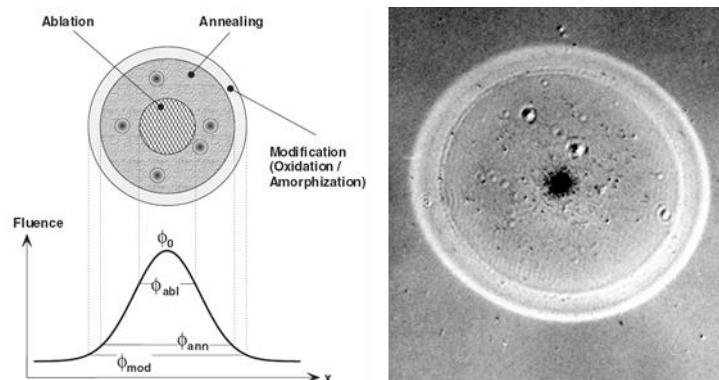


Figure A2 - 13 : Effet d'une impulsion femtoseconde gaussienne sur le silicium. On distingue bien les trois zones d'ablation, de recristallisation et d'amorphisation [114].

## 2. Comparaison avec la caméra et conclusion

Les résultats obtenus ainsi sont satisfaisants. D'une part l'échantillon de silicium marque tellement bien que l'on peut voir avec précision l'évolution du profil du faisceau en fonction de l'énergie et de la position sur l'axe optique, comme le montrent les acquisitions de la Figure A2 - 14.

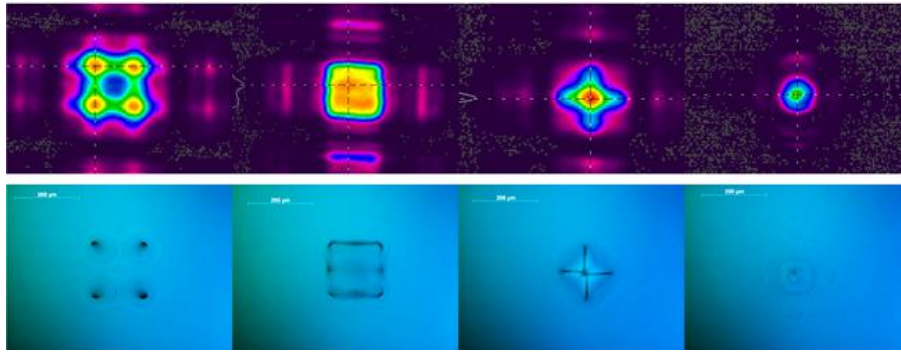


Figure A2 - 14 : Correspondance entre le dommage sur le silicium et le profil spatial de l'impulsion.

D'autre part ces tests ont montré que les voies échantillon et caméra sont synchronisées. Cela signifie que les effets non linéaires sont dus aux optiques situées avant la séparatrice, c'est-à-dire le couple lame de phase/lentille. C'est donc sur lui qu'il va falloir jouer pour diminuer les effets non-linéaires observés.

## II. Deuxième partie : Nouveau montage et premiers tests

### a. Le nouveau montage

#### 1. Quelques tentatives de résolution

Une première idée fut d'utiliser non pas le « grand top-hat » mais le « petit top-hat », celui qui se trouve sur le plan focal image de la lentille. En effet, la lame de phase ayant été conçue pour ce profil, on était en droit de supposer que les effets auraient pu être moins forts ici. Cependant, le profil de ce top-hat n'est absolument pas satisfaisant. Cette solution n'a donc pas été retenue.

La deuxième idée a été de remplacer la lentille de focalisation par une autre, plus fine. Cependant, les effets non-linéaires diminuent très peu. Ce qui implique qu'il va falloir jouer plutôt sur la lame de phase.

La troisième idée consistait donc à s'arranger pour que la lame de phase reçoive toujours la même énergie. Elle a donc été placée directement à la sortie du laser, sans pour autant déplacer la lentille, qui elle doit rester à une distance focale de l'échantillon. Le laser divergeant beaucoup après la lame, cela donne un profil spatial inexploitable dans le cadre de nos tests. Cette solution n'a pas été retenue mais l'idée générale a été gardée pour le nouveau montage.

#### 2. La nouvelle configuration

La solution a donc été de s'arranger pour que l'énergie arrivant sur la lame de phase soit constante tout en laissant à l'expérimentateur la possibilité de modifier l'énergie arrivant sur l'échantillon. Pour cela, un nouveau couple demi-onde/polariseur a été placé sur le montage, et la lame de phase a été placée entre les deux, comme montré sur le schéma Figure A2 - 15. De fait, le premier couple situé en sortie du laser n'est quasiment jamais modifié, tout le jeu de la modulation de l'énergie étant fait sur le deuxième couple.

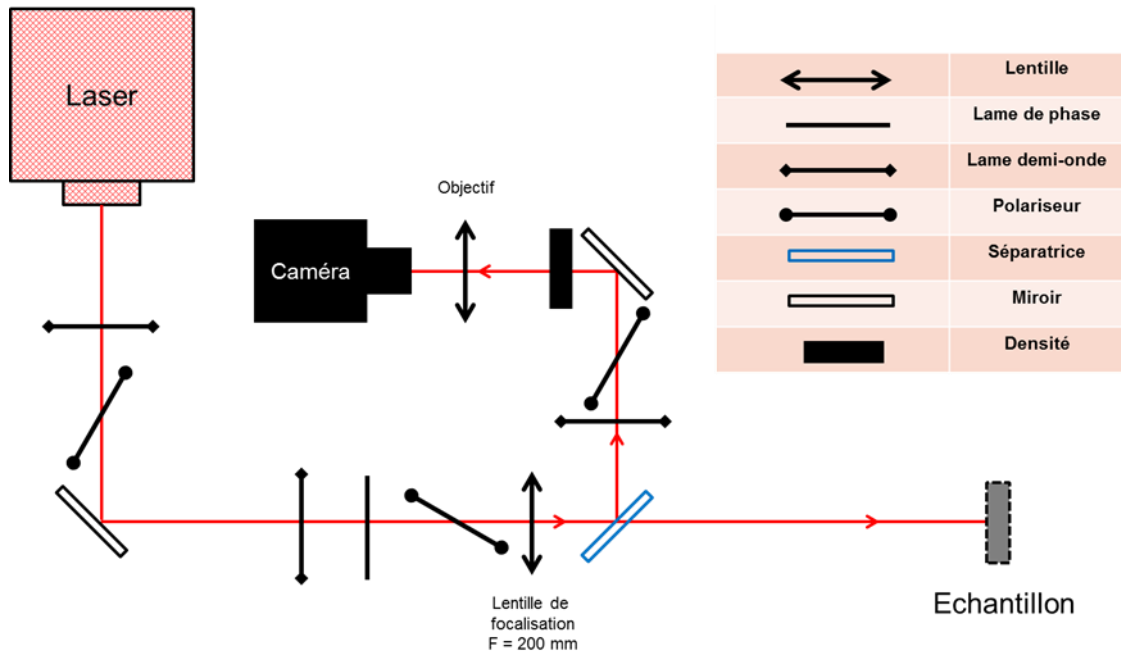


Figure A2 - 15 : Nouveau montage de la voie top-hat DERIC. Pour ne pas surcharger le schéma, les pyromètres n'ont pas été représentés.

Avec cette nouvelle configuration, on observe que les effets non-linéaires diminuent fortement, ce qui autorise les modifications d'énergie sans rendre le déplacement d'échantillon obligatoire.

### b. Programmation en amont des premiers tests

Les platines de mouvement sur lesquelles est placé l'échantillon peuvent être contrôlées via un programme LabVIEW. Il a été développé afin de réaliser des expériences rasterscan en automatisant le balayage d'une zone de l'échantillon. Des exemples de balayages réalisés sur du silicium (afin d'observer la motif du faisceau) pour 2 angles d'incidence différents sont donnés dans la Figure A2 - 16.

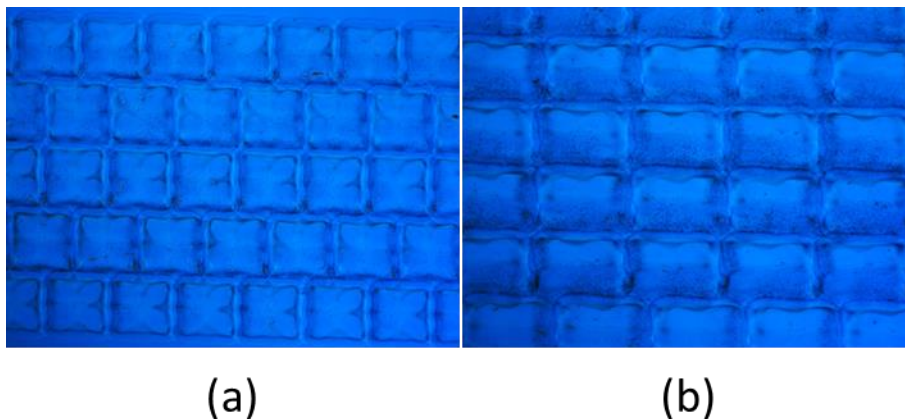


Figure A2 - 16 : Premiers tests de rasterscan effectués sur du silicium, pour des incidences (a) de  $0^\circ$  et (b) de  $45^\circ$ .

### c. Premiers tests sur miroir

## 1. Tirs monoshots

Des premiers tirs monoshots, basés sur la procédure présentée le Chapitre 4, ont été faits sur un miroir en incidence normale. L'objectif est de déterminer la fluence seuil à partir de laquelle l'optique est endommagée. La morphologie du dommage généré par le faisceau laser top-hat sur le miroir est illustrée dans Figure A2 - 17.

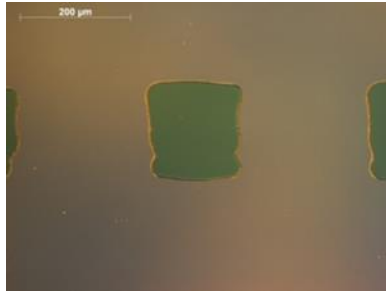


Figure A2 - 17 : Dommage provoqué par le faisceau top-hat sur un miroir.

L'idée est alors de calculer la fluence moyenne sur le faisceau le long des bords du dommage en superposant les contours du dommage avec les acquisitions de la caméra. On trouve ainsi, pour 27 acquisitions, une fluence moyenne de  $0,71 \text{ J/cm}^2$ . La comparaison avec les valeurs obtenues avec un profil spatial gaussien reste à faire.

## Annexe 3 : Microscopie résolue en temps.

Un dispositif pompe-sonde a mis en place sur le banc d'endommagement de l'Institut Fresnel. Ce dispositif permet notamment de réaliser de la microscopie d'intensité résolue dans le temps. En effet, lors du processus d'endommagement, il est intéressant d'étudier le phénomène d'endommagement dans un régime transitoire. Des premières études ont été réalisées lors de la thèse de Dam-Bé Douti [109] sur le banc de l'Institut Fresnel redonné dans la Figure A3 - 1. Une ligne à retard permet de générer un délai entre la pompe infrarouge et la sonde convertie dans le vert. D. Douti observe la variation de la transmission d'une monocouche de  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  à différents instant après l'irradiation laser : elle est due à l'évolution de la densité d'électrons dans la bande de conduction qui cause une chute de la transmission après l'irradiation.

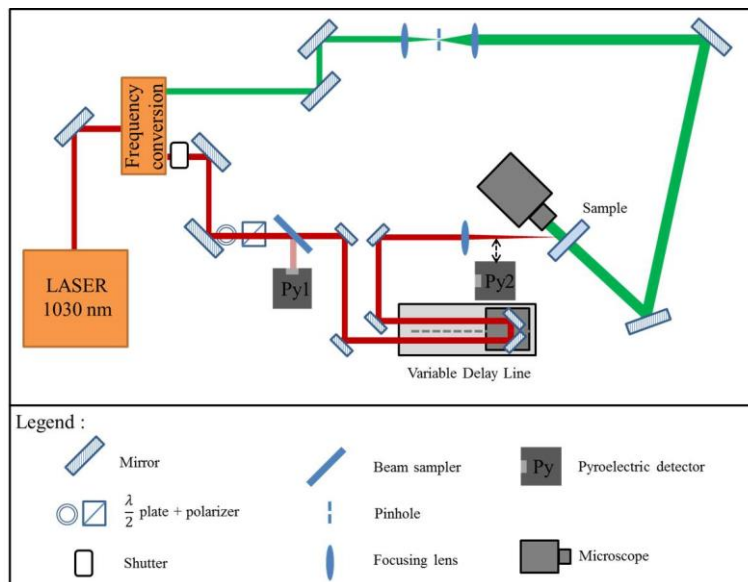


Figure A3 - 1 : Synoptique du banc d'endommagement de l'Institut Fresnel permettant de réaliser des expériences pompe-sonde.

Lors de cette thèse, des expériences ont été réalisées afin d'observer l'évolution de la transmission d'un miroir lors du processus de formation d'un dommage laser, grâce au dispositif pompe-sonde. Le miroir testé est un miroir quart d'onde, dont le seuil d'endommagement 1-on-1 est mesuré en polarisation P à  $45^\circ$ , 1030nm et 980fs à  $4,00 \pm 0,05 \text{ J/cm}^2$ . Il s'agit du miroir décrit dans le Chapitre 5, paragraphe 5.A.2.

Le processus d'endommagement a été observé pour plusieurs positions de la ligne à retard. Pour chaque position, un site est irradié à une fluence de  $5,2 \text{ J/cm}^2$ . Tous les dommages résultants sont similaires et un exemple de dommage est illustré dans la Figure A3 - 2.

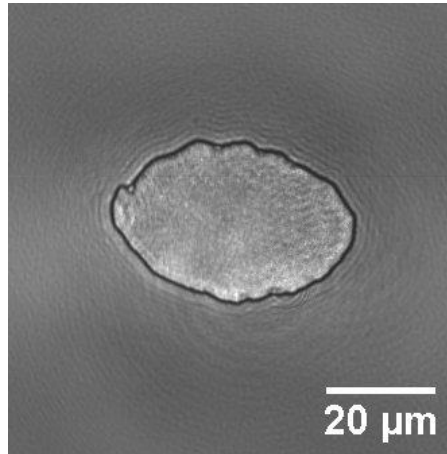


Figure A3 - 2 : Observation au microscope optique d'un dommage obtenu pour une fluence de  $5,2\text{J}/\text{cm}^2$ .

L'évolution de la transmission du miroir à  $515\text{nm}$  (longueur d'onde de la sonde) à différents instants après l'irradiation laser est donnée dans la Figure A3 - 3. L'instant  $t=0\text{fs}$  a été posé arbitrairement. Il s'agit de l'instant à partir duquel la transmission du composant commence à changer. Les temps indiqués pour chaque acquisition ont été calculés à partir de la position de la ligne à retard, en prenant en référence cet instant initial  $t=0\text{fs}$ .

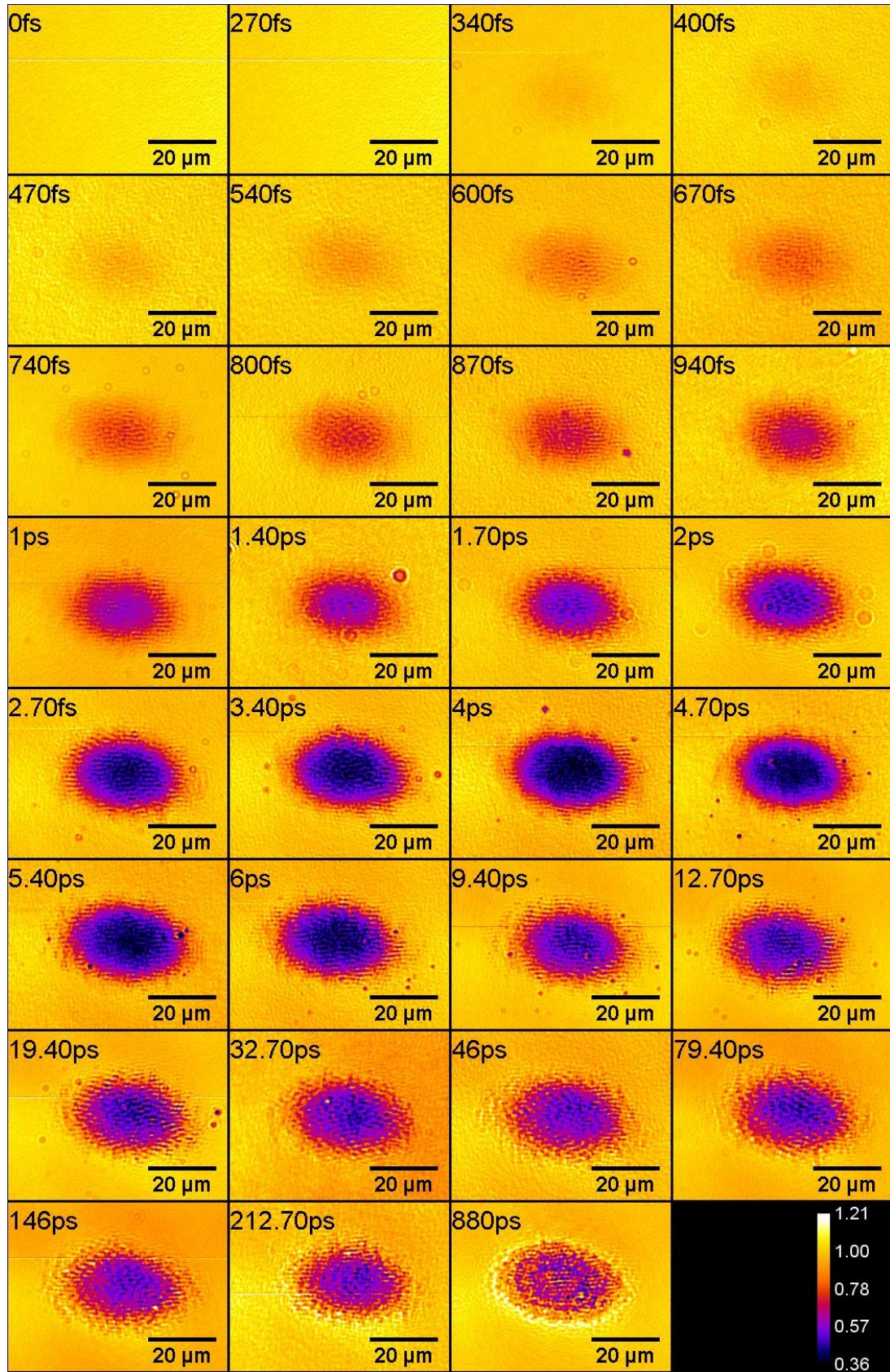


Figure A3 - 3 : Séquence d'image de transmission d'un miroir diélectrique acquise par microscopie d'intensité à différentes position de la ligne à retard. Le délai par rapport à l'arrivée de l'impulsion est indiqué en haut à gauche de chaque acquisition.

En définissant une zone d'intérêt au centre des sites testés et en mesurant la valeur de la transmission moyenne, minimale et maximale, on obtient le graphe donné dans la Figure A3 - 4.

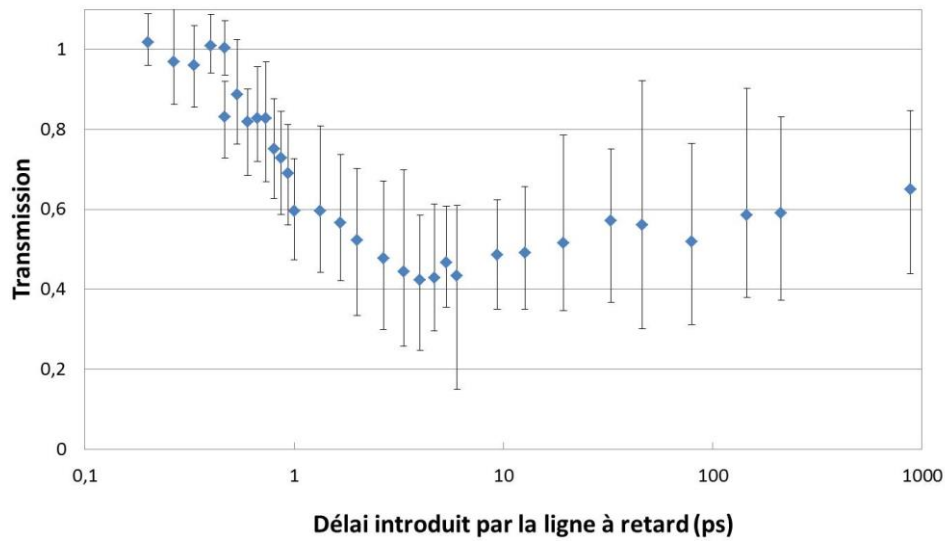
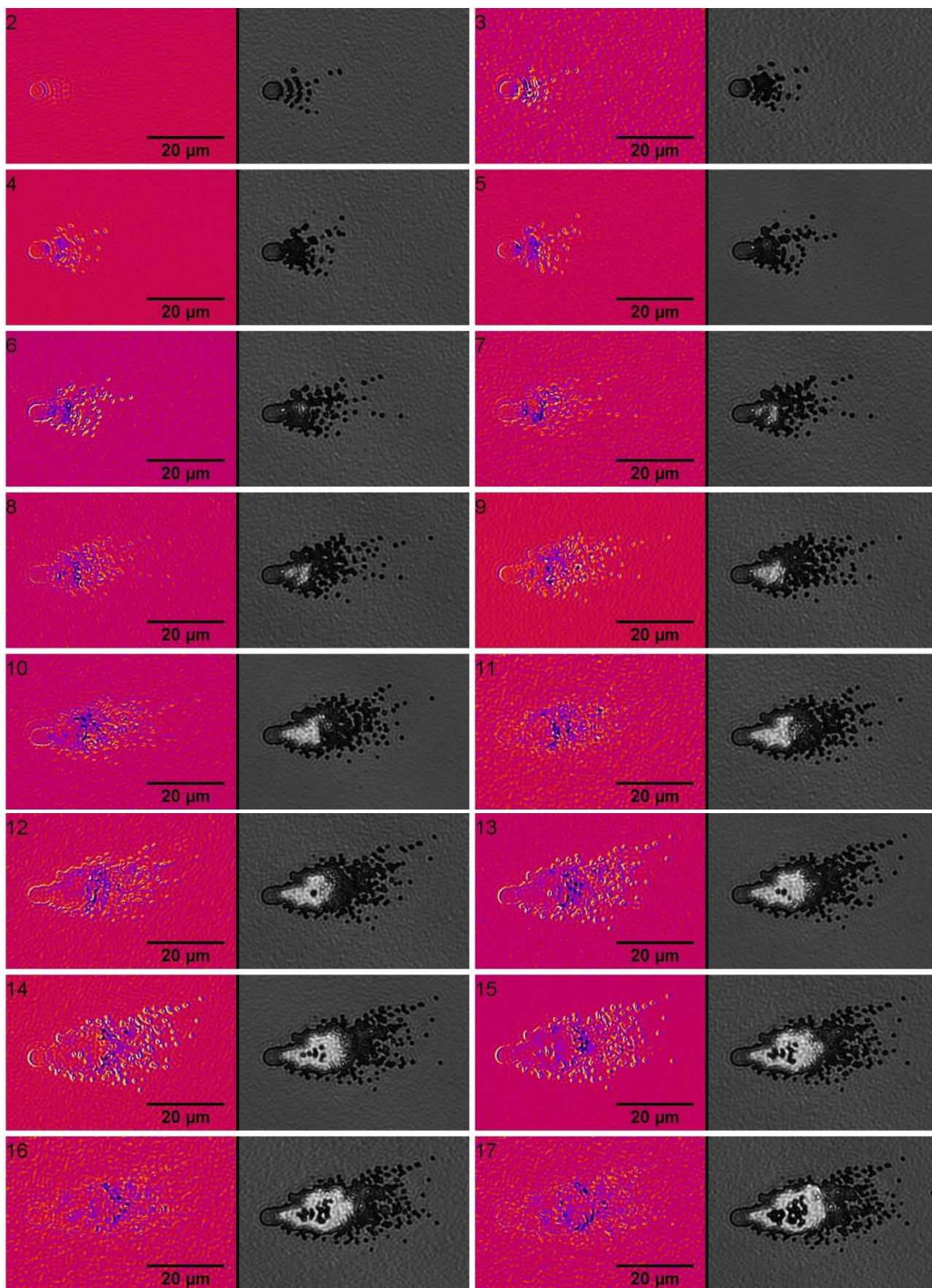


Figure A3 - 4 : Evolution de la transmission du miroir au cours du temps. L'irradiation est réalisée à une fluence de  $5,21/\text{cm}^2$ . On représente les valeurs moyennes des transmissions mesurées à partir des acquisitions de la Figure A3 - 3.

Des expériences similaires ont été menées lors des séquences de croissance. Dans ce cas, la position de la ligne à retard a été fixée. Nous l'avons choisie pour être la position pour laquelle la chute de transmission est maximale. Cela nous permet de voir dans le dommage le lieu où la densité électronique est maximale tir à  $t_i$ , i.e. le lieu où l'absorption de l'énergie est maximale. La mesure de la transmission durant une expérience de croissance est rapportée dans la Figure A3 - 5. Pour chaque tir (le numéro du tir est donné en haut à gauche des images), on donne une image pendant le tir, i.e. pendant le processus d'excitation électronique (images colorées) et l'image du site après le tir, une fois que le dommage est formé.

On remarque notamment que la zone où la transmission diminue correspond à la zone endommagée : la forte évolution de la densité d'électrons au niveau de la zone endommagée nous conforte dans l'hypothèse d'une croissance liée à un phénomène de renforcement du champ électrique dans la matière.





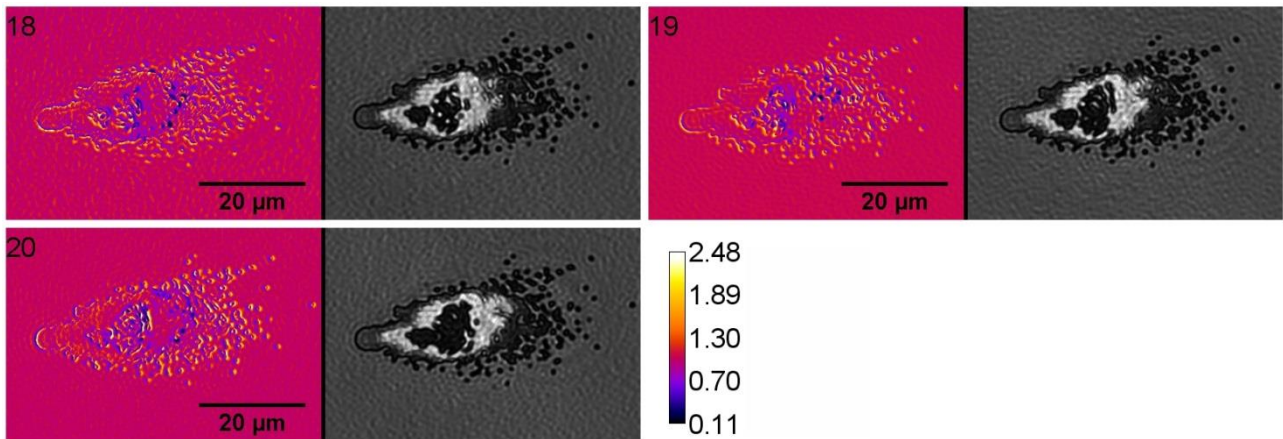


Figure A3 - 5 : Séquence de croissance observée avec le système de microscopie résolue dans le temps. 20 tirs de croissance ont été réalisés sur un même dommage. Pour chaque tir, on représente la transmission du site pendant l'excitation électronique (images en couleur) et l'observation du quelques secondes après : le dommage est formé (image en nuance de gris). La croissance a été réalisée à une fluence de  $0.96\text{J}/\text{cm}^2$  en polarisation S, à 1030nm et 550fs (voir Chapitre 5).

# Bibliographie

- [1] G. H. Miller, E. I. Moses et C. R. Wuest, "The National Ignition Facility", *Optical Engineering* 43, 2841-2853, 2004.
- [2] P. Vivini et M. Nicolaizeau, "The LMJ: overview of recent advancements and very first experiments", *Proc. SPIE* 9345, 934503, 2015.
- [3] C. Danson, D. Hillier, N. Hopps et D. Neely, "Petawatt class lasers worldwide", *High Power Laser Science and Engineering* 3, e3, 2016.
- [4] N. Blanchot, E. Bar, G. Behar, C. Bellet, D. Bigourd, F. Boubault, C. Chappuis, H. Coc, C. Damiens-Dupont, O. Flour, O. Hartmann, L. Hilsz, E. Hugonnot, E. Lavastre, J. Luce, E. Mazataud, J. Neauport, S. Noailles, B. Remy, F. Sautarel, M. Sautet et C. Rouyer, "Experimental demonstration of a synthetic aperture compression scheme for multi-petawatt high-energy lasers", *Optics Express* 18, 10088-10097, 2010.
- [5] E. B. Treacy, "Optical Pulse Compression with Diffraction Gratings", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE-5, 454-458, 1969.
- [6] D. Strickland et G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses", *Optics Communications*, 55, 447-449, 1985.
- [7] M. Born et E. Wolf, "Principles of Optics", Pergamon Press, 1999.
- [8] Y.-R. Shen, "Principles of Nonlinear Optics", 1984.
- [9] R. W. Boyd, S. G. Lukishova et Y. R. Shen, *Self-focusing: Past and Present*, Springer, 2009.
- [10] J. Patterson et B. Bailey, "Solid-State Physics", Springer, 2010.
- [11] C. Kittel, "Introduction to Solid State Physics", 2005.
- [12] L. Gallais, "TUTORIAL - Defect-induced damage in nano and femtosecond regime", *SPIE Laser Damage Symposium*, 2015.
- [13] L. V. Keldysh, "Ionization in the field of a strong electromagnetic wave", *Soviet Physics JETP* 20, 1965.

- 
- [14] C. Mézel, A. Bourgeade et L. Hallo, "Surface structuring by ultrashort laser pulses: A review of photoionization models", *Physics of Plasmas* 17, 113504, 2010.
- [15] B. Rethfeld, "Unified Model for Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics", *Physical Review Letters* 92, 18, 2004.
- [16] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore et M. D. Perry, "Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics", *Physical Review B* 53, 1996.
- [17] G. Petite, "Mécanismes fondamentaux de l'ablation laser femtoseconde en "flux intermédiaire"", dans *Lasers et Technologies Femtosecondes*, édité par M. Sentis et O. Utéza, Université de Saint Etienne, 2005.
- [18] P. Martin, S. Guizard, P. Daguzan, G. Petite, P. D'Oliveira, P. Meynadier et M. Perdix, "Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals", *Physical Review B* 55, 5799-5810, 1997.
- [19] A. P. Joglekar, H. Liu, G. J. Spooner, E. Meyhofer, G. Mourou et A. J. Hunt, "A study of the deterministic character of optical damage by femtosecond laser pulses and applications to nanomachining", *Applied Physics B* 77, 25-30, 2003.
- [20] R. Stoian, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld et E. E. B. Campbell, "Coulomb explosion in ultrashort pulsed laser ablation of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>", *Physical Review B* 62, 13167-13173, 2000.
- [21] B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, D. Von Der Linde et S. I. Anisimov, "Timescales in the response of materials to femtosecond laser excitation", *Applied Physics A* 79, 767-769, 2004.
- [22] M. Mero, "Femtosecond Laser Induced Breakdown in Dielectric Films", Thèse de l'Université de New Mexico, 2005.
- [23] L. Gallais et M. Commandré, "Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030nm, 500fs", *Applied Optics* 53, A186-A196, 2014.
- [24] D. Ashkenasi, M. Lorenz, R. Stoian et A. Rosenfeld, "Surface damage threshold and structuring of dielectrics using femtosecond laser pulses: the role of incubation", *Applied Surface Science* 150, 101-106, 1999.
- [25] A. Rosenfeld, M. Lorenz, R. Stoian et D. Ashkenasi, "Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation", *Applied Physics A* 69, S373-S376, 1999.
- [26] M. Mero, B. Clapp, J. C. Jasapara, W. Rudolph, D. Ristau, K. Starke, J. Krüger, S. Martin et W. Kautek, "On the damage behavior of dielectric films when illuminated with multiple femtosecond laser pulses", *Optical Engineering* 44(5), 2005.
- [27] L. A. Emmert, M. Mero et W. Rudolph, "Modeling the effect of native and laser-induced states on the dielectric breakdown of wide band gap optical materials by multiple subpicosecond laser pulses", *Journal of Applied Physics* 108, 043523, 2010.

- [28] B. J. Nagy, L. Gallais, L. Vámos, D. Oszetzky, P. Rácz et P. Dombi, "Direct comparison of kilohertz- and megahertz-repetition-rate femtosecond damage threshold", *Optics Letters* 40, 2015.
- [29] S. M. Eaton, H. Zhang et P. R. Herman, "Heat accumulation effects in femtosecond laser written waveguides with variable repetition rate", *Optics Express* 13, 4708-4716, 2005.
- [30] ISO Standard Nos. 21254-1–21254-4, 2011.
- [31] O. Morice, "Miro: Complete modeling and software for pulse amplification and propagation in high-power laser systems", *Optical Engineering* 42, 1530, 2003.
- [32] M. Chambonneau, "Etudes multi-longueurs d'onde de l'endommagement laser à la surface de composants optiques en silice en régime nanoseconde", Thèse soutenue en novembre 2014.
- [33] M. A. Norton, E. E. Donohue, M. D. Feit, R. P. Hackel, W. G. Hollingsworth, A. M. Rubenchik et M. L. Spaeth, "Growth of Laser Damage on the Input Surface of SiO<sub>2</sub> at 351 nm", *Proc SPIE* 6403, 64030L-1, 2006.
- [34] M. A. Norton, L. W. Hrubesh, Z. Wu, E. E. Donohue, M. D. Feit, M. R. Kozlowski, D. Milam, K. P. Neeb, W. A. Molander, A. M. Rubenchik, W. D. Sell et P. Wegner, "Growth of Laser Initiated Damage in Fused Silica at 351 nm", *Proc SPIE* 4347, 468, 2001.
- [35] R. Courchinoux, G. Razé, C. Sudre, M. Josse, A. Boscheron, C. Lepage, E. Mazataud, E. Bordenave, L. Lamaignère, M. Loiseau, T. Donval et H. Bercegol, "Laser-induced damage growth with small and large beams. Comparison between laboratory experiments and large-scale laser data", *Proc SPIE* 5273, 2003.
- [36] R. A. Negres, G. M. Abdulla, D. A. Cross, Z. M. Liao et C. W. Carr, "Probability of growth of small damage sites on the exit surface of fused silica optics", *Optics Express* 20, 13030-13039, 2012.
- [37] F. Y. Génin, C. J. Stolz et M. R. Kozlowski, "Growth of laser-induced damage during repetitive illumination of HfO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> multilayer mirror and polarizer coatings", *Proc. SPIE* 2966, 273, 1997.
- [38] J. Taniguchi, N. E. LeBanon, J. Howe, D. J. Smith, C. Stolz, C. Weinzapfel et J. Kimmons, "Functional damage thresholds of hafnia/silica coating designs for the NIF laser", *Proc. SPIE* 4347, 109, 2001.
- [39] Y. G. Shan, H. B. He, Y. Wang, X. Li, D. W. Li et Y. A. Zhao, "Electrical field enhancement and laser damage growth in high-reflective coatings at 1064 nm", *Optics Communications* 284, 625-629, 2011.
- [40] R. A. Negres, C. W. Carr, I. L. Bass, D. A. Alessi, T. A. Laurence, K. Stanion, G. C. A. Guss, P. J. Wegner et C. J. Stolz, "Characterization of laser-induced damage by picosecond pulses on multi-layer dielectric coatings for petawatt-class lasers", *Proc. SPIE* 9632, 963206, 2015.
- [41] K. R. Manes, M. L. Spaeth, J. J. Adams, M. W. Bowers, J. D. Bude, C. W. Carr, A. D. Conder, D. A. Cross, S. G. Demos, J. M. G. Di Nicola, S. N. Dixit, E. Feigenbaum, R. G. Finucane, G. M. Guss, M. A. Hennesian, J. Honig, D. H. Kalantar, L. M. Kegelmeyer, Z. M. Liao, B. J. MacGowan, M. J. Matthews, K. P.

- McCandless, N. C. Mehta, P. E. Miller, R. A. Negres, M. A. Norton, M. C. Nostrand, Sacks, R. A. Sacks, M. J. Shaw, L. R. Siegel, C. J. Stolz, T. I. Suratwala, J. B. Trenholme, P. J. Wegner, P. K. Whitman, C. C. Widmayer et S. T. Yang, "Damage Mechanisms Avoided or Managed for NIF Large Optics", *Fusion Science and Technology* 69, 146-249, 2016.
- [42] S. Hocquet, "Optimisation de la modulation de phase utilisée pour les laser de puissance : minimization de la conversion FM-AM tout en conservant les fonctionnalités d'élargissement spectral nécessaire à la fusion", Thèse soutenue en 2009.
- [43] T. Suratwala, L. Wong, P. Miller, M. D. Feit, J. Menapace, R. Steele, P. Davis et D. Walmer, "Sub-surface mechanical damage distributions during grinding of fused silica", *Journal of Non-Crystalline Solids* 352, 2006.
- [44] J. Néauport, C. Ambard, P. Cormont, N. Darbois, J. Destribats, C. Luitot et O. Rondeau, "Subsurface damage measurement of ground fused silica parts by HF etching techniques", *Optics Express* 17(22), 2009.
- [45] J. Bude, P. Miller, N. Shen, T. Suratwala, T. Laurence, W. Steele, S. Baxamusa, L. Wong, C. Carr, M. Monticelli, M. Feit, G. Guss et D. Cross, "Silica laser damage mechanisms, precursors and their mitigation", *Proc. SPIE* 9237, 92370S, 2014.
- [46] H. Bercegol, "Endommagement laser nanoseconde en surface de la silice vitreuse", Habilitation à diriger des recherches, soutenue en 2009.
- [47] S. Papernov, "Defect-Induced Damage," in *Laser-induced Damage in Optical Materials*, D. Ristau, Éd., CRC Press, 2015.
- [48] N. Bloembergen, "Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics", *Applied Optics* 12, 1973.
- [49] H. Bercegol, P. Grua, D. Hébert et J.-P. Morreeuw, "Progress in the understanding of fracture related laser damage of fused silica", *Proc. of SPIE* 6720, 672003-1, 2007.
- [50] L. Lamaignère, S. Bouillet, R. Courchinoux, T. Donval, M. Josse, J.-C. Poncetta et H. Bercegol, "An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials", *Review of Scientific Instruments* 78, 2007.
- [51] J. Dijon, B. Rafin, C. Pellé, J. Hue, G. Ravel et B. André, "One Hundred Joule per square centimeter 1.06 $\mu$ m mirrors", *Proc. SPIE* Vol.3902, 2000.
- [52] M. Mero, J. Liu, W. Rudolph, D. Ristau et K. Starke, "Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films", *Physical Review B* 71, 2005.
- [53] J. Britten, M. Perry, B. Shore, R. Boyd, G. Loomis et R. CHow, "High-efficiency dielectric multilayer gratings optimized for manufacturability and laser damage threshold", *Proc. SPIE* 2714, 511-520, 1995.

- [54] G. Abromavicius, R. Buzelis, R. Drazdys, A. Melninkaitis et V. Sirutkaitis, "Influence of electric field distribution on laser induced damage threshold and morphology of high reflectance optical coatings", Proc. SPIE 6720, 67200Y-1-8, 2007.
- [55] N. Bonod et J. Neauport, "Optical performance and laser induced damage threshold improvement of diffraction gratings used as compressors in ultra high intensity lasers", Optics Communications 260, 649-655, 2006.
- [56] S. Günster, D. Ristau, B. Weichelt et A. Voss, "Coatings for Thin-Disk Laser System", Proc. SPIE 8168, 2011.
- [57] L. Jensen et D. Ristau, "Coatings of Oxide Composites", Proc. SPIE 8530, 2012.
- [58] A. L. Rigatti, "Cleaning processes versus laser-damage threshold of coated optical components", Proc. SPIE 5647, 136-140, 2005.
- [59] C. J. Stolz, L. M. Sheedan, M. K. Von Gunten, R. P. Bevis et D. Smith, "The advantage of evaporation of Hafnium in a reactive environment to manufacture high damage threshold multilayer coatings by electron-beam deposition", Proc. SPIE 3738, 318-324, 1999.
- [60] K. H. Guenther, "Microstructure of vapor-deposited optical coatings", Applied Optics 23, 21, 1984.
- [61] W. Ensinger, "Ion sources for ion beam assisted thin film deposition", Review of Scientific Instruments 63(11), 5217-5233, 1992.
- [62] F. Träger, "Springer Handbook of Lasers and Optics", Springer, 2012.
- [63] A. J. Waldorf, J. A. Dobrowolski, B. T. Sullivan et L. M. Plante, "Optical coatings deposited by reactive ion plating", Applied Optics 32, 28, 1993.
- [64] G. Bräuer, "Large Area Deposition", in Optical Interference Coatings, Springer, 2003.
- [65] R. Kukla, "Magnetron sputtering on large scale substrates: an overview on the state of the art", Surface and Coatings Technology 93, 1997.
- [66] H. Leplan, "Les contraintes dans les couches minces optiques", Thèse soutenue en octobre 1995.
- [67] J. B. Oliver, "Evaporated HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> optical coatings and modification for high-power laser applications", Thèse soutenue en 2012.
- [68] TFCalc software, <http://www.sspectra.com/>.
- [69] N. Bonod et J. Néauport, "Diffraction gratings: from principles to applications in high-intensity lasers", Advances in Optics and Photonics 8, 1, 2016.
- [70] E. Popov, L. Tsonev et D. Maystre, "Gratings: general properties of the Littrow mounting and energy

- flow distribution", *Journal of Modern Optics* 37, 367-377, 1990.
- [71] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore et M. D. Perry, "Optical ablation by high-power short-pulse lasers", *Journal of Optical Society of America B* 13, 459-468, 1996.
- [72] A. S. Svakhin, V. Sychugov, A. Tikhomirov et A. Mason, "Efficient diffraction elements for TE-polarized waves", *Soviet Physics. Technical Physics* 36, 1038-1040, 1991.
- [73] J. Neauport, E. Lavastre, G. Razé, G. Dupuy, N. Bonod, M. Balas, G. de Villele, J. Flamand, S. Kaladgew et F. Desserouer, "Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings", *Optics Express* 15, 2007.
- [74] M. Nevière et E. Popov, "Light Propagation in Periodic Media: Differential Theory and Design", CRC Press, 2002.
- [75] N. Bonod, G. Tayeb, D. Maystre, S. Enoch et E. Popov, "Total absorption of light by lamellar metallic gratings", *Optics Express* 16, 15431-15438, 2008.
- [76] COMSOL Multiphysics, <http://www.comsol.com/>.
- [77] J. Jasapara, A. V. V. Nampoothiri, W. Rudolph, D. Ristau et K. Starke, "Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films", *Physical Review B* 63, 2001.
- [78] I. B. Angelov, M. Pechmann, M. K. Trubetskov, F. Krausz et V. Pervak, "Optical breakdown of multilayer thin-films induced by ultrashort pulses at MHz repetition rates", *Optics Express* 21, 25, 2013.
- [79] M. Mende, S. Schrameyer, H. Ehlers, D. Ristau et L. Gallais, "Laser damage resistance of ion-beam sputtered Sc<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> mixture optical coatings", *Applied Optics* 52(7), 1368-1376, 2013.
- [80] A. Melninkaitis, T. Tolenis, L. Mažulė, J. Mirauskas, V. Sirutkaitis, B. Mangote, X. Fu, M. Zerrad, L. Gallais, M. Commandré, S. Kičas et R. Drazdys, "Characterization of zirconia- and niobia-silica mixture coatings produced by ion-beam sputtering", *Applied Optics* 50(9), C188-C196, 2011.
- [81] M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, I. Cravetchi et W. Rudolph, "Mixed oxide coatings for advanced fs-laser application", *Proc SPIE* 6720 67200U-1, 2007.
- [82] A. Hervy, G. Chériaux, L. Gallais, D. Mouricaud et S. Djidel, "Femtosecond laser-induced damage threshold of electron-beam deposited materials for broadband high-reflective coatings on large optics", *Proc. SPIE* 9238, 2014.
- [83] L. Gallais, X. Cheng et Z. Wang, "Influence of nodular defects on the laser damage resistance of optical coatings in the femtosecond regime", *Optics Letters* 39, 2014.
- [84] S. Hocquet, J. Néauport et N. Bonod, "The role of electric field polarization of the incident laser beam in the short pulse damage mechanism of pulse compression gratings", *Applied Physics Letter* 99,



061101, 2011.

- [85] F. Kong, Y. Jin, H. Huang, H. Zhang, S. Liu et H. He, "Laser-induced damage of multilayer dielectric gratings with picosecond laser pulses under vacuum and air", *Optics & Laser Technology* 73, 39-43, 2015.
- [86] O. Stenzel, S. Wilbrandt, M. Schürmann, N. Kaiser, H. Ehlers, M. Mende, D. Ristau, S. Bruns, M. Vergöhl, M. Stolze, M. Held, H. Niederwald, T. Koch, W. Riggers, P. Burdack, G. Mark, R. Schäfer, S. Mewes, M. Bischoff, M. Arntzen, F. Eisenkrämer, M. Lappschies, S. Jakobs, S. Koch, B. Baumgarten et A. Tünnermann, "Mixed oxide coatings for optics", *Applied Optics* 50, 9, 2011.
- [87] J. Neauport, N. Bonod, H. S., S. Palmier et G. Dupuy, "Mixed metal dielectric gratings for pulse compression", *Optics Express* 18, 23776, 2010.
- [88] S. Reyné, "Etudes multi-longueurs d'onde de l'endommagement laser des cristaux de KDP en régime nanoseconde", Thèse soutenue en Mars 2011.
- [89] A. J. Campillo, "Small-Scale Self-focusing" in *Self-focusing: Past and Present*, Eds R.W. Boyd and S.G. Lukishova, Springer, 2009.
- [90] D. J. Kane et R. Trebino, "Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 1993.
- [91] C. Iaconis et I. A. Walmsley, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses", *Optics Letters* 23, 792, 1998.
- [92] V. Messenger, F. Louradour, C. Froehly et A. Barthelemy, "Coherent measurement of short laser pulses based on spectral interferometry resolved in time", *Optics Letters* 28, 743, 2003.
- [93] D. Bigourd, J. Luce, E. Mazataud, E. Hugonnot et C. Rouyer, "Direct spectral phase measurement with Spectral Interferometry Resolved in Time Extra Dimensional", *Review of Scientific Instruments* 81, 053105, 2010.
- [94] L. Englert, B. Rethfeld, L. Haag, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran et T. Baumert, "Control of ionization processes in high band gap materials via tailored femtosecond pulses", *Optics Express* 15, 26, 17855, 2007.
- [95] M. Sozet, J. Neauport, E. Lavastre, N. Roquin, L. Gallais et L. Lampaignere, "Assessment of mono-shot measurement as a fast and accurate determination of the laser-induced damage threshold in the sub-picosecond regime", *Optics Letter* 41, 4, 2016.
- [96] B. Mangote, "Tenue au flux des couches minces optiques en régime subpicoseconde", Thèse soutenue en 2011.
- [97] S. Palmier, J. Neauport, N. Baclet, E. Lavastre et G. Dupuy, "High reflection mirrors for pulse compression gratings", *Optics Express* 17, 2009.

- [98] J. Bellum, T. Winstone, L. Lampaignere, M. Sozet, M. Kimmel, P. Rambo, E. Field et D. Kletecka, "Analysis of laser damage tests on coatings designed for broad bandwidth high reflection of femtosecond pulses", *Optical Engineering* 56(1), 011012, 2017.
- [99] J. B. Oliver, S. Papernov, A. W. Schmid et J. C. Lambropoulos, "Optimization of Laser-Damage Resistance of Evaporated Hafnia Films at 351 nm", *Proc. SPIE Vol. 7132 71320J1-11*, 2008.
- [100] C. J. Stolz, J. E. Wolfe, J. J. Adams, M. G. Menor, N. E. Teslich, P. B. Mirkarimi, J. A. Folta, R. Soufli, C. S. Menoni et D. Patel, "High laser-resistant multilayer mirrors by nodular defect planarization", *Applied Optics* 53, 2014.
- [101] M. Sozet, J. Neauport, E. Lavastre, N. Roquin, L. Gallais et L. Lampaignere, "Laser damage density measurement of optical components in the sub-picosecond regime", *Optics Letters* 40, 9, 2015.
- [102] O. Favrat, M. Sozet, I. Tovenà-Pécault, L. Lampaignère et J. Néauport, "Influence of organic contamination on laser induced damage of multilayer dielectric mirrors by subpicosecond laser pulses", *Proc. SPIE 9237, 923707*, 2014.
- [103] L. Lampaignère, M. Balas, R. Courchinoux, T. Donval, J.-C. Poncetta, S. Reyné, B. Bertussi et H. Bercegol, "Parametric study of laser-induced surface damage density measurements: Toward reproducibility", *Journal of Applied Physics* 107, 2010.
- [104] S. C. Weakley, C. J. Stolz, Z. L. Wu, R. P. Bevis et M. K. von Gunten, "Role of starting material composition in interfacial damage morphology of hafnia silica multilayer coatings", *Proc. SPIE 3578*, 1999.
- [105] J. E. Wolfe, C. J. Stolz et S. Falabella, "Fabrication of mitigation pits for improving laser damage resistance in dielectric mirrors by femtosecond laser machining", *Applied Optics* 50, C457-C462, 2013.
- [106] H. Apfel, "Optical coating design with reduced electric field intensity", *Applied Optics* 16, 1977.
- [107] L. Waxer, T. Kessler, D. Maywar, J. Kelly, R. McCrory, B. Kruschwitz, S. Loucks, C. Stoeckl, D. Meyerhofer et S. Morse, "High-energy petawatt capability for the OMEGA laser", *Optics and Photonics News* 16(7), 2005.
- [108] C. P. J. Barty, . M. Key, J. Britten, R. Beach, G. Beer, C. Brown, S. Bryan , J. Caird, T. Carlson, J. Crane, J. Dawson, A. C. Erlandson, D. Fittinghoff, M. Hermann, C. Hoaglan, A. Iyer, L. Jones, I. Jovanovic, A. Komashko, O. Landen, Z. Liao, W. Molander, S. Mitchell, E. Moses, N. Nielsen, H.-H. Nguyen, J. Nissen, S. Payne, D. Pennington, L. Risinger, M. Rushford, K. Skulina, B. Stuart, G. Tietbohl et B. Wattellier, "An overview of LLNL high-energy short-pulse technology for advanced radiography of laser fusion experiments", *Nuclear Fusion* 44, 12, 2004.
- [109] D.-B. L. Douli, Tenue au flux et physique de l'interaction laser/matière dans les couches minces optiques en régime sub-picoseconde, Thèse soutenue en Novembre 2015, 2015.
- [110] ImageJ software, [http://imagej.nih.gov/ij/..](http://imagej.nih.gov/ij/)

- [111] M. Sozet, J. Neauport, E. Lavastre, N. Roquin, L. Gallais et L. Lameignere, "Laser damage growth with picosecond pulses", *Optics Letters* 41, 10, 2016.
- [112] M. Chambonneau, M. Chanal, S. Reyné, G. Duchateau, J.-Y. Natoli et L. Lameignère, "Investigations on laser damage growth in fused silica with simultaneous wavelength irradiations", *Applied Optics* 54, 1463, 2015.
- [113] S. R. Qui, J. E. Wolfe, A. M. Monterrosa, M. D. Feit, T. V. Pistor et C. J. Stolz, "Searching for optimal mitigation geometries for laser-resistant multilayer high-reflector coatings", *Applied Optics* Vol. 50, No. 9, 2011.
- [114] J. Bonse, S. Baudach, J. Krüger, W. Kautek et M. Lenzner, "Femtosecond laser ablation of silicon modification thresholds and morphology", *Applied physics A* 74, 19-25, 2002.

Cette thèse s'intéresse à l'endommagement laser d'optiques réfléchives en régime sub-picoseconde. Ces composants optiques, réalisés à partir d'empilements sub-micrométriques de matériaux diélectriques, sont couramment utilisés dans les installations laser de puissance telles que le laser PETAL. Ce dernier, construit sur le centre du CEA-CESTA en France, a été conçu pour délivrer des impulsions de 500 fs et de quelques kJ à une longueur d'onde de 1053 nm, dans le but d'atteindre des puissances supérieures à 6PW. Dans ce type d'installations de puissance, afin de limiter l'accumulation d'effets non-linéaires liés à la propagation d'impulsions intenses, des optiques réfléchives en fin de chaîne se substituent aux optiques en transmission. Les composants optiques illuminés par les plus fortes densités de puissance sont des réseaux de compression, des miroirs et une parabole qui servent respectivement à la compression temporelle des impulsions, au transport du faisceau ainsi qu'à sa focalisation. Le phénomène d'endommagement laser est le paramètre principal qui limite la puissance accessible par ces lasers. Il est nécessaire de comprendre et de maîtriser ce phénomène afin de fiabiliser une installation laser et également d'améliorer ses performances. Trois axes d'études ont donc été explorés. Le premier concerne la conception d'optiques réfléchives. Des définitions de structures sont recherchées afin d'obtenir de hautes efficacités de diffraction dans le cas des réseaux et des forts coefficients de réflexion dans le cas des miroirs, tout en diminuant le renforcement du champ électrique dans les structures, l'une des causes de l'endommagement laser. Le second axe d'étude porte sur la mise en place d'une métrologie fine de l'endommagement laser avec le développement de nouvelles procédures de test. Elles amènent de nouveaux points de vue pour la qualification de la résistance au flux laser des optiques. En dernier lieu, nous étudions le phénomène de croissance des dommages lorsqu'ils sont soumis à plusieurs irradiations laser. L'évolution de la surface des dommages lors de séquences de croissance est observée, quantifiée et comparée à un modèle numérique. Cela nous permet de mieux comprendre la phénoménologie de la croissance des dommages en régime sub-picoseconde. A terme, elles permettront de développer des modèles de prédiction de l'endommagement et des outils pour l'amélioration des optiques utilisées sur chaîne laser.

---

In this thesis, laser-induced damage phenomenon of reflective components is investigated in the sub-picosecond regime. These components, made of stacks of dielectric materials, are widely used in powerful laser facilities such as PETAL laser. PETAL laser has been built at the CEA-CESTA in France to deliver multi-kJ/500fs pulses at 1053nm and reach a power higher than 6PW. For this kind of laser systems, reflective components are commonly used instead of optics operating in transmission to limit the accumulation of non-linear phase along the beam propagation due to the high intensities. Optical components irradiated by the highest power densities are the pulse compression gratings, transport mirrors and the focusing parabola, located at the end of the laser chain. Nowadays, laser-induced damage is the main factor that limits the overall performances of powerful laser systems. This manuscript presents three study axes to better understand and control damage phenomenon. The first one concerns the conception of reflective optics for the petawatt applications. The design of new structures has been investigated to reach high diffraction efficiencies in the case of pulse compression gratings and a high reflectivity in the case of mirrors, while reducing the Electric-field enhancement which is one of the causes of the laser-induced damage. The second axis deals with the development of a precise damage metrology with new testing tools which brings new perspectives and a new viewpoint for the assessment of the laser resistance of optical components. Finally, the third axis concerns the study the damage growth after several irradiations in the sub-picosecond regime. The evolution of the damage area during growth sequences is observed and compared to numerical simulations. It enables to improve the understanding in the growth phenomenon. In the end, these studies will allow to develop predictive models of the laser-induced damage and new tools for the conception of reflective optics for petawatt applications.