



**HAL**  
open science

# Etude de la dépendance temporelle de l'endommagement laser de matériaux diélectriques à 1054 nm en régime sub-picoseconde et picoseconde.

Alexandre Ollé

► **To cite this version:**

Alexandre Ollé. Etude de la dépendance temporelle de l'endommagement laser de matériaux diélectriques à 1054 nm en régime sub-picoseconde et picoseconde.. Optique [physics.optics]. Ecole Centrale Marseille, 2020. Français. NNT : 2020ECDM0001 . tel-02570707

**HAL Id: tel-02570707**

**<https://theses.hal.science/tel-02570707>**

Submitted on 12 May 2020

**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 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 MARSEILLE  
Discipline : Physique et Sciences de la Matière  
Spécialité : Optique, Photonique et Traitement d'Images

### Étude de la dépendance temporelle en régime sub-picoseconde et picoseconde de l'endommagement laser de matériaux diélectriques à 1054 nm

Par

**OLLÉ Alexandre**

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

*Soutenue le 20 janvier 2020*

*devant le jury composé de :*

MANEK-HÖNNINGER Inka	Professeur, CELIA, Talence	Rapporteur
BAGNOUD Vincent	Priv. Doz. Dr. Vincent Bagnoud, GSI Helmholtz, Darmstadt	Rapporteur
DESTOUCHES Nathalie	Professeur, Laboratoire Hubert Curien, Saint-Étienne	Examineur
PAPADOPOULOS Dimitrios	Ingénieur, LULI, Palaiseau	Examineur
GALLAIS Laurent	Professeur, Institut Fresnel, Marseille	Directeur de thèse
LAMAIGNÈRE Laurent	Directeur de recherche, CEA-CESTA, Le Barp	Directeur de thèse

---



*À ma famille,  
À mes amis.*



*« Douter de tout ou tout croire, ce sont deux solutions commodes,  
qui l'une et l'autre nous dispensent de réfléchir. »*

**Henri Poincaré**

## Remerciements

Si j'ai pu mener à bien mon doctorat, c'est surtout grâce au très bon cadre de travail dont j'ai bénéficié ainsi qu'à mon entourage. Je tiens donc à remercier ici toutes les personnes concernées qui ont contribué au bon déroulement et à l'aboutissement de cette thèse ainsi qu'à la rédaction de ce manuscrit.

Je commencerai par sincèrement remercier Denis P. pour avoir accepté ma candidature et veillé au bon financement de la thèse. Merci à Jérôme D. pour ton suivi et tes remarques qui ont été déterminantes pour mes travaux. Merci aussi à Bernard C. pour l'intérêt continu que tu as porté à mon travail.

Je souhaite ensuite grandement remercier Inka Manek-Hönninger et Vincent Bagnoud pour avoir accepté de rapporter mes travaux et pour leurs retours qui ont renforcé ce manuscrit. Je remercie aussi vivement Nathalie Destouches d'avoir pris la présidence du jury ainsi que Dimitrios Papadopoulos d'avoir accepté d'évaluer mon travail. Enfin, je les remercie tous pour les questions qui m'ont été posées lors de ma soutenance qui témoignent de l'intérêt et de l'attention portés à mes travaux, ce que j'ai particulièrement apprécié.

Un immense merci à mes deux directeurs de thèse, Laurent L. et Laurent Gallais. Merci d'avoir cru en moi. L'engagement et le professionnalisme dont vous faites preuve envers vos étudiants et vos collègues sont exemplaires. Merci d'avoir été si souvent disponible malgré vos responsabilités. Merci pour votre soutien et votre bienveillance permanents qui ont été très précieux pour ma confiance. Merci pour vos innombrables relectures, toutes vos remarques ont toujours été très pertinentes en plus d'être complémentaires. Ne serait-ce que scientifiquement, j'ai beaucoup appris grâce à vous, un grand merci pour cela aussi. Travailler à vos côtés fut un vrai plaisir et une source de fierté ! Laurent G., je veux te remercier en particulier pour tout le chemin que tu m'as aidé à parcourir depuis Centrale. Je te dois beaucoup mais je pense pouvoir te rembourser en article (et en bière pour les intérêts). Laurent L., j'ai su depuis le début que nous sommes câblés de la même manière. Cela s'est vérifié au cours de nos nombreuses discussions (dont la somme diverge) où nous nous sommes s'y souvent prêtés à l'art de la remise en question et de la bonne formulation. Merci pour tout et en particulier pour ces moments qui me manqueront.

Nadja R., je tiens à te remercier chaleureusement pour toute l'aide que tu m'as apportée. Cette thèse a été avant tout expérimentale avec DERIC comme pierre angulaire et que ce soit pour m'aider à bien le prendre en main, à l'exploiter ou poursuivre son développement, tu as toujours répondu présent dès que tu le pouvais. Et très souvent, c'est grâce à toi que la situation s'est débloquée. Tu es très organisée, toujours volontaire et as en permanence le souci de bien faire et d'apporter des solutions. J'ai eu beaucoup de chance de travailler avec toi. Encore merci, je te souhaite le meilleur pour la suite !

Ma gratitude va ensuite naturellement vers Saaxewer Diop que j'ai eu le très grand plaisir d'encadrer pour son stage de fin d'étude. Saaxe (Sare ?, Mbappé ?), ton travail a énormément contribué à relever les nombreux défis proposés par la voie Top-Hat. Tous les résultats de croissance qui en ont été tirés et qui sont présentés dans ce manuscrit sont aussi les tiens (je m'excuse d'avance si à l'avenir, tu ne perçois plus jamais les « Trois, deux, un... top ! » de la même manière). Je suis ravi de savoir que tu prends le relai en thèse sur DERIC. Je te souhaite toute la réussite possible ; garde toujours confiance car tu as la curiosité et l'approche requises pour faire de la recherche et tu es aussi très bien entouré.

Thierry D., je t'adresse mes plus vifs remerciements. Merci de t'être si souvent libéré pour venir m'aider malgré ton emploi du temps toujours très chargé. Je te suspecte de tout résoudre grâce à ta bonne humeur... Un pouvoir que seul un « héro » peut détenir ☺ Je ne saurais également oublier mes supers voisins de labo Odile B., Roger C. et Romain P. : plus d'une fois, vous m'avez fait bénéficier de votre immense savoir-faire, je vous en remercie beaucoup.

Toute ma reconnaissance va également à Jacques L. et Claude R. avec qui j'ai eu l'opportunité et le plaisir de discuter (entre autres) de phase spectrale et de forme temporelle sous tous les angles ! Merci de m'avoir consacré une partie de votre temps, toutes nos entrevues ont toujours été très enrichissantes pour moi.

Merci beaucoup à Marine C., Éric L., Thomas L. et Jérôme N. sans qui une partie cruciale de mes travaux n'aurait pas vu le jour. Merci par ailleurs à vous Marine et Éric qui m'avez accompagné lors de ma première mission à l'étranger ; si tout s'est bien passé c'est surtout grâce à vous ! Marine, nos thèses se sont déroulées quasiment en parallèle et je tiens à te remercier en particulier pour tes conseils, tes remarques et ton soutien qui m'ont aidé jusqu'au bout.

À mes autres compères docteurs Matthieu Veinhard et Florian Tournemene ; merci beaucoup pour votre aide et vos conseils. Je garderai de très bons souvenirs des deux ans (au moins) passés en votre compagnie dans le même bureau. Matthieu, je m'estimais pinailleur/perfectionniste pour les schémas puis je t'ai rencontré. Flo, tes énigmes douteuses ne me manqueront pas. Merci également à toi Martin S. qui a pris sur ton temps pour venir m'aider. Je vous souhaite à tous une très bonne continuation.

Un grand merci à toutes les autres personnes avec qui j'ai eu l'occasion de travailler et/ou que j'ai pu côtoyer pendant ces trois années et qui ont toutes permis un environnement de travail très agréable. Merci ainsi à Christel A., Frédéric A., Vincent B., Stéphane B., Sandy C., Martin C., Laure E., Sandrine F., Gaël G., Isabelle L., Christophe L., Sébastien M., Gérard R. et Patrice W.. Merci aux jeunes pousses Emma, Vincent, Léa, Julie, Mélusine, Arthur, Yon, Achille, Kilian, Domitille et Benjamin avec qui j'ai toujours pris beaucoup de plaisir à discuter. Merci beaucoup à Clément Roque et Charles Bouyer qui ont toujours été prompts à partager leurs connaissances avec moi. Clément, ton enthousiasme, ta spontanéité et ta détermination sont tes plus grandes forces, ne les perds jamais. Charles, je te souhaite le meilleur pour ton doctorat ! Veille pour moi s'il te plaît à ce que Saaxe ait toujours sa polaire quand il va sur DERIC. Merci à Isabelle C.-J., Odile L., Nadège M. et Sarah Mostefa pour votre excellent soutien concernant les questions administratives. Merci à Sophie B. pour ta disponibilité et ton aide précieuse vis-à-vis du prêt et de l'emploi de matériel électronique. Merci à tous les membres d'Amplitudes Systèmes qui se sont déplacés au CEA pour garantir la très bonne qualité de la source laser de DERIC. Mes remerciements spéciaux à la section basket pour toutes ces séances où j'ai pris beaucoup de plaisir à jouer ! Merci à mes collègues de l'Institut Fresnel pour tous les bons moments et échanges que j'ai pu partager avec vous lors de chacune de mes venues sur Marseille (merci en particulier à Thomas Doualle, Thibault Vidal et Camille Petite pour le rituel d'après-repas). Un très grand merci à Hermine F. pour ton soutien inébranlable durant tout mon doctorat ; nos « repas aux chandelles » remplis de philosophie me manqueront particulièrement.

Je tiens pour finir à remercier profondément toute ma famille, mes amis et mes proches pour leur soutien essentiel (moral et/ou logistique). À Marine la Réunionnaise, merci énormément pour ton soutien aussi, ta patience, ta compréhension et l'équilibre que tu m'as apporté. Tu m'as toujours mis dans les meilleures conditions pour en voir le bout, je t'en serai toujours très reconnaissant.

## Table des matières

<b>Introduction générale.....</b>	<b>12</b>
<b>Chapitre I : Le laser PETAL et le phénomène limitant d'endommagement laser.....</b>	<b>15</b>
<b>Tables des matières du Chapitre I.....</b>	<b>16</b>
<b>I.A Le laser PETAL.....</b>	<b>17</b>
<b>I.A.1 Informations générales.....</b>	<b>17</b>
<b>I.A.2 Architecture et performances nominales.....</b>	<b>19</b>
<b>I.A.3 Performances réelles et spécifications de tenue au flux laser.....</b>	<b>27</b>
<b>I.B L'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde.....</b>	<b>29</b>
<b>I.B.1 Mécanismes électroniques en jeu lors de l'interaction entre une impulsion laser et un matériau diélectrique.....</b>	<b>29</b>
<b>I.B.1.a Mécanismes d'excitation électronique.....</b>	<b>31</b>
<b>I.B.1.b Mécanismes de relaxation électronique.....</b>	<b>32</b>
<b>I.B.1.c Équations de taux et densité électronique critique.....</b>	<b>34</b>
<b>I.B.2 De l'excitation électronique à l'endommagement laser du matériau.....</b>	<b>36</b>
<b>I.B.2.a Dépôt d'énergie.....</b>	<b>36</b>
<b>I.B.2.b Endommagement de la matière.....</b>	<b>37</b>
<b>I.B.2.c Distinction entre impulsion « courte » et impulsion « longue ».....</b>	<b>38</b>
<b>I.B.2.d Endommagement sous irradiation longue.....</b>	<b>38</b>
<b>I.B.2.e Endommagement déterministe ou probabiliste.....</b>	<b>40</b>
<b>I.B.2.f Endommagement en face avant et/ou face arrière.....</b>	<b>40</b>
<b>I.B.3 Les différentes formes d'endommagement laser.....</b>	<b>42</b>
<b>I.B.3.a L'endommagement laser intrinsèque.....</b>	<b>42</b>
<b>I.B.3.b L'endommagement laser sur défauts.....</b>	<b>46</b>
<b>I.B.3.c La croissance des dommages lasers.....</b>	<b>51</b>
<b>I.B.4 Dépendance temporelle des phénomènes d'endommagement laser.....</b>	<b>56</b>
<b>Conclusion du Chapitre I.....</b>	<b>59</b>

<b>Chapitre II : Métrologie de l'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde.....</b>	<b>61</b>
<b>Tables des matières du Chapitre II.....</b>	<b>62</b>
<b>II.A Le banc d'endommagement laser DERIC.....</b>	<b>63</b>
<b>II.A.1 Formation et caractérisation des impulsions lasers.....</b>	<b>64</b>
<b>II.A.1.a Caractéristiques générales.....</b>	<b>64</b>
<b>II.A.1.b Caractéristiques spatiales.....</b>	<b>65</b>
<b>II.A.1.c Caractéristiques spectrales.....</b>	<b>66</b>
<b>II.A.1.d Caractéristiques temporelles.....</b>	<b>66</b>
<b>II.A.1.d.i Contraste temporel.....</b>	<b>66</b>
<b>II.A.1.d.ii Durée d'impulsion estimée par autocorrélation.....</b>	<b>69</b>
<b>II.A.1.d.iii Profils temporels d'intensité.....</b>	<b>73</b>
<b>II.A.1.d.iv Plages temporelles.....</b>	<b>78</b>
<b>II.A.2 Voie gaussienne.....</b>	<b>81</b>
<b>II.A.3 Voie top-hat.....</b>	<b>85</b>
<b>II.B Qualification du banc DERIC.....</b>	<b>92</b>
<b>II.B.1 Méthodes de qualification de composants optiques.....</b>	<b>92</b>
<b>II.B.1.a 1-on-1.....</b>	<b>92</b>
<b>II.B.1.b Monoshot.....</b>	<b>95</b>
<b>II.B.1.c S-on-1.....</b>	<b>96</b>
<b>II.B.1.d R-on-1.....</b>	<b>97</b>
<b>II.B.1.e Rasterscan.....</b>	<b>97</b>
<b>II.B.1.e.i Méthodes d'analyse.....</b>	<b>101</b>
<b>II.B.1.e.ii Résolution du système de détection par diffusion lumineuse.....</b>	<b>105</b>
<b>II.B.2 Comparaison entre les voies gaussienne et top-hat.....</b>	<b>107</b>
<b>II.B.3 Inter-comparaison avec des laboratoires nationaux et internationaux.....</b>	<b>109</b>
<b>II.B.3.a Principe de l'étude comparative.....</b>	<b>109</b>
<b>II.B.3.b Résultats expérimentaux.....</b>	<b>110</b>
<b>II.B.3.c Mesures complémentaires.....</b>	<b>112</b>
<b>II.B.3.d Bilan de l'inter-comparaison.....</b>	<b>115</b>
<b>Conclusion du Chapitre II.....</b>	<b>117</b>

<b>Chapitre III : Dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque et sur défauts.....</b>	<b>119</b>
<b>Tables des matières du Chapitre III.....</b>	<b>120</b>
<b>III.A</b> Définition et caractérisation des miroirs étudiés.....	121
<b>III.B</b> Dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque.....	123
<b>III.B.1</b> Étude expérimentale.....	123
<b>III.B.1.a</b> Validation de la procédure Monoshot dans les régimes sub-pico-seconde et pico-seconde.....	123
<b>III.B.1.b</b> Lois d'échelles temporelles expérimentales.....	125
<b>III.B.2</b> Étude numérique.....	127
<b>III.B.2.a</b> Description du modèle.....	127
<b>III.B.2.b</b> Lois d'échelles temporelles numériques.....	131
<b>III.B.3</b> Discussion autour de la dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque.....	132
<b>III.C</b> Dépendance temporelle de l'endommagement laser sur défauts.....	136
<b>III.C.1</b> Résultats expérimentaux.....	136
<b>III.C.1.a</b> Densités surfaciques de dommages induits sur défauts.....	136
<b>III.C.1.b</b> Morphologies des dommages induits sur défauts.....	138
<b>III.C.2</b> Discussion autour de la dépendance temporelle de l'endommagement laser sur Défauts.....	142
<b>Conclusion du Chapitre III.....</b>	<b>147</b>
<b>Chapitre IV : Étude paramétrique de la croissance des dommages lasers dans les régimes sub-pico-seconde et pico-seconde.....</b>	<b>149</b>
<b>Tables des matières du Chapitre IV.....</b>	<b>150</b>
<b>IV.A</b> Cadre d'étude.....	151
<b>IV.A.1</b> Définition et caractérisation des miroirs étudiés.....	151
<b>IV.A.2</b> Voie laser et procédure d'étude employées.....	153
<b>IV.A.3</b> Analyse des résultats.....	155
<b>IV.A.4</b> Phénomène de fatigue et taux de répétition.....	156
<b>IV.A.5</b> Qualité du faisceau top-hat.....	157
<b>IV.A.6</b> Paramètres étudiés.....	159

<b>IV.B</b> Étude paramétrique expérimentale.....	161
<b>IV.B.1</b> Impact de la taille de l’amorce.....	161
<b>IV.B.2</b> Impact de la durée d’impulsion.....	163
<b>IV.B.3</b> Impact de la polarisation.....	168
<b>IV.B.4</b> Impact de l’angle d’incidence.....	174
<b>IV.C</b> Étude paramétrique numérique.....	175
<b>IV.C.1</b> Modèle COMSOL 2D.....	175
<b>IV.C.1.a</b> Description et validité du modèle.....	175
<b>IV.C.1.b</b> Calculs numériques d’EFI et confrontation aux expériences.....	177
<b>IV.C.2</b> Modèle COMSOL 3D.....	182
<b>IV.D</b> Loi empirique de croissance.....	183
<b>IV.E</b> Influence de la nature spatiale du faisceau sur le phénomène de croissance.....	185
<b>IV.F</b> Saturation des dommages en croissance.....	186
<b>Conclusion du Chapitre IV</b> .....	<b>188</b>
<b>Conclusion générale et perspectives</b> .....	<b>189</b>
<b>Annexe 1</b> : excitation et relaxation électroniques (complément).....	195
<b>Annexe 2</b> : mesures SPIRITED de profil temporel sur DERIC (complément).....	197
<b>Annexe 3</b> : reconstruction numérique du profil temporel des impulsions DERIC.....	200
<b>Annexe 4</b> : traitement du bruit sur les acquisitions du profil spatial.....	203
<b>Annexe 5</b> : caustique de la voie top-hat de DERIC & rôle de la lame de phase.....	206
<b>Annexe 6</b> : mesures complémentaires dans le cadre de l’inter-comparaison.....	215
<b>Annexe 7</b> : nature et réflectivité d’un miroir diélectrique quart d’onde.....	217
<b>Annexe 8</b> : éléments en lien avec l’étude de la croissance des dommages lasers sur la voie top-hat de DERIC.....	221
<b>Références bibliographiques</b> .....	<b>225</b>

---

## Introduction générale

En 1917, Albert Einstein démontre la possibilité qu'une source de lumière soit amplifiée tout en gardant sa cohérence, sa directivité et sa monochromaticité grâce au phénomène d'émission stimulée [1], cette amplification étant d'autant plus aisée que la longueur d'onde de la source de lumière est grande. Il faudra cependant attendre 1953 avec l'invention du MASER (Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation) par Charles Townes, James P. Gordon et Herbert Zeiger pour que ce phénomène soit mis pour la première fois en pratique, donc pour des longueurs d'onde du domaine micro-onde. Théodore H. Maiman est le premier à obtenir en 1960, au moyen d'un milieu amplificateur solide (cristal de rubis), une amplification stimulée (impulsionnelle) pour une longueur d'onde du domaine visible [2] : le LASER est né (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation). Le laser se diversifie alors très vite : le premier laser continu (à gaz) est créé en 1961 [3], le laser à semi-conducteur en 1962 [4], le laser CO<sub>2</sub> en 1964 [5], celui à colorant en 1966 [6] etc. De par la diversité de ses sources et de ses propriétés optiques uniques (monochromaticité, directivité, cohérences spatiale et temporelle), le laser s'impose vite comme un outil très utile dans de nombreux domaines tels que l'industrie (soudure, perçage), la médecine (chirurgie laser des yeux) et même la vie quotidienne (encodage de DVD et CD, lecture de codes-barres sur emballages) etc.

Le laser devient aussi très utilisé en recherche scientifique. En particulier, la capacité des lasers impulsionnels à délivrer une certaine quantité d'énergie dans un temps très court, et donc une puissance crête très importante, ouvre un champ de recherche inédit de l'étude de la matière dans ses états les plus extrêmes. Dès lors, l'objectif est d'atteindre des puissances crêtes et des énergies toujours plus élevées. Là où une succession de découvertes de nouveaux milieux amplificateurs permet d'augmenter les énergies atteignables (on citera notamment le verre phosphate dopé aux ions néodyme permettant d'atteindre des énergies supérieures au kJ), les durées d'impulsions disponibles restent quant à elles longtemps de l'ordre de la nanoseconde (grâce à la technique « Q-switch » inventée dès 1962 [7]). Un important virage est alors pris durant les années 80 avec la découverte de milieux amplificateurs à large gain spectral (au premier rang desquels le saphir dopé aux ions titane découvert en 1982 [8]) autorisant la génération d'impulsions de durées picosecondes et femtosecondes et surtout l'introduction de la technique CPA en 1985 (Chirped Pulse Amplification [9]) permettant l'amplification de telles impulsions sans endommager les milieux amplificateurs. Cela ouvre la voie à une nouvelle génération de lasers très intenses et très énergétiques installés dans de grandes infrastructures. Dès la première moitié des années 90, les premiers modèles de ces grands lasers de puissance atteignent d'emblée des puissances crêtes d'environ 100 TW (laser P102 en France et le laser Vulcain au Royaume-Uni [10]). L'installation Nova aux États-Unis est la première à dépasser 1 PW de puissance crête en 1996 (1,5 PW à 440 fs [11]). Aujourd'hui, de grandes installations lasers de puissance se retrouvent à travers le monde entier. Nous citerons notamment les installations NIF ARC (combinaisons de huit faisceaux lasers de chacun 0,5 PW à environ 1 ps) et Omega EP aux

---

États-Unis (quasiment 1 PW à 0,6 ps), PHELIX en Allemagne (1 PW à 400 fs en régime nominal), une ligne laser intégrée à l'installation GEKKO XII au Japon (0,9 PW à 470 fs) et le laser PETAL (1,15 PW à 700 fs) [10,12] situé au centre CEA-CESTA en France où a été réalisée cette thèse. Cependant, toutes ces installations lasers de puissance se heurtent au phénomène d'endommagement laser de leurs composants optiques constitutifs (miroirs réfléchissants, réseaux diffractifs, parabole de focalisation etc) qui limite leur montée en énergie. Afin d'améliorer la tenue au flux de ces optiques à risque, l'étude de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes s'avère ainsi nécessaire. Dans le cadre de l'exploitation de PETAL, l'objectif de cette thèse est d'étudier l'impact de la durée d'impulsion sur le phénomène d'endommagement laser de matériaux diélectriques (principalement de miroirs) dans la gamme de fonctionnement de l'installation. Nous étudions ainsi la dépendance temporelle des trois mécanismes d'intérêt pour notre application que sont les phénomènes d'endommagement intrinsèque, sur défauts et de croissance des dommages.

Le chapitre introductif de ce manuscrit est d'abord consacré à la description du laser PETAL et notamment de la technique CPA qui conditionne en très grande partie l'architecture de ce laser de puissance. Nous introduisons alors la problématique de l'endommagement laser de composants optiques diélectriques en régime d'impulsions courtes en illustrant en quoi ce phénomène limite actuellement les performances de PETAL. Nous décrivons par la suite l'ensemble des mécanismes physiques dont résulte l'endommagement laser où nous soulignons notamment les différences avec lesquelles se manifeste ce phénomène selon la durée d'irradiation en distinguant le cas d'irradiations courtes (typiquement femtosecondes ou picosecondes) de celui d'irradiations longues (typiquement nanosecondes). Nous mettons également en avant le fait que l'endommagement laser se décline dans notre cas selon trois formes principales : l'endommagement intrinsèque, l'endommagement sur défauts et la croissance des dommages. Nous terminons ce premier chapitre en dressant un état de l'art des études menées autour de ces trois problématiques dans le cas d'irradiations courtes.

PETAL fonctionnant en régime d'impulsions sub-picoseconde et picoseconde, un banc d'endommagement laser spécifiquement dédié à l'étude de l'endommagement dans cette gamme temporelle (et à la même longueur d'onde) a été installé et développé au CEA-CESTA. C'est sur ce banc, nommé DERIC, qu'ont été réalisées l'ensemble des expériences de cette thèse. Nous décrivons dans le deuxième chapitre toute la métrologie mise en place autour de ce banc pour bien caractériser les impulsions lasers qu'il délivre, nous nous concentrons en particulier sur la caractérisation temporelle des impulsions, et s'assurer le plus possible de la justesse des mesures qui y sont réalisées. Concernant ce dernier point, DERIC présente l'avantage d'être constitué de deux voies lasers indépendantes : une voie dite gaussienne et une autre dite top-hat. Après les avoir décrites ainsi que l'ensemble des procédures de tests pouvant être appliquées sur DERIC, nous montrons sur la base de ces dernières la cohérence des mesures effectuées sur ces deux voies. Dans une volonté de renforcer davantage la métrologie employée sur DERIC, nous comparons et discutons les résultats obtenus sur ce banc avec ceux issus d'une inter-comparaison que nous avons initiée et supervisée entre plusieurs bancs d'endommagement lasers répartis dans des laboratoires de recherche en France et à l'étranger.

---

C'est à partir du troisième chapitre que nous abordons, pour des miroirs diélectriques, la problématique de la dépendance temporelle de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes. Nous montrons dans un premier temps, à partir de résultats expérimentaux et numériques, que la dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque s'explique non pas à partir de la durée d'impulsion seule mais bien à partir de tout le profil temporel des impulsions. Nous illustrons en quoi ce fait impacte directement le concept de loi d'échelle temporelle, historiquement basé sur la durée d'impulsion et grandement utilisé par la communauté de l'endommagement laser. Dans un deuxième temps, nous abordons l'endommagement laser sur défauts où nos travaux ont révélé pour cette forme d'endommagement une dépendance temporelle très différente de celle concernant l'endommagement intrinsèque. Nous expliquons ces différences de comportement à l'aide des modulations du champ électrique présentes dans tout composant diélectrique irradié par laser, phénomène fondamental à la compréhension de l'endommagement laser de manière générale et qui est très sensible à la présence de défauts au sein des composants optiques.

Un dommage amorcé de manière intrinsèque ou sur défauts en surface de composant est susceptible d'évoluer lorsqu'il est de nouveau irradié, phénomène appelé croissance des dommages qui est le sujet du quatrième et dernier chapitre de ce manuscrit. Les travaux que nous avons menés autour de la croissance des dommages lasers sur miroirs diélectriques se présentent sous la forme d'une étude paramétrique expérimentale au cœur de laquelle se trouve l'étude de la dépendance temporelle de ce phénomène. Une particularité de ces études de croissance est d'avoir été réalisées à partir de la voie top-hat de DERIC utilisant un faisceau au profil spatial du même nom c'est-à-dire à répartition homogène de densité surfacique d'énergie (notamment par opposition à un faisceau spatialement gaussien, employé pour toutes les autres études de ce manuscrit). Nous retrouvons cependant l'ensemble des résultats obtenus lors de précédentes études de croissance réalisées avec un faisceau gaussien [13-14] notamment que la surface d'un dommage croît de façon linéaire avec le nombre d'irradiations. Notre étude paramétrique expérimentale, agrémentée d'une étude numérique portant sur les modulations du champ électrique dans un miroir endommagé, permet de préciser cette loi de croissance de la surface d'un dommage avec le nombre d'irradiations en y intégrant la dépendance selon la fluence d'irradiation et selon la durée d'impulsion. Nous mettons également en évidence expérimentalement et numériquement les rôles de la polarisation et de l'angle d'incidence sur le phénomène de croissance.

# Chapitre I

## Le laser PETAL et le phénomène limitant d'endommagement laser

Ce chapitre introductif s'attache à décrire le contexte scientifique dans lequel s'inscrit cette thèse à savoir le développement du laser PETAL [12,15-17] implanté au CEA-CESTA en région Aquitaine. Ce laser impulsionnel génère des impulsions d'une durée de l'ordre de la picoseconde pour des énergies proches du kiloJoule soit des puissances crêtes de l'ordre du Petawatt [12]. Nous commençons ainsi par décrire l'architecture de PETAL lui permettant d'atteindre ces énergies élevées et ces durées d'impulsions courtes avant d'aborder la problématique de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes, phénomène limitant la montée en énergie de PETAL. Nous en donnons les mécanismes et passons en revue plusieurs travaux effectués sur cette problématique.

## Tables des matières du Chapitre I

<b>I.A</b>	Le laser PETAL.....	17
<b>I.A.1</b>	Informations générales.....	17
<b>I.A.2</b>	Architecture et performances nominales.....	19
<b>I.A.3</b>	Performances réelles et spécifications de tenue au flux laser.....	27
<b>I.B</b>	L'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde.....	29
<b>I.B.1</b>	Mécanismes électroniques en jeu lors de l'interaction entre une impulsion laser et un matériau diélectrique.....	29
<b>I.B.1.a</b>	Mécanismes d'excitation électronique.....	31
<b>I.B.1.b</b>	Mécanismes de relaxation électronique.....	32
<b>I.B.1.c</b>	Équations de taux et densité électronique critique.....	34
<b>I.B.2</b>	De l'excitation électronique à l'endommagement laser du matériau.....	36
<b>I.B.2.a</b>	Dépôt d'énergie.....	36
<b>I.B.2.b</b>	Endommagement de la matière.....	37
<b>I.B.2.c</b>	Distinction entre impulsion « courte » et impulsion « longue ».....	38
<b>I.B.2.d</b>	Endommagement sous irradiation longue.....	38
<b>I.B.2.e</b>	Endommagement déterministe ou probabiliste.....	40
<b>I.B.2.f</b>	Endommagement en face avant et/ou face arrière.....	40
<b>I.B.3</b>	Les différentes formes d'endommagement laser.....	42
<b>I.B.3.a</b>	L'endommagement laser intrinsèque.....	42
<b>I.B.3.b</b>	L'endommagement laser sur défauts.....	46
<b>I.B.3.c</b>	La croissance des dommages lasers.....	51
<b>I.B.4</b>	Dépendance temporelle des phénomènes d'endommagement laser.....	56
	<b>Conclusion du Chapitre I.....</b>	<b>59</b>

## I.A Le laser PETAL

### I.A.1 Informations générales

PETAL est issu du programme PETawatt Aquitaine Laser, lancé officiellement en 2005 et dont l'objectif est de construire, développer et exploiter un laser impulsif énergétique et puissant fonctionnant dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde. La maîtrise d'ouvrage a été confiée à la Région Aquitaine avec pour soutien dans le financement l'État français et l'Union Européenne. La maîtrise d'œuvre a quant à elle été confiée au Commissariat à l'Énergie Atomique et Aux Énergies Alternatives (CEA). PETAL a été construit sur le Centre d'Études Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CESTA), l'un des dix centres CEA de France et l'un des cinq faisant partie de la Direction des Applications Militaires (DAM). Plus précisément, il a été installé et développé dans le même bâtiment contenant le Laser Mégajoule (LMJ). L'ensemble est ainsi connu sous le nom d'installation laser LMJ-PETAL dont une illustration est donnée en Figure 1-1.



Figure 1-1 : Vue aérienne de l'installation laser LMJ-PETAL au CEA-CESTA. Le bâtiment fait environ 300 m de long, 100 m de large et 40 m de haut.

Au centre de l'installation se trouve la chambre d'expérience (sphère sous vide de dix mètres de diamètre, voir Figure 1-2) autour de laquelle sont connectés quatre halls lasers (deux de part et d'autre dans la Figure 1-1). Les quatre halls contiennent l'intégralité des cent soixante-seize faisceaux lasers du LMJ qui arrivent via des hublots par le haut ou par le bas de la chambre (visibles en Figure 1-2) tandis que PETAL, qui n'est constitué que d'un faisceau laser, se trouve dans l'un des halls et arrive dans le plan équatorial de la chambre à partir d'une ouverture (son architecture est telle que le faisceau se retrouve sous vide avant d'entrer dans la chambre, voir section suivante). Afin de ne pas casser le vide, la chambre est équipée de bras mécaniques (visibles en Figure 1-2) permettant d'introduire et de placer en son centre les diagnostics lasers et les cibles prévues pour les expériences, ces dernières pouvant être réalisées avec les faisceaux LMJ seuls ou le faisceau PETAL seul ou une combinaison.

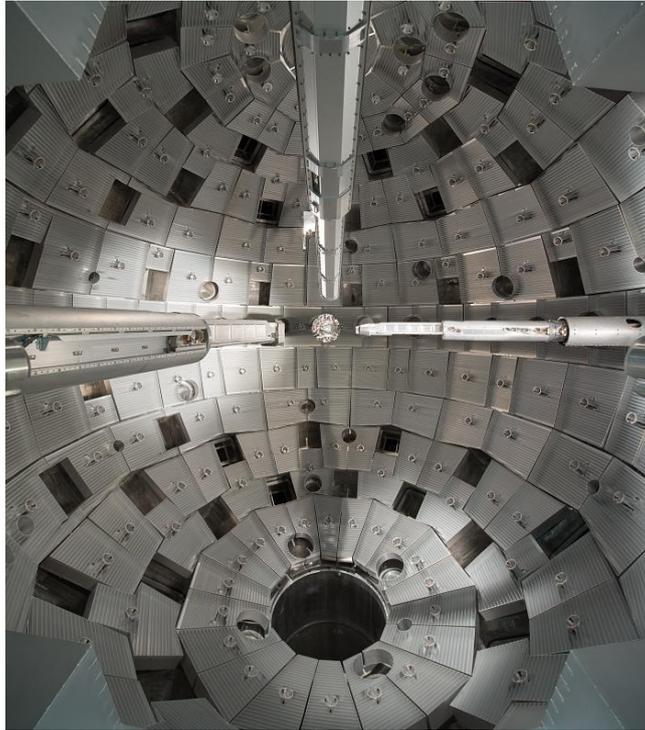


Figure 1-2 : Vue interne de la chambre d'expériences (en permanence sous vide). Les pièces rectangulaires sombres sont les hublots d'entrée des faisceaux lasers du LMJ. Des bras mécaniques (trois sont visibles) permettent de placer la cible très précisément au centre de la chambre (par ombroscopie) et de l'entourer par des diagnostics analysant le déroulé des expériences.

Comparé au LMJ dont chaque faisceau possède une durée d'impulsion de l'ordre de la nanoseconde ( $1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$ ) et une énergie de l'ordre de la dizaine de kiloJoule ( $10 \text{ kJ} = 10^4 \text{ J}$ ), PETAL est conçu pour délivrer des impulsions d'une durée de l'ordre de la picoseconde ( $1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$ ) et d'une énergie de l'ordre du kiloJoule soit une puissance crête dont l'ordre de grandeur est le petawatt ( $1 \text{ PW} = 10^{15} \text{ W}$ , d'où son nom), cent fois plus qu'un faisceau LMJ. La focalisation des impulsions PETAL doit enfin permettre d'atteindre des intensités sur cible de  $10^{20} \text{ W/cm}^2$ .

Le 29 mai 2015, avec un tir laser d'une énergie de 850 J pour une durée d'impulsion de 700 fs soit une puissance crête de 1,2 PW, PETAL est officiellement devenu l'un des lasers les plus puissants au monde dans la catégorie des lasers impulsions et mono-faisceau énergétiques (énergie d'au moins plusieurs centaines de Joules). PETAL a été officiellement inauguré le 18 septembre 2015.

Il est prévu que la communauté civile de la recherche dispose de 20 à 30% du temps de fonctionnement de l'installation LMJ-PETAL qui constitue un outil de choix pour la recherche scientifique. La combinaison des faisceaux LMJ avec celui de PETAL ouvre en effet des perspectives de recherche dans des domaines tels que :

- La physique des très hautes intensités (champs électromagnétiques intenses).
- L'astrophysique.
- La physique des plasmas.
- L'allumage rapide pour la fusion nucléaire par confinement inertiel.
- La radiographie haute résolution (protons accélérés très énergétiques).

## I.A.2 Architecture et performances nominales

Le tableau ci-dessous rassemble les principales caractéristiques nominales des impulsions de PETAL. L'architecture permettant de délivrer de telles impulsions est décrite par la suite.

<b>Longueur d'onde centrale</b>	1053 nm
<b>Largeur spectrale</b>	3 nm
<b>Énergie</b>	3 kJ
<b>Durée d'impulsion</b>	Entre 0,5 et 10 ps
<b>Contraste temporel</b>	$10^{-7}$ à -7 ps
<b>Dimensions avant focalisation</b>	$37,1 \times 35,6 \text{ cm}^2$
<b>Intensité sur cible</b>	$10^{20} \text{ W/cm}^2$

Tableau 1-1 : Caractéristiques nominales des impulsions de PETAL.

La conception de PETAL repose sur la technique d'amplification à dérive de fréquences ou Chirped Pulse Amplification (CPA) mise en place par Donna Strickland et Gérard Mourou dans la deuxième moitié des années 80 [9,18], technique pour laquelle ils ont chacun reçu un quart du prix Nobel de Physique 2018 (l'autre moitié revenant à Arthur Ashkin pour l'invention des pinces optiques). La technique CPA a ouvert la voie pour la création de lasers énergétiques à impulsions courtes (picosecondes, sub-picosecondes et femtosecondes), barrière temporelle sur laquelle a longtemps buté la communauté laser. En effet, plus une impulsion est temporellement courte plus son intensité et sa puissance crête augmentent mais plus le risque de subir des effets non-linéaires devient alors important, effets qui peuvent déformer temporellement et spatialement l'impulsion et endommager les milieux amplificateurs (où l'impulsion gagne en énergie). Tout l'enjeu consiste ainsi à réduire le plus possible ces effets non-linéaires lors de l'amplification. La technique CPA propose une solution à cette problématique en jouant uniquement sur l'impulsion sans avoir à modifier le milieu amplificateur. L'idée est d'étirer temporellement une impulsion initialement courte et peu énergétique pour diminuer sa puissance crête tout en conservant son énergie avant son amplification puis de la compresser temporellement après amplification. On distingue ainsi dans l'ordre les phases d'étirement, d'amplification et de compression (l'impulsion initiale étant fournie par un oscillateur laser). Nous revenons plus loin dans cette section sur ces étapes dans le cas de PETAL. Le principe de la technique CPA est illustré en Figure 1-3.

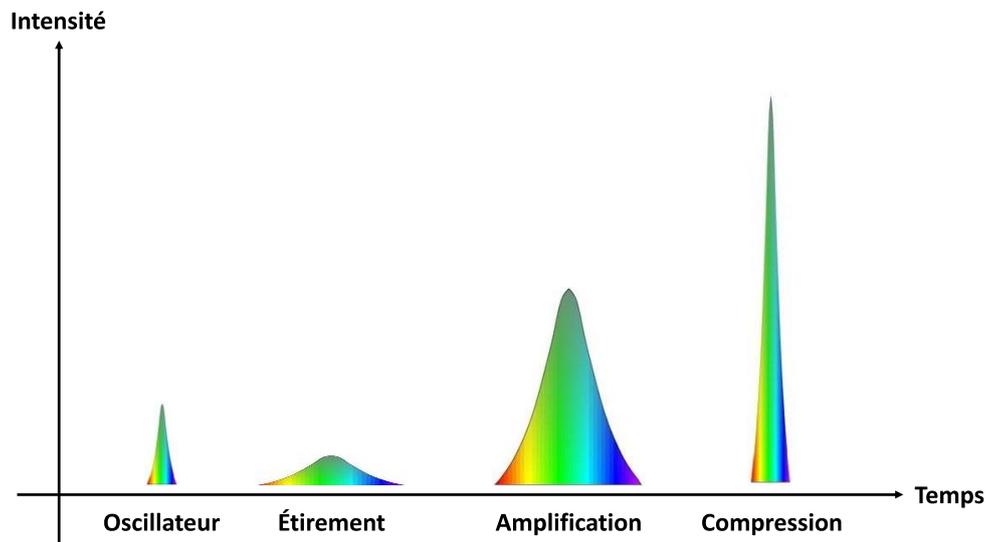


Figure 1-3 : Principe de la technique CPA (Chirped Pulse Amplification ou amplification à dérive de fréquences).

Les concepts d'étirement et compression temporelle reposent entièrement sur le déphasage des composantes spectrales de l'impulsion en utilisant des systèmes dispersifs (réseaux ou prismes majoritairement), technique mise au point par Edmond B. Treacy en 1969 [19]. À ce stade, nous ferons juste remarquer que la technique CPA est d'autant plus efficace que l'impulsion présente une grande largeur spectrale car le déphasage introduit est alors d'autant plus grand pour un système dispersif donné. Or, les impulsions courtes présentent les plus grandes largeurs spectrales (les propriétés temporelle et spectrale de toute impulsion laser sont liées comme nous le verrons au deuxième chapitre) ce qui justifie l'emploi de systèmes dispersifs pour les manipuler temporellement (c'est ce qui a guidé la mise en place de la technique CPA).

La Figure 1-4 donne une vue schématisée des sections constitutives de PETAL que nous décrivons ensuite dans l'ordre (depuis la génération de l'impulsion jusqu'à son arrivée en centre chambre).

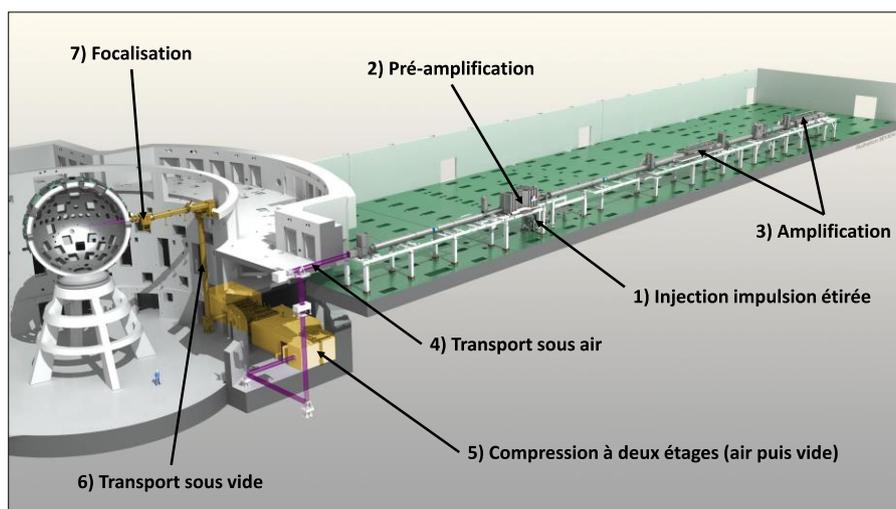


Figure 1-4 : Schéma de la chaîne laser PETAL. La numérotation indique dans l'ordre les étapes par lesquelles passe chaque impulsion. Le reste du hall laser contient en réalité une partie des chaînes lasers du LMJ (non représentées ici).

Génération de l'impulsion laser initiale : un train d'impulsions mères à 77,76 MHz (une impulsion toutes les 13 ns environ) est d'abord délivré par un oscillateur Ti:Saphir (titane saphir) à mode bloqué. Chaque impulsion est centrée à 1053 nm pour une largeur spectrale de 16 nm, dure 100 fs, possède une énergie de 3 nJ et est de taille millimétrique. Une cellule de Pockels placée en sortie d'oscillateur sélectionne une impulsion qui poursuit son chemin vers l'étireur (le reste du train d'impulsions est rejeté) [12].

Étirement temporel : l'étireur utilisé sur PETAL utilise la géométrie du triplet de Öffner [20] dont le principe est illustré en Figure 1-5 [21]. Ce type d'étireur fait appel à un réseau de diffraction comme système dispersif (d'autres types d'étireurs peuvent être conçus à partir de matériaux dispersifs comme le BK7 ou le KDP [21]). À son entrée dans le système (à droite dans la Figure 1-5), l'impulsion est d'abord réfléchi par deux miroirs  $m_1$  et  $m_2$  qui la dirigent vers le réseau diffractif R. Ce dernier fonctionne en réflexion si bien qu'il obéit à la loi des réseaux en réflexion :

$$\sin(i) - \sin(\theta_d) = p \times \frac{\lambda}{\Delta} = p \times N \times \lambda$$

Équation 1-1 : Loi des réseaux en réflexion.  $i$  est l'angle d'incidence (rad),  $\theta_d$  l'angle diffracté (rad),  $\lambda$  la longueur d'onde (m),  $\Delta$  le pas du réseau (m),  $N$  la densité de traits du réseau soit l'inverse de  $\Delta$  (nb/m) et  $p$  est un nombre entier représentant l'ordre de diffraction ( $p = 1$  pour l'étireur de PETAL).

Chaque longueur d'onde  $\lambda$  de l'impulsion ressort ainsi du réseau selon un angle  $\theta_d$  qui lui est propre ; le faisceau est dispersé angulairement (dans le plan horizontal de la Figure 1-5). Il est ensuite réfléchi par le miroir concave  $M_2$  vers le miroir convexe  $M_1$  qui le réfléchit de nouveau vers  $M_2$ . La nature des miroirs fait se retrouver le faisceau à une nouvelle altitude lorsque  $M_2$  le réfléchit de nouveau vers le réseau R. Tous les rayons ressortent alors parallèles après réflexion sur le réseau et arrivent sur un dièdre D. À ce stade, le faisceau est collimaté mais présente un défaut de chromatisme latéral car ses différentes longueurs d'onde sont dispersées latéralement dans le plan horizontal. Afin de corriger ce défaut en rassemblant tous les rayons, le dièdre fait effectuer deux réflexions à angle droit aux rayons pour les renvoyer vers le triplet (R,  $M_2$ ,  $M_1$ ) mais à une nouvelle altitude pour séparer le trajet retour du trajet aller (l'impulsion ressort à gauche sur la Figure 1-5). Ce système fait surtout parcourir un plus long trajet aux petites longueurs d'onde (bleue) qu'aux grandes (rouge). Les différentes composantes spectrales de l'impulsion parcourent donc des chemins optiques différents ce qui les déphase les unes des autres. C'est ce déphasage qui étire temporellement l'impulsion. Parce que la composante « bleue » se retrouve en retard sur la composante « rouge », on dit de ce système qu'il est à dispersion positive (par convention). À la sortie de l'étireur, l'impulsion PETAL a une durée de 9 ns [12].

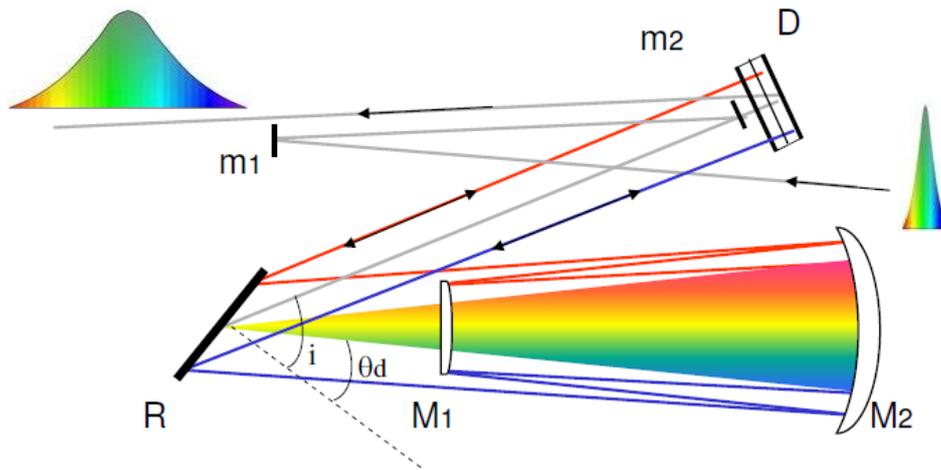


Figure 1-5 : Système à dispersion positive (triplet d'Öffner) utilisé comme étireur pour PETAL [21]. En sortie (à gauche), les plus petites longueurs d'onde sont en retard sur les plus grandes.

**Pré-amplification :** l'impulsion étirée passe ensuite par un premier étage d'amplification appelé Module Pré-Amplificateur (MPA). Cette étape fait appel à la technique d'amplification optique paramétrique ou Optical Parametric Amplification (OPA). Un faisceau dit pompe est généré à partir d'une source laser construite et développée au CESTA [12]. Ce faisceau pompe est monochromatique à 526 nm, possède une énergie de 1,2 J et une durée d'impulsion de 4,5 ns (largeur à mi-hauteur d'un profil temporel super-gaussien d'ordre six) [12]. L'impulsion étirée et le faisceau pompe sont ensuite acheminés vers un ensemble de cristaux non-linéaires de types LBO et BBO où un transfert instantané d'énergie s'opère du faisceau pompe vers l'impulsion PETAL [22]. Ce transfert repose sur les propriétés non-linéaires des cristaux. Il est aussi primordial d'assurer la synchronisation des faisceaux pompe et PETAL en leur sein et de veiller à ce qu'ils aient les bonnes polarisations (en sortie de l'étireur, le faisceau PETAL est à ce titre transporté grâce à une fibre optique dite à maintien de polarisation [12]). Les deux principaux avantages de la technique OPA sont d'une part de ne pas échauffer les cristaux non-linéaires (l'énergie n'y est pas stockée puisqu'elle passe instantanément du faisceau pompe au faisceau PETAL) et d'autre part d'amplifier de la même façon chaque composante spectrale [22]. En sortie du MPA, l'énergie de l'impulsion PETAL est de 80 mJ [12] soit un gain d'environ  $10^7$  par rapport à son énergie d'entrée. Également, l'impulsion a désormais une durée de 4,5 ns et une largeur spectrale de 8 nm (changements provoqués par l'interaction avec le faisceau pompe dans les cristaux [17]). La combinaison des techniques OPA et CPA est appelée OPCPA.

**Mise en forme spatiale (MFS) :** l'impulsion PETAL est restée de taille millimétrique jusqu'ici. En sortant du MPA, elle est élargie pour atteindre une taille de  $37,1 \times 35,6 \text{ cm}^2$  [12]. Un masque de phase est également appliqué pour créer quatre sous-pupilles représentées en Figure 1-6 [12] (nous revenons plus loin sur la nécessité de diviser ainsi le faisceau). Cette étape fait passer l'énergie du faisceau à 60 mJ [12].

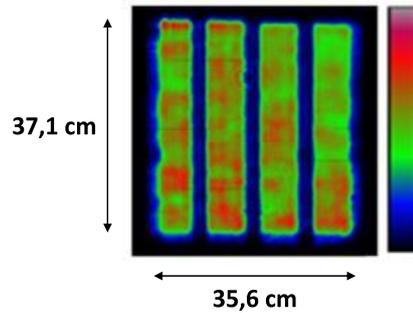


Figure 1-6 : Profil spatial de l'impulsion PETAL après mise en forme spatiale [12]. Il est composé de quatre sous-pupilles en forme de bandes.

**Amplification :** l'ensemble des sections précédentes constitue le « front-end ». Son objectif est de fournir une impulsion qui puisse être correctement amplifiée dans la section principale d'amplification de PETAL qui utilise la même architecture que celle du LMJ [12]. Le faisceau est amplifié par passage dans seize plaques de verre phosphate dopé aux ions néodyme. Plus précisément, le faisceau effectue quatre passages (deux allers-retours, voir Figure 1-7) dans deux groupes de plaques contenant respectivement neuf et sept plaques dont les spectres d'amplification (ou gains spectraux) sont centrés à 1053 ou 1053,4 nm (deux fabricants). Deux types de plaques sont utilisés pour optimiser la largeur de bande spectrale obtenue après amplification [12,17]. En effet, du fait que les gains spectraux ne sont pas homogènes (certaines longueurs d'onde sont plus amplifiées que d'autres), l'impulsion voit sa largeur spectrale diminuer au cours de l'amplification (on parle de rétrécissement spectral par le gain). La section amplificatrice peut délivrer une énergie supérieure à 6 kJ [12]. Également, la largeur spectrale est typiquement de 3 nm et la durée d'impulsion d'environ 2 ns après amplification [12].

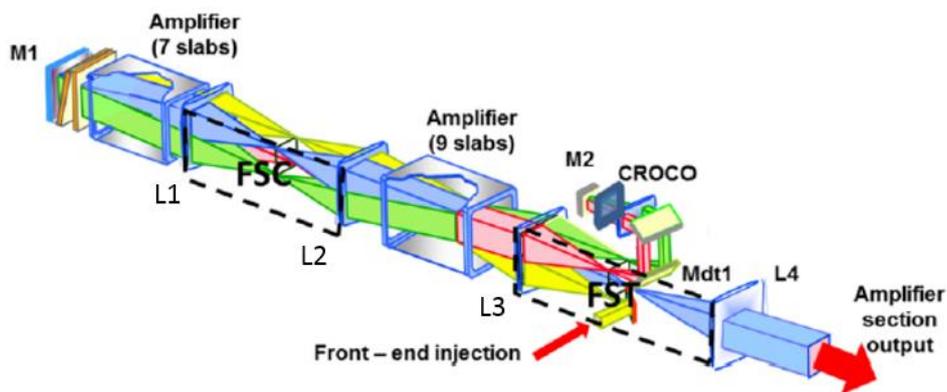


Figure 1-7 : Schéma de la section d'amplification de PETAL, identique à celle du LMJ [12]. L'impulsion PETAL est d'abord injectée via le front-end puis effectue quatre passages (deux allers-retours via le miroir Mdt1) dans les 9 + 7 plaques de verre phosphate dopé néodyme (1<sup>er</sup> passage en jaune, 2<sup>ème</sup> en rouge, 3<sup>ème</sup> en vert et 4<sup>ème</sup> en bleu). Le miroir M1 est un miroir déformable pour corriger le front de phase du faisceau. CROCO est un système combinant une lentille de Fresnel et une lentille divergente afin de corriger les aberrations chromatiques longitudinales provoquées par les lentilles L<sub>1</sub> à L<sub>4</sub> (focalisation des différentes longueurs d'onde à différents endroits sur l'axe optique du fait du caractère dispersif des lentilles entraînant un allongement de la durée d'impulsion). FST et FSC sont des trous de filtrages spatiaux (Filtrage Spatial Transport et Filtrage Spatial Cavité) afin d'éliminer les plus hautes fréquences spatiales du profil synonymes de fortes modulations d'intensité. Le faisceau quitte la section amplificatrice via la lentille L<sub>4</sub> qui le collimate.

**Compression temporelle :** cette étape a pour objectif de comprimer l'impulsion jusqu'à sa plus petite durée possible. Le compresseur en charge de cette étape doit ainsi compenser exactement l'éirement provoqué par le triplet d'Öffner précédent c'est-à-dire remettre en phase toutes les composantes spectrales. Puisque pour PETAL, l'étireur est un système à dispersion positive, le compresseur est donc à dispersion négative. Son principe est illustré en Figure 1-8 [22].

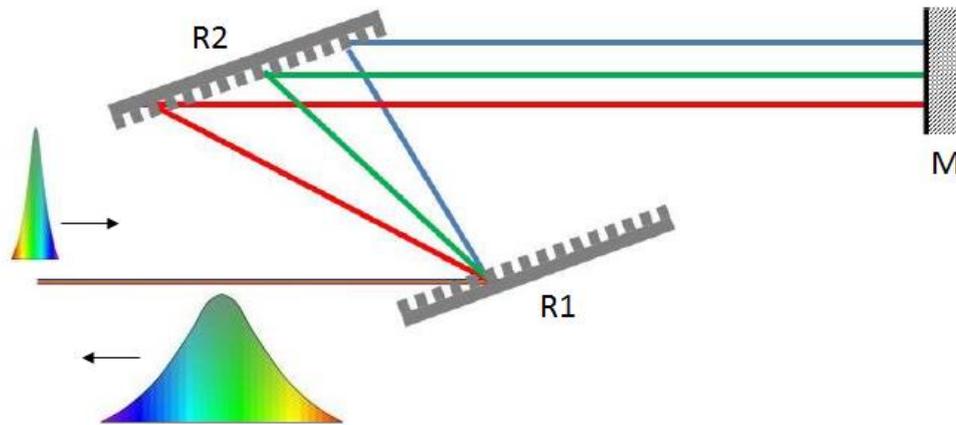


Figure 1-8 : Système à dispersion négative utilisé comme compresseur pour PETAL [22]. Les réseaux de ce dispositif sont à ce titre appelés réseaux de compression. En sortie, les plus grandes longueurs d'onde sont en retard sur les plus petites. Dans le cas de PETAL, l'impulsion d'entrée est déjà étirée temporellement avec les plus petites longueurs d'onde en retard sur les plus grandes (retard ainsi compensé par ce système).

L'impulsion étirée (bleu en retard sur rouge) est dispersée par un premier réseau en réflexion R1. Le faisceau diffracté est collimaté après réflexion sur un deuxième réseau en réflexion R2 (d'après la loi des réseaux en réflexion, équation 1-1, R2 doit être parallèle à R1 pour que les rayons ressortent parallèles entre eux). Comme dans le cas de l'étireur, le faisceau présente à ce stade un défaut de chromatisme latéral. Comme avec l'étireur, un miroir péricopique M fait effectuer un trajet retour équivalent à l'aller mais à une altitude différente (toujours pour ne pas faire repartir l'impulsion d'où elle est arrivée). Dans ce dispositif, chaque longueur d'onde parcourt un trajet d'autant plus long qu'elle est longue. Les différences de chemins optiques sont donc telles que la composante rouge prend du retard sur la composante bleue. Dans le cas de PETAL, cela signifie que toutes les longueurs d'onde sont ainsi revenues en phase en sortie du compresseur et que l'impulsion atteint alors sa durée minimale.

Le compresseur de PETAL fait cependant face à une première contrainte majeure qu'est l'énergie de l'impulsion, très élevée à ce stade. Les intensités et puissances crêtes atteintes au cours de la compression peuvent en effet ioniser l'air (claquage du faisceau) [22]. C'est pourquoi la compression d'une impulsion PETAL se fait d'abord le plus possible sous air puis sous vide comme illustré en Figure 1-9 [12] à la fois pour éviter le claquage du faisceau et limiter le volume à passer sous vide.

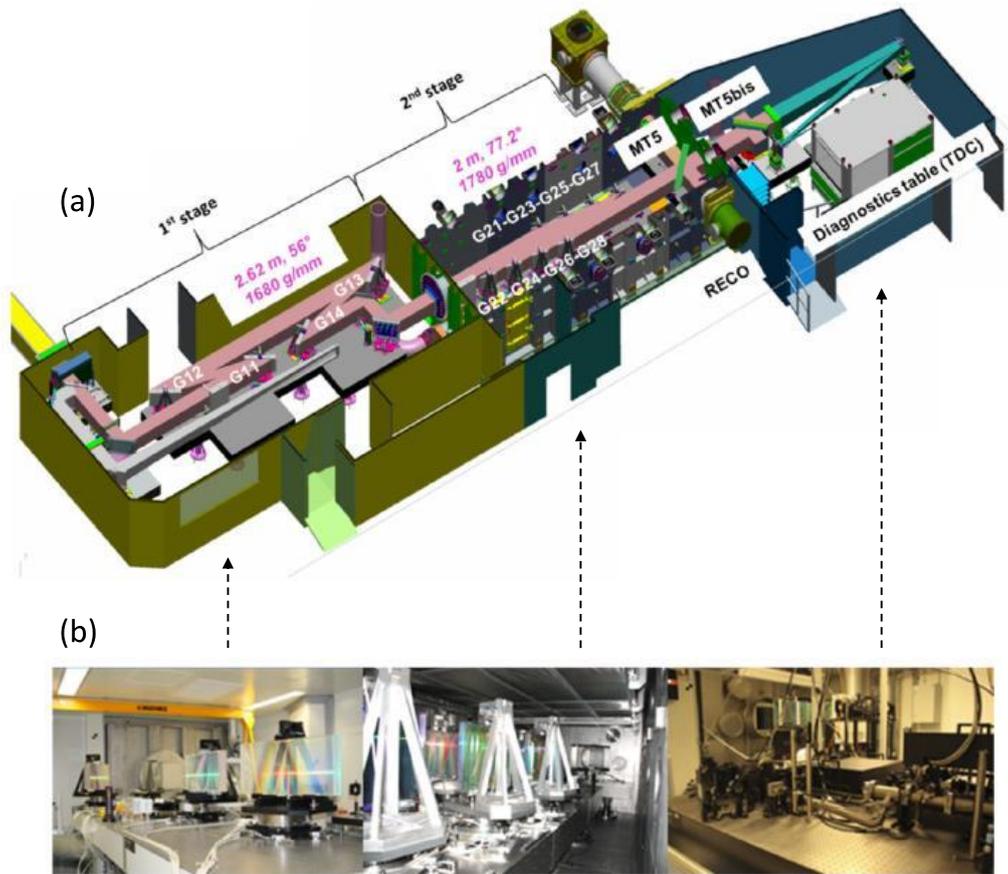


Figure 1-9 : (a) Vue schématisée du compresseur de PETAL composé d'un compresseur sous air puis d'un compresseur sous vide [12]. Une table de diagnostics lasers (TDC) se trouve accolée au compresseur sous vide. (b) Photos de l'intérieur du compresseur sous air (gauche), sous vide (milieu) et de la table de diagnostic (droite) [12].

Le compresseur sous air emploie deux paires de réseaux en réflexion à la suite ce qui revient au double passage dans la Figure 1-8 (la première paire joue le rôle du trajet aller, la deuxième celle du trajet retour). Ces réseaux de compression sous air ont des dimensions de  $83,0 \times 42,0$   $\text{cm}^2$ , fonctionnent à  $56^\circ$  d'incidence, sont séparés de 2,62 m (pour une paire) et possèdent une densité de traits de 1680 traits/mm [12]. Le compresseur sous vide possède quant à lui une architecture différente. En effet, les réseaux de cette section ont été optimisés pour fonctionner à un angle d'incidence de  $77,2^\circ$ . Or, il est technologiquement impossible de construire un unique réseau de taille suffisante à cet angle au vu des dimensions importantes du faisceau ( $37,1 \times 35,6$   $\text{cm}^2$ ). Il faudrait en effet un réseau de longueur 1,80 m [22] alors que la technologie actuelle n'autorise pas plus de 1 m [15]. C'est pourquoi le faisceau PETAL a été au préalable subdivisé en quatre sous-pupilles (avant amplification) afin que chacune soit comprimée indépendamment par une paire de réseaux de tailles réalisables ( $45,0 \times 42,0$   $\text{cm}^2$  [22]). Le compresseur sous vide contient ainsi quatre paires de réseaux de compression à  $77,2^\circ$  d'incidence avec une distance entre réseaux de 2 m et une densité de traits de 1780 traits/mm [12]. Également, le faisceau n'effectue qu'un seul passage dans le compresseur sous vide ce qui le laisse avec un défaut de chromatisme latéral en sortie. Néanmoins, la distance entre réseaux a été spécialement choisie pour limiter cet effet le plus possible [15]. Tout réseau ayant sa propre efficacité de diffraction, le faisceau perd peu à peu en énergie au fur et à mesure de la compression. À ce sujet, l'efficacité de transmission du compresseur sous air est de 81% et celle du compresseur sous vide de 91% [12], soit 74% pour l'ensemble du

compresseur. Enfin, un miroir segmenté situé en entrée du compresseur sous vide aide à additionner de manière cohérente les sous-pupilles en sortie de compresseur [12] (le masque de phase appliqué est adapté à ce miroir segmenté). La synchronisation entre les sous-pupilles (précision à 50 fs [12]) est assurée par des réglages fins de la distance entre réseaux (à 10  $\mu\text{m}$  près typiquement [12]).

En sortie de compresseur, l'impulsion possède une énergie d'environ 3 kJ (spécification actuelle, l'énergie en sortie d'amplification est adaptée pour la respecter). Également la durée d'impulsion est d'environ 400 ps en sortie du compresseur sous air puis d'environ 500 fs en sortie du compresseur sous vide [12]. La durée initiale de 100 fs générée par l'oscillateur ne peut pas être retrouvée à cause du rétrécissement spectral de l'impulsion (à nouveau, la durée minimale d'une impulsion est fondamentalement limitée par sa largeur spectrale comme nous verrons en détail au deuxième chapitre).

Transport et focalisation sous vide: la dernière étape consiste à transporter l'impulsion PETAL depuis la sortie du compresseur sous vide jusqu'en centre chambre. Pour ce faire, l'impulsion est réfléchiée par six miroirs dits de transports depuis le caisson de compression situé au bas de l'installation LMJ-PETAL jusqu'au plan équatorial de la chambre d'expérience (voir Figure 1-4). Le premier d'entre eux situé juste après les réseaux de compression sous vide est appelé miroir MT5 (Figure 1-9(a)). En condition de tir, ce miroir est orienté à 45° d'incidence et possède une réflectivité supérieure à 99,9% en polarisation S mais il peut aussi pivoter pour être placé à 0° d'incidence où il devient transmissif à plus de 90% [22] afin de permettre les diagnostics temporel, spatial, spectral et énergétique de l'impulsion (table de diagnostics en Figure 1-9(a)). La focalisation est quant à elle assurée par réflexion via l'avant-dernier miroir qui est parabolique ( focale de 7,8 m [17]). Un dernier miroir de transport (MT10) permet d'orienter le faisceau vers le centre de la chambre. Enfin, les réflectivités des miroirs de cette section permettent une transmission totale d'environ 98%.

La Figure 1-10 synthétise les propriétés des impulsions PETAL à travers les différentes sections précédemment décrites.

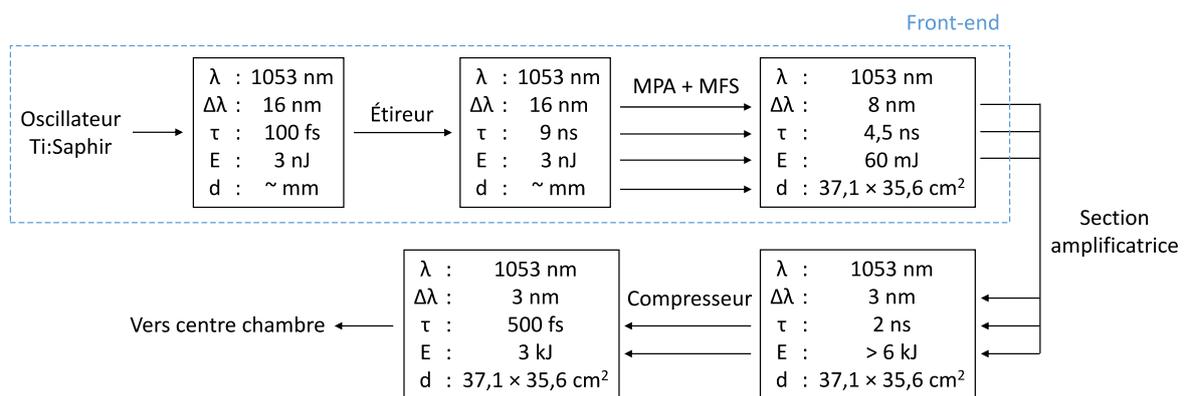


Figure 1-10 : Synthèse du processus de génération d'une impulsion PETAL. Sont représentées les différentes sections de l'architecture de PETAL ainsi que les caractéristiques nominales après chacune d'elles :  $\lambda$  représente la longueur d'onde centrale,  $\Delta\lambda$  la largeur spectrale à mi-hauteur,  $\tau$  la durée d'impulsion, E l'énergie et d la dimension du faisceau. Tout ce qui précède l'amplification constitue le front-end.

### **I.A.3 Performances réelles et spécifications de tenue au flux laser**

PETAL est actuellement limité en énergie en raison du risque d'endommagement laser en fin de chaîne. Les composants les plus à risque sont ceux irradiés par les plus grandes intensités donc ceux situés à partir du caisson de compression sous vide. Plus précisément, on parle de densité surfacique d'énergie à une durée d'impulsion donnée. La densité surfacique d'énergie est appelée fluence ( $\text{J}/\text{cm}^2$ ), elle est généralement exprimée en section droite c'est-à-dire dans un plan normal à la propagation du faisceau (ce sera le cas dans tout ce manuscrit). C'est cette grandeur qui est retenue pour exprimer les spécifications de tenue au flux que doivent respecter les optiques pouvant le plus s'endommager. Actuellement, les spécifications portent ainsi sur les réseaux de compression et les miroirs de transport sous vide : ces composants ne doivent pas s'endommager en dessous de  $4 \text{ J}/\text{cm}^2$  à 500 fs. Cette valeur est issue de la fluence moyenne maximale que peut présenter une impulsion PETAL au niveau du compresseur sous vide ( $3 \text{ kJ}$  répartis sur  $37,1 \times 35,6 \text{ cm}^2$  qui donne environ  $2 \text{ J}/\text{cm}^2$  et  $450 \text{ TW}/\text{cm}^2$  à 500 fs) et pour laquelle ont été prises en compte les modulations d'intensité au sein du profil spatial (visible en Figure 1-6 dès la sortie du front-end, un facteur 2 est appliqué à minima).

Néanmoins, pour une fluence donnée en section droite, la fluence effective sur composant est nettement moindre pour les réseaux de compression que pour les miroirs de transport. Les réseaux fonctionnent en effet à  $77,2^\circ$  d'incidence et les miroirs à  $45^\circ$  (les fluences projetées sur la surface sont environ de  $0,5 \text{ J}/\text{cm}^2$  et de  $1,6 \text{ J}/\text{cm}^2$  respectivement). La surface effective du faisceau sur composant est donc bien plus importante sur réseaux que sur miroirs. C'est la raison principale pour laquelle ce sont ces derniers qui limitent actuellement la montée en énergie de PETAL.

Lors de la première campagne de tirs de 2015, des zones endommagées par laser ont été par exemple observées sur le miroir MT5 (voir Figure 1-11(a) [12]). Dans le cadre de la thèse de Martin Sozet [22], la tenue au flux de ce miroir a été grandement améliorée en modifiant sa structure (gain d'un facteur 2, voir Figure 1-11(b) [12]). Ce miroir n'a plus été endommagé depuis bien que le risque d'endommagement demeure. Tous les miroirs suivants présentent des structures différentes du fait de leur rôle strictement réfléchif (le MT5 est conçu pour être réfléchif à  $45^\circ$  en polarisation S et transmissif à  $0^\circ$ ) et du fait que certains travaillent en polarisation P et d'autres en S. De nouvelles études concernant ces miroirs ont été récemment menées dans le cadre de la thèse de Marine Chorel [23] et ont permis d'identifier de nouvelles structures présentant une meilleure tenue au flux en laboratoire. Cette nouvelle génération de miroirs sera bientôt entièrement implémentée sur PETAL.

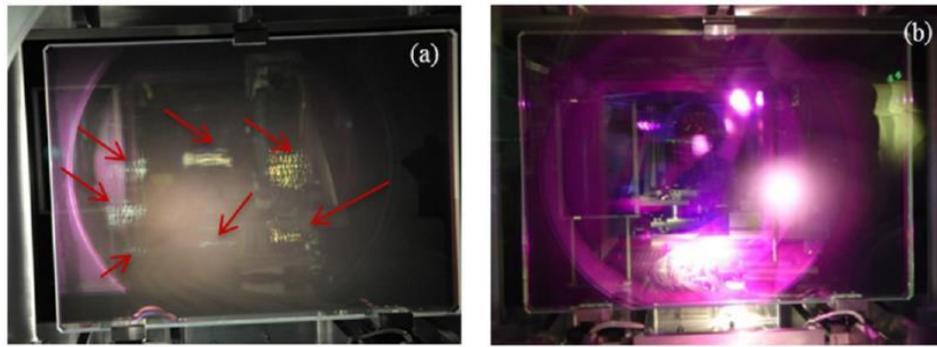


Figure 1-11 : (a) Photo du MT5 après un tir à 572 J et 700 fs en mai 2015 [12]. Un endommagement laser est visible à la surface du miroir (marques blanches indiquées par les flèches rouges). (b) Photo du MT5 nouvelle version après un tir à 1030 J et 1 ps [12]. Aucun endommagement n'est observé.

Depuis la mise en service de PETAL, de nombreux tirs ont été effectués et ont permis, au regard du risque d'endommagement laser, d'identifier un point de fonctionnement autour de 1 kJ d'énergie et 700 fs de durée d'impulsion en sortie de compresseur (soit 1,4 kJ à 2 ns en sortie de section amplificatrice [12]).

Pour accompagner l'exploitation de PETAL et estimer encore mieux ses performances, un appui numérique majeur a également été mis sur pied avec la modélisation de la propagation du faisceau dans toute la chaîne grâce au logiciel Miró (Mathématiques et Informatique pour la Résolution de problèmes d'Optique) [17]. La Figure 1-12 [12] rassemble, à différentes étapes de sa propagation, les acquisitions du profil spatial et les simulations Miró correspondantes de l'impulsion PETAL lors du tir à 1,15 PW.

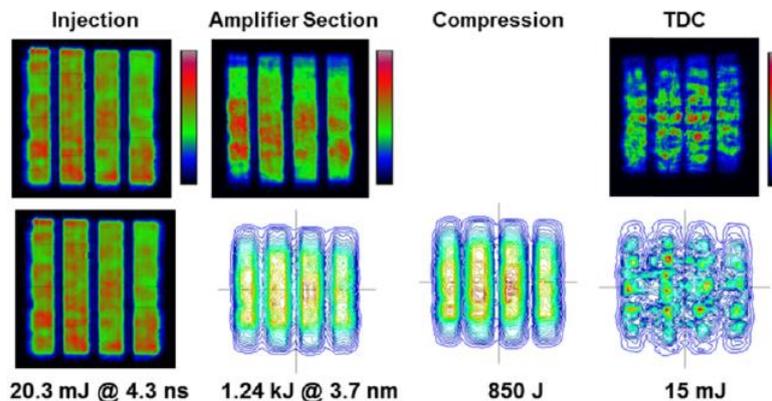


Figure 1-12 : Profil spatial expérimental (en haut) et simulé dans Miró (en bas) du faisceau PETAL lors du tir à 1,15 PW [12]. Une impulsion d'énergie 20,3 mJ et de durée 4,3 ns est d'abord injectée depuis le front-end vers la section amplificatrice. L'impulsion ressort avec une énergie de 1,24 kJ et une largeur spectrale de 3,7 nm (quatorze plaques utilisées au lieu de seize ce qui limite le rétrécissement spectral par le gain) pour finir à 850 J en sortie de compresseur. La table de diagnostics (TDC) reçoit quant à elle 15 mJ d'énergie.

Bien que PETAL ait déjà très nettement progressé en termes de tenue au flux laser, d'autres améliorations restent nécessaires pour atteindre la spécification de 3 kJ en sortie compresseur (et même au-delà si possible au vu de la capacité de la section amplificatrice). L'étude de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes reste donc d'actualité. Dans la suite de ce chapitre, nous décrivons les mécanismes d'endommagement lasers, notamment ceux propres aux irradiations courtes, et revenons sur les différentes études menées précédemment à ce sujet.

## **I.B. L'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde**

La norme ISO 21-154 [24] définit un dommage laser comme toute modification irréversible d'un matériau après irradiation qui soit visible en surface ou en volume à l'aide d'un microscope de type Nomarski. Nous décrivons ci-dessous les mécanismes menant à la formation d'un dommage laser pour des matériaux diélectriques.

### **I.B.1 Mécanismes électroniques en jeu lors de l'interaction entre une impulsion laser et un matériau diélectrique**

Cette section traite du phénomène d'endommagement laser en se basant sur la description en structure de bandes des matériaux (issue de la théorie de la physique quantique des solides) en considérant que ces derniers sont constitués d'un réseau d'ions liés par des électrons. Les bandes en question représentent les intervalles d'énergie autorisés et interdits pour les électrons. La description qui suit de ces bandes permet de comprendre les processus mis en jeu lors d'une irradiation laser mais est simplifiée dans le sens où elle n'est valable que lorsque le matériau se trouve à la température du zéro absolu et qu'on le considère comme un milieu cristallin (les matériaux que nous utiliserons sont amorphes et à température non nulle) :

- Dans le sens des énergies croissantes, la dernière bande énergétique totalement remplie par les électrons est appelée bande de valence (BV). Les électrons qui s'y trouvent sont appelés électrons de valence et sont plus ou moins délocalisés entre les ions (on parle aussi d'électrons liés).
- La première bande autorisée d'énergie supérieure à la BV est appelée bande de conduction (BC) ; elle peut être partiellement remplie ou vide (lire ci-dessous). Les électrons qui s'y trouvent sont appelés électrons libres dans le sens où ils sont complètement délocalisés et sont ainsi plus prompts à se déplacer et donc de générer un courant électrique.
- La BV et la BC sont séparées par une bande d'énergie interdite (dont les niveaux d'énergie sont inaccessibles aux électrons), sa largeur énergétique (appelée gap) étant égale à la différence entre le plus bas niveau en énergie de la BC et le plus haut niveau de celui de la BV.
- L'énergie la plus élevée pouvant être atteinte par les électrons (plus haut niveau énergétique présentant une probabilité d'occupation non nulle) est appelée énergie de Fermi ou niveau de Fermi (ces deux notions ne sont plus équivalentes dès lors que la température est différente du zéro absolu). Ce niveau d'énergie peut se trouver soit dans la bande interdite (il est alors non peuplé en dépit de sa probabilité d'occupation non nulle) soit en dehors (auquel cas il est peuplé).

Cette description permet alors de distinguer trois catégories de matériaux :

- Les isolants (ou diélectriques) pour lesquels le gap est grand (typiquement entre 5 et 10 eV avec  $1 \text{ eV} = 1,6 \times 10^{-19} \text{ J}$ ) et pour lesquels l'énergie de Fermi se trouve dans la bande interdite. La BC est donc vide faisant ainsi du matériau un isolant électrique. Il sera par exemple beaucoup question dans ce manuscrit des matériaux diélectriques

SiO<sub>2</sub> (dioxyde de silicium, plus couramment appelé silice) et HfO<sub>2</sub> (dioxyde d'hafnium) dont les gaps sont respectivement de 7,5 et 5,5 eV [25-26].

- Les conducteurs pour lesquels BC et BV se chevauchent (absence de bande interdite), l'énergie de Fermi se trouvant dans l'intersection. Ces matériaux présentent ainsi naturellement des électrons délocalisés facilitant de fait la mise en place d'un courant électrique. Les métaux sont un exemple très courant de conducteurs (fer, aluminium, cuivre...).
- Les semi-conducteurs pour lesquels il existe une bande interdite comme pour les isolants, à la différence près que le gap est plus petit que pour ces derniers (typiquement de l'ordre de 1 eV). Également comme pour les isolants, l'énergie de Fermi se trouve dans la bande interdite. Le faible gap favorise cependant le déplacement de l'énergie de Fermi de la bande interdite vers la BC par simple élévation de température auquel cas la BC se retrouve alors peuplée conférant ainsi au matériau un caractère conducteur. Nous citerons comme exemple de semi-conducteurs le silicium (énergie de gap de 1,12 eV) et le germanium (0,66 eV), très utilisés dans la conception de diodes en électronique.

La nature d'un matériau conditionne sa capacité à s'endommager sous flux laser. En effet, l'endommagement laser d'un matériau est un cas particulier d'interaction laser-matière, plus précisément d'interaction photon-électron : lors de l'irradiation, des mécanismes d'excitation électronique provoquent un changement de la population électronique du matériau en transformant ses électrons liés (ceux de la BV) en électrons libres (dans la BC) par absorption des photons provenant du laser. Des mécanismes de relaxation électronique interviennent alors pour rétablir l'équilibre énergétique initial. Dans l'idéal, la combinaison de ces mécanismes d'excitation et relaxation électroniques permet au matériau de restituer entièrement l'énergie apportée par le laser. En réalité, cette capacité d'un composant optique à être parfaitement réfléchissant est entravée par le risque d'endommagement laser qui se produit lorsqu'une densité critique d'électrons libres est générée. C'est pourquoi les matériaux diélectriques sont privilégiés dans la conception des lasers de puissance car leurs énergies de gap élevées favorisent le moins possible la génération d'électrons libres. Cependant, nous allons voir dans la suite comment ce type de matériau peut tout de même s'endommager malgré l'apparente impossibilité pour un photon de faire franchir l'énergie de gap à un électron de la BV : comment par exemple est-il possible que le matériau diélectrique SiO<sub>2</sub>, d'énergie de gap 7,5 eV, puisse être endommagé par une impulsion laser à 1054 nm dont chaque photon présente une énergie E de 1,18 eV ? ( $E=hc/\lambda$ , h étant la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide et  $\lambda$  la longueur d'onde)

Dans les prochaines sections, nous revenons notamment sur les mécanismes d'excitation et de relaxation électroniques à l'œuvre lors de l'irradiation laser d'un matériau diélectrique ainsi que sur la notion de densité critique d'électrons libres et les mécanismes menant à l'endommagement proprement dit.

Remarque : les électrons en jeu sont bien ici les électrons de valence dont les énergies de liaison sont de l'ordre de la dizaine d'eV [27]. Les électrons de cœur ne sont pas considérés comme participant au phénomène d'endommagement laser car leurs énergies de liaison sont beaucoup plus importantes, typiquement de l'ordre de la centaine d'eV [27].

### I.B.1.a Mécanismes d'excitation électronique

Le peuplement de la BC se fait à partir de plusieurs mécanismes d'excitation électroniques représentés en Figure 1-13 et décrits ci-dessous par ordre chronologique dans le cas d'irradiations sub-picoseconde ou picoseconde :

- Le premier mécanisme est celui de la photoionisation, c'est-à-dire l'excitation d'un électron de la BV jusqu'au premier niveau de la BC par absorption photonique. Comme indiqué précédemment, le cas de la photoionisation linéaire (un seul photon en jeu) est impossible pour un matériau diélectrique avec un photon à 1054 nm car il ne contient pas suffisamment d'énergie pour faire franchir la bande interdite à un électron de la BV. Il intervient en réalité une photoionisation non-linéaire, rendue possible par les hautes intensités des impulsions lasers et qui se manifeste à travers deux sous-mécanismes que sont l'absorption multi-photonique et l'effet tunnel. L'absorption multi-photonique correspond à l'absorption simultanée [28] de plusieurs photons par un électron de la BV, le cumul des énergies de ces photons lui permettant d'être promu au bas de la BC. L'effet tunnel est quant à lui issu d'une modification de la structure de bande du matériau par le fort champ électrique de l'impulsion, cette modification provoquant la diminution de l'énergie de bande interdite de manière à ce que l'absorption d'un seul photon par un électron de la BV soit suffisante pour le faire passer au premier niveau de la BC. L'absorption multi-photonique et l'effet tunnel sont deux mécanismes en compétition, la prédominance de l'un ou l'autre ayant été formalisée par L. V. Keldysh [29] au moyen d'un paramètre généralement noté  $\gamma$  et appelé paramètre de Keldysh.  $\gamma$  est notamment inversement proportionnel au module du champ électrique [29] ; pour  $\gamma \ll 1$  (fort champ électrique), l'effet tunnel prédomine. Pour  $\gamma \gg 1$  (champ électrique plus faible), l'absorption multi-photonique prédomine. La photoionisation est généralement traduite par un taux électronique en  $m^{-3}.s^{-1}$  (densité électronique générée par photoionisation par unité de temps) noté  $W_{PI}$  dans ce manuscrit et dont on trouvera un exemple d'expression en [30] (que nous reprenons dans le cadre de la première étude du troisième chapitre).
- Les électrons promus au bas de la BC peuvent ensuite continuer à gagner en énergie au sein de cette bande en absorbant séquentiellement des photons de l'impulsion (plusieurs absorptions linéaires à la suite). Ce mécanisme est appelé « inverse Bremsstrahlung » en opposition au processus Bremsstrahlung qui correspond à l'émission de photons lors des collisions entre électrons libres et ions [31]. Le processus inverse Bremsstrahlung est généralement traduit par une probabilité (en  $s^{-1}$ ) d'absorber un photon. Cette dernière est notée  $W_{1ph}$  dans ce manuscrit et nous en donnons un exemple d'expression en annexe 1.
- Les électrons ne peuvent pas être accélérés indéfiniment par processus inverse Bremsstrahlung ; au-delà d'une certaine énergie critique (sur laquelle nous reviendrons au troisième chapitre), ces électrons cèdent par collision une partie de leur énergie à des électrons de la BV de sorte que ces derniers ainsi que ceux ayant perdu en énergie se retrouvent tous au bas de la BC. Ce mécanisme est celui d'ionisation par impact qui, combiné au processus inverse Bremsstrahlung, participe au phénomène dit d'avalanche électronique à travers lequel le nombre d'électrons libres croît de manière exponentielle : un électron subissant l'ionisation par impact

gène deux électrons au bas de la BC qui se retrouvent tous deux accélérés par processus inverse Bremsstrahlung jusqu'à subir à leur tour l'ionisation par impact générant ainsi quatre électrons au bas de la BC etc... L'ionisation par impact se caractérise par un coefficient  $\tilde{\alpha}$  (en  $s^{-1}$ ) correspondant à la probabilité qu'un électron ayant dépassé l'énergie critique entre en collision avec un électron de la BV. Nous donnons un exemple d'expression de ce coefficient en annexe 1.

**Remarque :** il est d'usage de considérer le mécanisme d'ionisation par impact comme un mécanisme d'excitation électronique bien qu'en toute rigueur, ce mécanisme implique aussi une relaxation électronique (un électron perd en énergie tandis qu'un autre en gagne).

Il est important de garder à l'esprit que la chronologie de ces mécanismes telle que présentée ci-dessus n'est valable qu'en début d'irradiation : les processus « inverse Bremsstrahlung » et d'ionisation par impact ne peuvent démarrer qu'une fois que la photoionisation non-linéaire a fourni les premiers électrons libres dans la BC. Passée cette première étape, les mécanismes de photoionisation et d'avalanche électronique ont lieu en parallèle tant que le matériau est irradié. Il est alors plus pertinent de distinguer leurs contributions respectives vis-à-vis de la génération d'électrons libres au cours de l'irradiation et plus précisément de cerner à partir de quelle durée d'impulsion l'avalanche électronique prend le pas en tant que mécanisme exponentiel. Nous apporterons des éléments de réponse sur ce point au troisième chapitre.

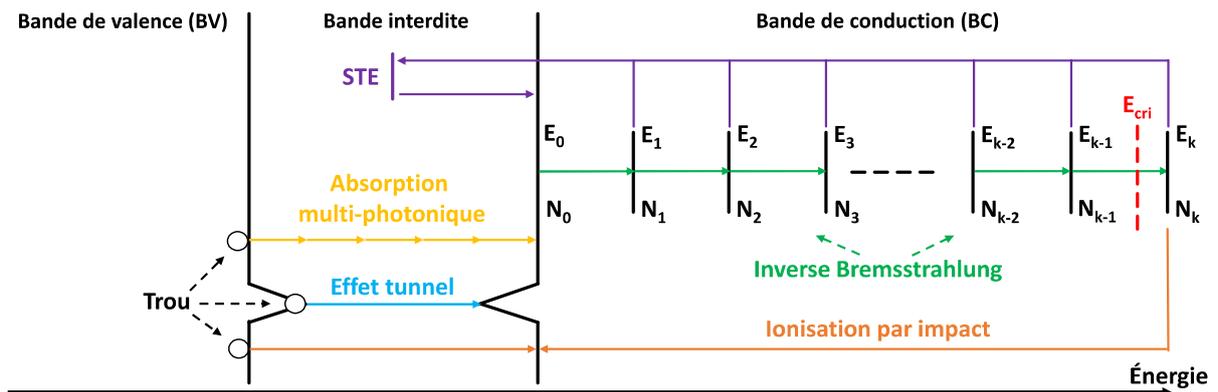


Figure 1-13 : Illustration des mécanismes d'excitation électronique dans un matériau diélectrique (absorption linéaire non représentée). Est également représenté l'un des mécanismes de relaxation électronique, présenté dans la section ci-dessous.  $E_1, E_2, \dots, E_k$  représentent les énergies séquentiellement acquises par un électron libre.

### I.B.1.b Mécanismes de relaxation électronique

Concernant la relaxation électronique, la description des matériaux en structure de bandes permet de distinguer les mécanismes de relaxation intrabande (au sein d'une même bande) et interbande (entre deux bandes).

Pour le cas intrabande (ici la BC), on trouve :

- La relaxation électron-électron : les électrons libres s'échangent de l'énergie. Seule la distribution énergétique des électrons de la BC est ici modifiée ; l'énergie totale contenue dans cette bande (tout comme la densité électronique totale) reste quant à elle constante. Ce processus est caractérisé par un temps de relaxation  $\tau_{e-e}$  dont une expression a été proposée par Christensen et al. [32] à partir d'un modèle classique de

collisions au sein d'un gaz d'électrons libres.  $\tau_{e-e}$  est de l'ordre de la femtoseconde pour  $\text{SiO}_2$  [32-33] et entre 10 et 100 fs dans les métaux [34].

- La relaxation électron-ion : les électrons peuvent perdre en énergie par interaction avec les ions du réseau. Ce processus peut aussi être vu comme collisionnel en assimilant les ions à des particules inertes d'un certain rayon et les électrons à des particules ponctuelles animées d'une certaine vitesse moyenne [35]. Ce mécanisme de relaxation est alors également caractérisé par un temps propre  $\tau_{e-i}$  (également de l'ordre de la femtoseconde pour  $\text{SiO}_2$  [33]). Nous remarquerons que contrairement à la relaxation électron-électron qui implique une conservation de l'énergie électronique (simple redistribution entre les électrons), la relaxation électron-ion implique bien une perte d'énergie pour les électrons (énergie récupérée par les ions). Cette relaxation est à ce titre semblable au processus Bremsstrahlung, mentionné plus haut, à la différence près que pour ce dernier, la perte en énergie de l'électron du fait de la collision avec un ion est compensée par l'émission d'un photon [31]. Des exemples d'expression pour  $\tau_{e-i}$  peuvent être trouvés en [33,36].
- La relaxation électron-phonon : cette relaxation traite également de l'interaction entre les électrons et les ions du réseau mais différemment du cas précédent. Ici, chaque ion n'est pas considéré comme inerte mais comme oscillant autour de sa position d'équilibre créant ainsi des vibrations [27]. Les phonons sont les particules quantifiant ces vibrations (aussi appelés quanta) et qui sont considérées comme entrant en collision avec les électrons. Le temps caractéristique de cette relaxation est de quelques picosecondes à plusieurs dizaines de picosecondes [37] (c'est pourquoi ce type de relaxation n'est souvent pas considéré dans le cas d'impulsions femtosecondes pour lesquelles les ions peuvent être considérés comme immobiles [27]). D'autre part, dans le cas de hautes densités électroniques (proches mais inférieures à la densité critique de plasma), les électrons ont une plus grande probabilité d'entrer en collision avec les ions qu'avec les phonons [28].

Pour les processus interbandes, on trouve :

- La relaxation radiative par recombinaison directe : ce processus se déroule entre la BV et la BC. En considérant le cas de la photoionisation linéaire, chaque électron passant dans la BC par absorption d'un photon laisse un trou dans la BV. L'électron et le trou sont alors en interaction et sont susceptibles de se recombiner selon le processus inverse de l'absorption linéaire [27] : un photon est émis lors de la recombinaison entre l'électron et le trou. Le temps caractéristique de cette relaxation radiative est la nanoseconde [27].
- La relaxation par recombinaison indirecte : ce processus fait intervenir la BV, la BC ainsi que la bande interdite (rappel, nous traitons le cas des diélectriques). En effet, il est possible que des états d'ionisation stables apparaissent au sein de la bande interdite du fait de la présence de défauts dans le matériau (par exemple une impureté ou une lacune électronique) ou de par l'écart de deux ions voisins par rapport à leurs positions d'équilibre causés par un électron et un trou à leur proximité [27]. Ces états intermédiaires sont alors propices au piégeage de charges : soit, pour le cas d'états créés par des défauts, celui d'un trou de la BV (charge positive) ou celui d'un électron de la BC (charge négative) soit celui d'un « exciton » (paire électron-trou en interaction

et à proximité de deux ions voisins) [27]. Pour ce dernier cas, on dit alors qu'il se forme un état STE pour Self Trapped Exciton (exciton auto-piégré). Tout électron piégé dans un état STE peut également être de nouveau excité depuis cet état vers le bas de la BC [38-39] (voir Figure 1-13). Pour l'ensemble des cas décrits ci-dessus, la relaxation d'un électron correspond donc à son piégeage. Le temps caractéristique de ce type de relaxation dépend du matériau ; pour des diélectriques sous forme d'oxydes (SiO<sub>2</sub>, HfO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub> etc...) il a été montré que ce temps varie entre la centaine de femtosecondes et la picoseconde [38]. Pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et le diamant, il a été montré que ce temps est de l'ordre de la centaine de picoseconde [40].

### I.B.1.c Équations de taux et densité électronique critique

#### Équations de taux

Les mécanismes décrits précédemment (illustrés pour la plupart en Figure 1-13) contribuent ainsi à la dynamique électronique au sein de la BC durant l'irradiation laser. L'apport des différents mécanismes est notamment formalisé en termes de taux d'électrons (taux d'électrons générés par photoionisation, par ionisation par impact etc...) si bien qu'on qualifie d'équation de taux toute équation formalisant la dynamique électronique dans la BC. En notant N la densité électronique totale au sein de cette bande, une première équation régissant la dynamique de cette grandeur a été établie par Stuart et al. [41] :

$$\frac{dN}{dt} = W_{PI} + W_{II} = W_{PI} + \tilde{\alpha} \times N$$

Équation 1-2 : Équation de taux utilisée par Stuart et al. [41]. N (en m<sup>-3</sup>) représente la densité électronique totale au sein de la BC, W<sub>PI</sub> le taux de photoionisation (m<sup>-3</sup>.s<sup>-1</sup>), W<sub>II</sub> le taux d'ionisation par impact (m<sup>-3</sup>.s<sup>-1</sup>) et  $\tilde{\alpha}$  la probabilité d'ionisation par impact (s<sup>-1</sup>).

Remarque : N dépend bien entendu du temps (N = N(t)), nous ne représentons pas cette dépendance temporelle par souci de simplification.

L'équation 1-2 est également appelée SRE pour Single Rate Equation (une unique équation à partir de taux électroniques pour décrire la dynamique d'ensemble des électrons). On notera également l'étude de Mero et al. [38] qui reprend et affine l'approche SRE dans le cas de monocouches en y intégrant, à travers un temps effectif  $\tau_{eff}$ , la relaxation par formation de STEs (décrite précédemment) :

$$\frac{dN}{dt} = W_{PI} + \tilde{\alpha} \times N - \frac{N}{\tau_{eff}}$$

Équation 1-3 : Équation de taux utilisée par Mero et al. [38].  $\tau_{eff}$  (s) représente le temps caractéristique (ou effectif) de la relaxation par formation de STEs.

Les deux approches ci-dessus considèrent notamment que tous les électrons de la BC participent au processus d'ionisation par impact (terme correspondant proportionnel à N dans les équations 1-2 et 1-3) ce qui sous-entend qu'ils possèdent tous la même énergie. Or, il a été constaté par Rethfeld et al. [42] que l'approche SRE ne rend plus compte de manière satisfaisante de la dynamique électronique pour des temps d'irradiation très courts (quelques centaines de femtosecondes ou moins). Pour résoudre le problème, Rethfeld et al. [42] ont pris en considération le fait que les électrons libres peuvent avoir des énergies différentes en formalisant le processus inverse Bremsstrahlung (décrit précédemment) par l'introduction de

niveaux virtuels d'énergie, permettant de rendre compte de la distribution d'énergie des électrons dans la BC. Une des conséquences de cette approche est que seuls les électrons ayant dépassé une certaine énergie critique participent au processus d'ionisation par impact ce qui fait aboutir à une nouvelle version de la SRE [42] :

$$\frac{dN}{dt} = W_{PI} + \tilde{\alpha} \times N_k$$

Équation 1-4 : Équation de taux selon l'approche de Rethfeld et al. [42].  $N_k$  désigne la densité d'électrons dont l'énergie est supérieure à une certaine énergie critique  $E_{cri}$  (voir Figure 1-13). Seuls ces électrons participent au processus d'ionisation par impact. Les auteurs n'ont pas considéré la relaxation dans cette étude et l'ont prise en compte lors d'une étude ultérieure [39].

L'équation 1-4 découle en réalité d'un système d'équations différentielles traduisant l'approche appelée MRE (Multiple Rate Equation) de Rethfeld et al. [42] sur laquelle nous reviendrons en détail dans le troisième chapitre.

### Densité électronique critique

Quelle que soit l'approche considérée (SRE ou MRE, avec ou sans relaxation), un point commun à l'étude de la dynamique électronique est de considérer que l'endommagement laser du matériau irradié commence dès qu'une certaine densité électronique critique est atteinte. De nombreuses études [28,33,38,41,43] s'accordent pour assimiler cette densité critique à la densité critique de plasma. En effet, dans le cadre de l'irradiation laser d'un matériau diélectrique par une impulsion suffisamment intense (typiquement  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> [37, 44]), la hausse de la température électronique est telle que le gaz d'électrons libres est à l'état de plasma [37]. On peut définir la pulsation  $\omega_p$  de ce plasma comme suit [35] :

$$\omega_p^2 = \frac{N \times e^2}{\epsilon_0 \times m}$$

Équation 1-5 : Définition de la pulsation d'un plasma [35].

où

$\omega_p$  : pulsation du plasma (s<sup>-1</sup>)

$N$  : densité électronique de la bande de conduction (m<sup>-3</sup>)

$m$  : masse de l'électron ( $m \sim 9,109 \times 10^{-31}$  kg)

$e$  : charge élémentaire ( $e \sim 1,602 \times 10^{-19}$  A.s)

$\epsilon_0$  : permittivité du vide ( $\epsilon_0 \sim 8,854 \times 10^{-12}$  A<sup>2</sup>.s<sup>4</sup>.kg<sup>-1</sup>.m<sup>-3</sup>)

C'est ce plasma d'électrons libres qui rend absorbant le matériau initialement diélectrique. La présence du plasma se traduit en effet par une modification de l'indice de réfraction du matériau : réel avant irradiation, il devient complexe pendant celle-ci, la partie imaginaire traduisant le caractère désormais absorbant du matériau devenu plasma [44]. L'absorption est de plus en plus prononcée au fur et à mesure que la densité électronique augmente (la partie imaginaire de l'indice augmente avec  $\omega_p$  donc avec  $N$  [33]) jusqu'à ce que la pulsation du plasma  $\omega_p$  devienne égale à la pulsation centrale  $\omega_0$  de l'impulsion laser. La partie imaginaire croît alors très fortement ce qui se traduit par un fort couplage de la puissance laser dans le matériau. Il en découle ainsi l'expression suivante pour la densité électronique critique [35] (traduction via l'équation 1-5 du fait que  $\omega_p = \omega_0$  pour  $N = N_{cri}$ ) :

$$N_{\text{cri}} = \frac{\epsilon_0 \times m \times \omega_0^2}{e^2}$$

Équation 1-6 : Expression de la densité électronique critique, assimilée à la densité critique de plasma [35].

À une impulsion centrée à 1054 nm correspond ainsi une densité critique de  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Cet ordre de grandeur est très souvent considéré parmi les études d'endommagement laser [30,38,41,43,45], nous le reprendrons aussi pour la première étude du troisième chapitre.

## I.B.2 De l'excitation électronique à l'endommagement laser du matériau

Atteindre la densité électronique critique ne suffit pas à causer l'endommagement du matériau. Dans le cas d'une impulsion « courte » (typiquement femtoseconde), ce dernier résulte ensuite d'un enchaînement de plusieurs mécanismes au sein de la matière. Ainsi, pour décrire toute la dynamique d'endommagement laser-matière en régime d'impulsions courtes, nous distinguerons deux phases essentielles selon les acteurs concernés : celle dite du dépôt d'énergie (qui concerne laser et matière) puis celle dite de l'endommagement de la matière (qui ne concerne donc que cette dernière). Nous reviendrons plus bas sur le cas d'une irradiation « longue » ainsi que les appellations « courte » et « longue » elles-mêmes.

### I.B.2.a Dépôt d'énergie

Cette phase correspond à l'absorption précédemment décrite de l'impulsion par le plasma d'électrons libres (avant que la densité électronique critique soit atteinte). L'absorption décroît exponentiellement avec la profondeur de pénétration dans le composant [36]. Ainsi, la zone d'absorption est délimitée par la surface irradiée par les plus hautes intensités (là où les électrons sont le plus facilement promus dans la BC ; il s'agit du centre du faisceau si celui-ci est spatialement gaussien) et une profondeur caractéristique d'absorption appelée épaisseur de peau [27]. Cette dernière est inversement proportionnelle à la partie imaginaire de l'indice [33,36] qui, comme expliqué précédemment, augmente au cours de l'irradiation. L'épaisseur de peau diminue donc peu à peu jusqu'à ce que la densité critique soit atteinte où elle atteint alors son minimum qui vaut typiquement une fraction de la longueur d'onde centrale de l'impulsion [36]. L'absorption d'un photon par un électron étant quasi-instantanée ( $< 1 \text{ fs}$  [44]), la durée du dépôt d'énergie n'est alors limitée que par l'atteinte de la densité électronique critique. Elle est ainsi du même ordre de grandeur que celui de la durée d'impulsion [37]. Nous ferons remarquer que le gaz d'électrons libres du plasma peut être décrit par une température électronique  $T_e$  du moment que la durée d'impulsion est suffisamment longue afin que la relaxation électron-électron fasse effet (quelques centaines de femtosecondes suffisent puisque ce temps de relaxation est de l'ordre de la femtoseconde dans des diélectriques [32]). On parle dans ce cas de thermalisation électronique [44].

### I.B.2.b Endommagement de la matière

Cette phase suit celle du dépôt d'énergie et comprend plusieurs étapes, décrites ci-dessous dans l'ordre chronologique.

- La première étape est celle dite de thermalisation de la matière qui correspond au transfert d'énergie entre les électrons du plasma et le réseau d'ions [37] dans la zone d'absorption : il s'agit ici de la relaxation électron-phonon décrite plus haut. La rapidité de ce transfert d'énergie dépend du matériau ; la durée est typiquement de quelques picosecondes et quelques dizaines de picosecondes [37,44]. À l'issue de cette étape, le plasma contient toujours des électrons libres mais de moindre énergie. De manière complémentaire à la température électronique  $T_e$  mentionnée précédemment, on peut définir une température ionique  $T_i$  du réseau d'ions [44] définissant ainsi un système à deux températures dont les évolutions sont régies par un système de deux équations différentielles couplées [44] (on parle de modèle à deux températures). Dans ce modèle,  $T_e > T_i$  pendant la phase de relaxation (système hors-équilibre) puis  $T_e = T_i$  une fois celle-ci terminée [44] ( $T_e$  diminue pendant que  $T_i$  augmente).
- Vient ensuite le changement de phase du matériau : du fait du transfert d'énergie précédent, le réseau ionique situé dans la zone d'absorption chauffe énormément et brusquement (chauffage isochore i.e. à volume constant, caractéristique de l'échauffement d'un matériau solide par une impulsion courte [36]). Il a été montré que cette chauffe n'est pas homogène [36] : la hausse de température est plus importante en surface puisque c'est à ce niveau que l'absorption a été la plus forte lors du dépôt d'énergie. Il se forme ainsi un fort gradient de température dans la zone d'absorption dans le sens de la profondeur. La température à laquelle a été portée la matière conditionne ensuite son évolution [36]. Cette étape de transition de phase est souvent référée comme la fonte du matériau [36-37]. Le temps caractéristique de fonte est d'une centaine de picosecondes pour un matériau déposé en couche mince [37]. Dans le modèle à deux températures mentionné précédemment, la température  $T_i$  à laquelle est portée le réseau d'ions détermine la transition de phase qui a lieu.
- Si suffisamment d'énergie est apportée, une étape supplémentaire est l'ablation (éjection de matière) via l'expansion du plasma désormais composé d'électrons libres et d'ions (grâce à la fonte). Il a été mis en évidence [27,36] que cette expansion peut résulter de deux processus bien que leurs prédominances respectives ne soient pas encore claires : un processus dit thermique et un autre dit électrostatique.
  - Le processus thermique découle directement du gradient de température formé : quelle que soit la température de départ, la matière subit un refroidissement adiabatique (conservation de la chaleur) mais le type de transition de phase subie par la matière dépend de la température de départ [36]. Lorsque l'énergie apportée est très importante, la température atteinte fait passer la matière à l'état vapeur dans un état thermodynamique hors-équilibre (dit métastable [36]). Lors du refroidissement, des bulles à surface liquide et contenant un mélange de phases liquide et vapeur [37] se forment. Les phases liquide et vapeur se séparent alors brusquement (on parle d'explosion de phase [36]) ce qui provoque l'expansion du plasma et donc l'ablation. Le temps caractéristique du refroidissement adiabatique menant à

ce réarrangement de phases est d'une centaine de picosecondes pour un matériau déposé en couche mince [36-37]. Parce qu'elle suppose le transport de particules plus lourdes (celles éjectées), l'ablation dure quant à elle plus longtemps, typiquement plusieurs nanosecondes [37].

- Le processus électrostatique est appelé explosion Coulombienne [27,46]. L'expansion est ici provoquée par la séparation de charges très rapide et très localisée (dans la zone d'absorption) provoquée lors du dépôt d'énergie (électrons d'un côté et ions de l'autre). Cette séparation de charges cause notamment une répulsion entre les ions (la force de Coulomb, répulsive pour des charges de même signe, est plus forte entre ions qu'entre électrons car un ion est environ dix mille fois plus lourd qu'un électron). Le retour à la neutralité électrique est alors assuré par une violente éjection des ions (une des caractéristiques de l'explosion Coulombienne étant que les ions de même charge possèdent des moments cinétiques égaux [46]). La répulsion est effective pendant environ une picoseconde [46], l'ablation durant elle toujours plusieurs nanosecondes [37]. Ce mécanisme d'explosion Coulombienne est d'autant plus présent que le nombre d'irradiations est faible [46]. On montre également que les vitesses d'éjection des ions par ce mécanisme sont du même ordre de grandeur, typiquement plusieurs kilomètres par seconde, que celles mesurées à partir du mécanisme thermique précédent [36].

### I.B.2.c Distinction entre impulsion « courte » et impulsion « longue »

Intéressons-nous plus particulièrement aux durées des étapes de dépôt d'énergie et de thermalisation de la matière. Comme expliqué plus haut, celle du dépôt d'énergie dépend directement de la durée d'impulsion. Or, celle de thermalisation de la matière ne dépend que du matériau (en particulier du couplage électron-phonon). Nous voyons alors que pour un matériau donné, il est possible que selon la durée d'impulsion, le dépôt d'énergie s'effectue avant ou pendant la thermalisation de la matière (auquel cas cette dernière continue tant que de l'énergie est déposée). C'est à partir de ces deux cas de figure que l'on parle respectivement d'une impulsion « courte » ou « longue ». Comme indiqué plus haut, la durée typique de thermalisation de la matière est de quelques picosecondes à quelques dizaines de picosecondes. C'est pourquoi on considère comme « courte » toute impulsion dont la durée est au plus de quelques picosecondes (typiquement une impulsion femtoseconde) et comme « longue » toute impulsion dont la durée est au moins de quelques dizaines de picosecondes (typiquement une impulsion nanoseconde). L'un ou l'autre cas impacte la nature de l'endommagement. Nous discutons ci-dessous le cas d'une irradiation longue en mettant en lumière les différences avec celui de l'irradiation courte.

### I.B.2.d Endommagement sous irradiation longue

Les mécanismes électroniques sont toujours en vigueur pour une impulsion longue. L'unique différence par rapport à une impulsion courte, à même énergie et à même longueur d'onde, est l'intensité plus faible de l'impulsion longue ce qui défavorise la photoionisation. Autrement dit, à énergie constante (ou du même ordre de grandeur), un matériau diélectrique présente une résistance au flux laser de plus en plus forte au fur et à mesure que la durée d'impulsion augmente (et insistons bien, pour une longueur d'onde donnée). Pour les

impulsions courtes, il a été constaté sur les installations lasers de puissance fonctionnant en régime court [12] (comme PETAL qui fonctionne entre 0,5 et 10 ps à 1053 nm) que cette résistance n'est pas suffisante aux intensités et énergies disponibles (de l'ordre du kJ) ce qui nécessite d'étudier précisément la dépendance temporelle de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes (c'est l'objet de cette thèse). En revanche, pour les installations lasers fonctionnant en régime long (comme le LMJ dont les durées d'impulsion peuvent varier entre 1 et 10 ns) et également avec des énergies de l'ordre du kJ (par faisceau), la résistance au flux laser des matériaux diélectriques s'est avérée suffisante pour ne pas craindre un endommagement de leur part directement par des processus intrinsèques tels que décrits précédemment. Il est important de relever que ces installations travaillent à des longueurs d'ondes plus faibles (351 nm typiquement) ce qui augmente d'un côté l'énergie par photon ( $E=hc/\lambda$ ) mais augmente de l'autre la densité électronique critique (équation 1-6).

Cependant, ces installations sont quand-même confrontées à un endommagement qui provient de défauts (impuretés, lacunes électroniques) présents dans les matériaux constitutifs des composants optiques, essentiellement la silice massive [47] sur laquelle se base ci-dessous la description de l'endommagement en régime long. La présence de défauts se traduit par des états d'ionisation autorisés pour les électrons dans la bande interdite. Ainsi, l'endommagement est rendu possible par ces défauts qui facilitent l'atteinte de la densité électronique critique (sans réduire significativement le temps de dépôt d'énergie comparé à celui qu'on aurait dans un matériau pur).

Un dépôt d'énergie (absorption) a donc lieu au niveau du défaut et, par définition d'une irradiation longue, en même temps que la thermalisation du réseau ionique environnant (et comme nous allons le voir, également pendant l'étape de transition de phase et d'ablation). Cet apport plus long d'énergie change fondamentalement le déroulement du scénario d'endommagement : tout d'abord, à la différence d'une irradiation courte où la thermalisation du réseau ionique se fait hors-équilibre, les échanges d'énergie (et donc de chaleur) ont désormais le temps de se faire à l'équilibre thermodynamique [44] (en reprenant la description du modèle à deux températures, on a  $T_e = T_i = T$  très rapidement à l'échelle de temps du dépôt d'énergie, égalité ensuite maintenue jusqu'à l'arrêt du dépôt). Ensuite, et c'est la caractéristique principale de l'endommagement laser en impulsion longue, la durée des échanges de chaleur permet à la diffusion thermique (ou conduction thermique) de faire effet ce qui agrandit la zone d'absorption. On parle dans ce cas de zone affectée thermiquement. La hausse de la température (au fur et à mesure que de l'énergie est apportée par l'impulsion) ne se fait alors plus à volume constant (elle n'est plus isochore comme pour une irradiation courte) ce qui impacte la nature de la transition de phase : le réseau ionique chauffé se retrouve en permanence dans un équilibre liquide/vapeur [36]. Dans le cas de la silice, si la température dépasse 5000K, il se produit le phénomène d'effondrement de bande interdite [47] qui facilite encore plus la génération d'électrons libres ce qui amplifie l'absorption et donc la montée en température (la structure d'une bande interdite dépend de la température [48]). Autre caractéristique propre aux irradiations longues, un front d'absorption remontant dans le sens contraire d'arrivée du faisceau est généré à l'issue de cette nouvelle forte hausse de température [47] (phénomène d'autant plus marqué que le défaut se trouve en profondeur dans le composant). En dépassant 10000K, la silice ionisée passe même à l'état de plasma [47] (on notera que contrairement à une

irradiation courte, la formation d'un plasma n'est ici pas instantanée). C'est l'expansion de ce plasma qui va ablater la matière et causer un endommagement observable [48] ce qui est un point commun avec l'irradiation courte. L'explosion Coulombienne n'a quant à elle pas lieu lors d'une irradiation longue ce qui s'explique par la séparation de charges à la fois plus lente (irradiation plus longue) et surtout plus délocalisée (augmentation de la zone affectée thermiquement par diffusion thermique) qui amoindrit de fait la répulsion entre les ions.

En définitif et contrairement à une irradiation courte, une irradiation longue cause des dommages lasers sensiblement plus grands via la diffusion thermique. La Figure 1-14 propose un comparatif entre un dommage causé en impulsion longue et une autre en impulsion courte [41].

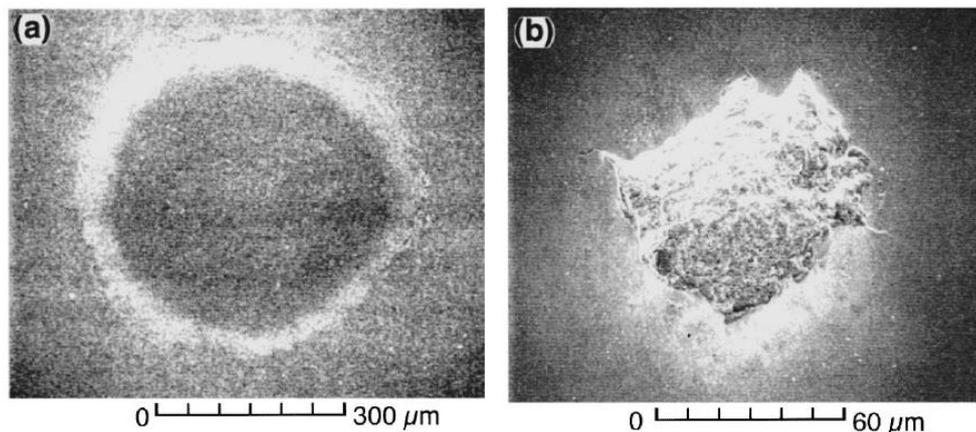


Figure 1-14 : Exemples de dommages amorcés sur de la silice massive avec (a) une impulsion longue de 900 ps avec un faisceau gaussien de 300 µm de diamètre à  $1/e^2$  et (b) une impulsion courte de 400 fs avec un faisceau gaussien de 500 µm de diamètre à  $1/e^2$  [41]. Le dommage est plus grand (en absolu et relativement à la taille du faisceau) dans le cas de l'irradiation longue à cause de la diffusion thermique qui a le temps de s'effectuer pendant l'irradiation. Autre différence liée à la nature des mécanismes d'endommagement, le dommage en (a) apparaît complètement fondu tandis que celui en (b) apparaît ablaté, signature d'une irradiation courte.

### I.B.2.e Endommagement déterministe ou probabiliste

Comme expliqué au paragraphe précédent, l'endommagement en régime long est conditionné par la présence de défauts dans le matériau irradié. La localisation et la nature de ces défauts sont inconnues (bien que la technique dite de photothermie puisse aider à repérer ces défauts en surface [49]). On parle ainsi d'endommagement probabiliste en régime d'impulsions longues. Par opposition, on parle d'endommagement déterministe en régime d'impulsions courtes car dans ce cas, les intensités sont telles que le matériau lui-même conditionne l'endommagement. Néanmoins, nous aurons l'occasion de montrer (au troisième chapitre) en quoi les défauts jouent aussi un rôle en régime court.

### I.B.2.f Endommagement en face avant et/ou face arrière

Pour chaque composant optique, on distingue sa face avant de sa face arrière, la face avant étant la première exposée au laser. La probabilité d'endommager sur l'une ou l'autre de ces faces est grandement conditionnée par l'utilisation en transmission ou en réflexion du composant et ce choix repose en grande partie sur l'intensité de l'impulsion censée l'irradier, donc sur son caractère court ou long. L'intensité laser conditionne en effet l'endommagement à double titre :

- Tout d'abord à travers les mécanismes d'endommagement présentés plus haut qui sont tous issus de la génération d'électrons libres dans le matériau, processus plus facile pour une impulsion courte que pour une impulsion longue. On privilégiera donc au maximum un fonctionnement en réflexion pour des impulsions courtes de manière à limiter au plus l'interaction avec les composants optiques (comme décrit précédemment, PETAL fonctionne entièrement en réflexion en fin de chaîne là où les intensités sont les plus élevées) auquel cas la problématique de l'endommagement ne se pose qu'en face avant. Pour les mêmes raisons, travailler le plus possible en réflexion fait sens pour des impulsions longues. Dans le cas où un fonctionnement en transmission s'avère nécessaire (c'est le cas du LMJ en fin de chaîne), le risque d'endommagement est alors plus important en face arrière qu'en face avant à cause des défauts contenus dans le matériau : les défauts situés en face arrière facilitent en effet plus la progression du front d'absorption que ceux en face avant où l'air stoppe la diffusion thermique grâce à sa très faible conductivité thermique [47]. Le plasma joue aussi un rôle ; en se formant dans l'air en face avant, il écrante le faisceau ce qui conduit à une brûlure de surface. En face arrière, le plasma se forme dans le matériau ce qui conduit à l'éjection de matière.
- Ensuite par rapport aux phénomènes non-linéaires accompagnant nécessairement la propagation d'une impulsion dans un matériau diélectrique. Ces derniers sont d'autant plus marqués que l'intensité est forte et peuvent à ce titre aggraver le risque d'endommagement : nous citerons par exemple l'automodulation de phase (provoquant une modification spectrale et temporelle de l'impulsion [22]) et l'autofocalisation par effet Kerr (qui modifie spatialement l'impulsion [22]). C'est donc également (et même principalement) pour cette raison qu'un fonctionnement en réflexion est privilégié avec des impulsions courtes de manière à limiter le plus possible la propagation dans les composants. Les impulsions longues utilisées en transmission sont moins exposées aux deux non-linéarités précédemment mentionnées (cela ne signifie pas qu'elles ne sont jamais problématiques) mais font tout de même face à d'autres mécanismes non-linéaires tels que l'effet Brillouin (entraînant la formation d'un faisceau additionnel se propageant en sens contraire du faisceau principal et pouvant ainsi causer un endommagement en face avant) et l'effet Raman (résonance en volume entre le composant et l'impulsion causant un endommagement volumique).

Avec des impulsions longues, la problématique de l'endommagement laser se pose donc plutôt pour la face arrière de composants fonctionnant en transmission avec un endommagement probabiliste car principalement conditionné par des défauts dans le composant dont la localisation et la nature sont inconnues. Avec des impulsions courtes, cette problématique se pose plutôt pour la face avant de composants fonctionnant en réflexion avec un endommagement déterministe car principalement conditionné par le ou les matériaux (connus) constitutifs du composant optique. La gravité de l'endommagement dépend directement de l'énergie apportée par le laser et plus exactement de sa fluence. Ainsi, et c'est le cœur même de l'étude de l'endommagement laser, la question est de déterminer à partir de quelle fluence l'endommagement apparaît. Dans le cadre de cette thèse qui concerne les irradiations courtes, ceci va nous conduire à distinguer plusieurs formes d'endommagement laser qui font l'objet des sections suivantes.

## I.B.3 Les différentes formes d'endommagement laser

### I.B.3.a L'endommagement laser intrinsèque

Comme expliqué précédemment, les intensités par nature plus élevées des impulsions courtes exposent directement au risque d'endommagement laser les matériaux constitutifs des composants optiques, mêmes diélectriques. La question est alors de déterminer la fluence seuil à partir de laquelle un matériau donné s'endommage. On parle ainsi d'endommagement intrinsèque dans le sens où il s'agit ici d'un endommagement intrinsèque au matériau. Cette fluence seuil est appelée LIDT pour Laser Induced Damage Threshold. Le caractère déterministe de l'endommagement intrinsèque vient du fait qu'aucun endommagement ne survient si la fluence est inférieure au LIDT et qu'il survient systématiquement si cette dernière lui est supérieure ou égale. La Figure 1-15 donne deux exemples de dommages intrinsèques réalisés sur un miroir diélectrique à 45° d'incidence (pour une fluence tout juste supérieure au LIDT et une autre nettement supérieure).

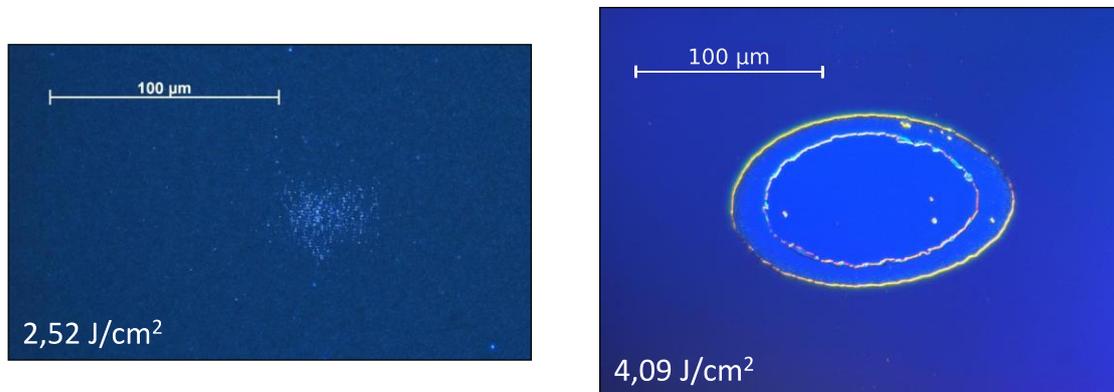


Figure 1-15 : Exemples d'observations au microscope DIC (Differential Interference Contrast) de dommages lasers intrinsèques réalisés à 1054 nm, 800 fs et à 45° d'incidence sur un miroir diélectrique SiO<sub>2</sub>/HfO<sub>2</sub> (la première couche irradiée étant faite de SiO<sub>2</sub>). Le faisceau employé est gaussien (170 µm de diamètre à 1/e) et polarisé P. La nature intrinsèque du dommage se retrouve dans sa morphologie ; seule la partie suffisamment énergétique du faisceau endommage le miroir. La fluence de tir est indiquée en bas à gauche de chaque image. Le LIDT est de 2,47 J/cm<sup>2</sup>.

Il nous faut ici introduire une grandeur essentielle à la compréhension et l'interprétation des phénomènes d'endommagement laser en régime d'impulsions courtes : l'EFI pour Electric Field Intensification. Cette grandeur traduit les modulations du champ électrique subies par l'impulsion dans tout composant diélectrique causant des interférences en son sein ce qui est notamment le cas pour les composants faits à partir de matériaux déposés en couches minces sur substrat : les monocouches (une seule couche mince), les miroirs réfléchissants (empilement de monocouches, très souvent une alternance entre une de SiO<sub>2</sub> et une autre de HfO<sub>2</sub>) et les réseaux diffractifs (très souvent un miroir pour lequel un motif périodique a été gravé sur sa couche en surface). L'EFI se calcule en tout point du composant à partir des différentes contributions des composantes réfléchiées et transmises du champ électrique en ce point du fait de sa propagation à travers les différentes interfaces (ou dioptries) au sein du composant. L'EFI peut se calculer à partir d'un formalisme matriciel prenant en compte la propagation dans chaque couche ainsi que le passage d'une couche à l'autre [22]. L'EFI se définit comme suit [22] :

$$EFI(z) = \frac{|E(z)|^2}{|E_0|^2}$$

Équation 1-7 : Définition de l'EFI. L'axe Oz étant normal à la surface incidente du composant,  $|E(z)|$  désigne la norme du vecteur champ électrique  $E$  à la profondeur  $z$  dans le composant.  $|E_0|$  désigne celle du vecteur champ électrique incident.

L'EFI dépend de la structure du composant (nature, nombre, épaisseurs et indices des couches), de l'impulsion laser (longueur d'onde centrale et polarisation) et de l'angle d'incidence entre l'impulsion et le composant. Un cas particulier se dégage à incidence nulle où, pour un composant et une longueur d'onde donnés, l'EFI est indépendant de la polarisation. Nous donnons en Figure 1-16 deux exemples de calcul de répartition de l'EFI dans une monocouche et un miroir diélectrique.

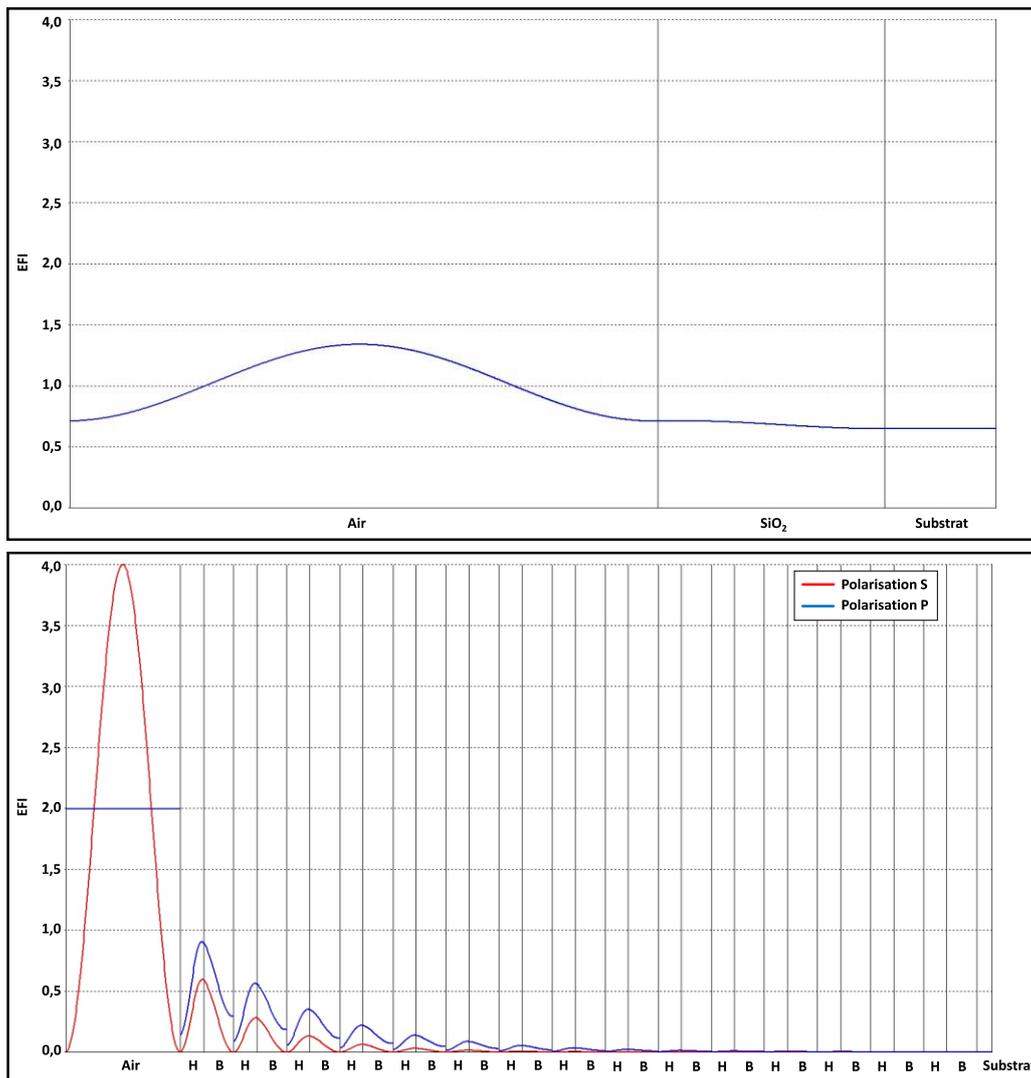


Figure 1-16 : Exemples de répartition de l'EFI dans (a) une monocouche de SiO<sub>2</sub> à incidence nulle (pas de distinction entre les polarisations S et P) et (b) un miroir diélectrique à 45° d'incidence constitués de trente couches alternativement faites de SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub> (respectivement notés B et H). Nous retrouvons deux résultats classiques à savoir que la polarisation S génère des modulations de champ moins importantes que la polarisation P et que cette dernière est caractérisée par des discontinuités de l'EFI. Nous montrons au deuxième chapitre dans le tableau 2-8 comment l'angle d'incidence impacte aussi l'EFI. Les calculs ont été réalisés avec le logiciel TFCalc [50].

Un lien direct a été constaté entre l'endommagement d'un matériau diélectrique et les modulations de champ qu'il provoque : plus ces modulations sont importantes, plus le matériau s'endommage facilement. Plus précisément, il a été constaté que le LIDT d'un matériau est directement associé à la valeur maximale de sa répartition d'EFI (notée  $EFI_{max}$ ) ce qui revient à dire en définitif que la résistance d'un matériau en régime d'impulsions courtes est conditionnée par la plus haute modulation de champ qu'il produit. Également, la localisation de l' $EFI_{max}$  indique l'endroit dans le matériau où l'endommagement aura d'abord lieu : cet endroit n'est pas forcément la surface même du composant irradié comme nous en avons pris le parti pour simplifier lors de la description des mécanismes d'endommagement et comme le montre la Figure 1-16(b) où les plus fortes modulations apparaissent en volume dans les premières couches proches de la surface.

Nous voyons alors en quoi il est possible d'obtenir un seuil de tenue au flux variable pour un même matériau (son LIDT varie avec l' $EFI_{max}$ ). En régime d'impulsions courtes, le LIDT n'est donc pas la grandeur la plus représentative du caractère déterministe de l'endommagement laser intrinsèque d'un matériau donné. C'est pourquoi une autre grandeur, propre à chaque matériau et surtout indépendante de la configuration expérimentale de test, a été définie : la fluence intrinsèque, notée  $F_{int}$ . Cette grandeur, sur laquelle nous nous appuyerons tout au long de ce manuscrit, se définit comme suit [22] :

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

Équation 1-8 : Définition de la fluence intrinsèque d'un matériau ( $F_{int}$ , caractéristique du matériau en  $J/cm^2$ ).  $EFI_{max}$  est la valeur maximale de modulation du champ électrique dans le matériau (dépend de la configuration expérimentale de test) et LIDT est le seuil d'endommagement du matériau (en  $J/cm^2$ ) obtenu dans la configuration expérimentale de test.

$F_{int}$  est caractéristique de tout matériau diélectrique déposé en couche mince ; plus cette grandeur est élevée, plus le matériau présente une résistance élevée au flux laser (les techniques de fabrication des couches minces [22] impactent la valeur de  $F_{int}$  pour un même matériau [25]). Nous voyons ainsi à travers l'équation 1-8 qu'augmenter la tenue au flux d'un composant donné dans une certaine configuration (LIDT) revient à le fabriquer à partir de matériaux intrinsèquement plus solides ( $F_{int}$  plus élevé) et/ou à diminuer les modulations de champ ( $EFI_{max}$  plus faible) en son sein pour sa configuration d'utilisation (déterminée par l'angle d'incidence et la polarisation).

En particulier, la tenue au flux laser d'un miroir diélectrique sera limitée par celle de son matériau le plus fragile : pour un miroir construit à partir de deux matériaux diélectriques A et B, on a d'après l'équation 1-8  $LIDT_{miroir} = \min\left(\frac{F_{int,A}}{EFI_{max,A}}; \frac{F_{int,B}}{EFI_{max,B}}\right)$ . Nous relèverons à ce propos les travaux de Chorel et al. [51] permettant une optimisation de la tenue au flux d'un miroir diélectrique en jouant à la fois sur la nature des matériaux employés ( $F_{int}$ ) et sur l'épaisseur des couches du miroir (valeur et position de l' $EFI_{max}$ ).

**Impact de la polarisation :** illustré en Figure 1-16(b), un changement de polarisation induit un changement d'EFI (et donc de l' $EFI_{max}$ ). Le LIDT dépend donc de la polarisation. Pour les miroirs considérés, on observe qu'une polarisation S est plus favorable qu'une polarisation P en terme de tenue au flux laser ( $LIDT_S > LIDT_P$  car  $EFI_{max,S} < EFI_{max,P}$  très souvent).

**Impacts de la bande interdite et l'indice :** de par la largeur de leurs bandes interdites, les matériaux diélectriques sont naturellement privilégiés pour améliorer la résistance au flux laser des composants optiques. L'étude de Gallais et al. [25] a bien mis en évidence sur des oxydes et fluorures diélectriques que  $F_{\text{int}}$  augmente avec la largeur de bande interdite (résultats reportés en Figure 1-17(a)). Cette même étude montre également que  $F_{\text{int}}$  décroît selon l'indice de réfraction comme reporté en Figure 1-17(b) (mettant par ailleurs en relief la décroissance de la largeur de bande interdite avec l'indice optique pour des diélectriques). Ces résultats illustrent le principal compromis qui doit être trouvé lors de la conception d'optiques pour des chaînes lasers de puissance : les matériaux doivent être choisis de telle sorte que le composant final (miroir très souvent) soit à la fois résistant au flux laser et réfléchif (pour atteindre la cible avec le moins de pertes énergétiques possibles). Or, la réflectivité d'un empilement diélectrique repose en très grande partie sur la différence (ou contraste) d'indices entre ses matériaux constitutifs [22]. C'est la raison pour laquelle les miroirs diélectriques font très souvent intervenir les matériaux  $\text{SiO}_2$  (indice bas et  $F_{\text{int}}$  élevé) et  $\text{HfO}_2$  (indice haut mais  $F_{\text{int}}$  moins élevé, voir Figure 1-17). Les miroirs diélectriques du LMJ et de PETAL sont d'ailleurs conçus pour être d'abord réfléchifs, leur résistance au flux laser étant ensuite améliorée pas à pas [22].

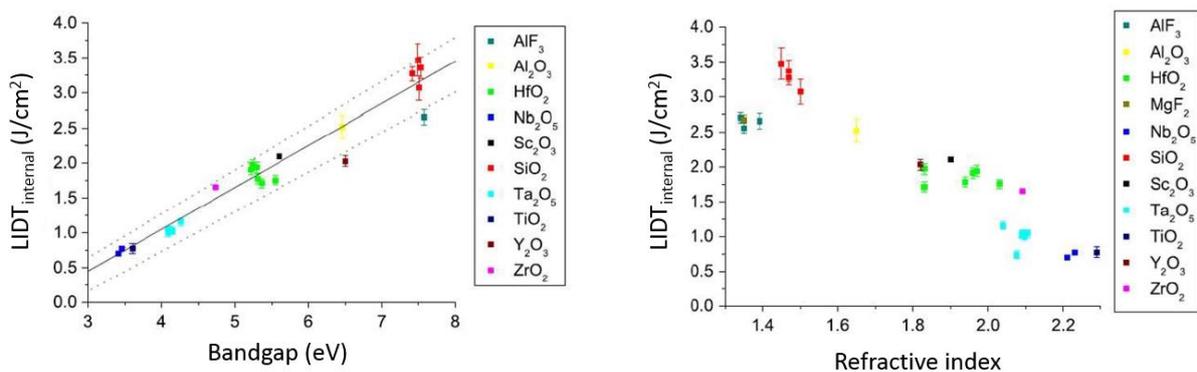


Figure 1-17 : Évolution de la tenue au flux de matériaux diélectriques en fonction de (a) leur énergie de bande interdite et (b) leur indice optique [25]. LIDT<sub>internal</sub> est la fluence intrinsèque  $F_{\text{int}}$ .

**Impact du substrat :** lors de sa thèse, Martin Sozet a également constaté un impact du substrat sur le LIDT et plus généralement sur la morphologie des dommages. La Figure 1-18 [22] rapporte ainsi des observations au microscope DIC de dommages amorcés pour des fluences proches sur deux miroirs fabriqués en même temps et dans le même bâti dont l'unique différence entre eux est le substrat ; BK7 pour l'un et silice fondue pour l'autre.

Les miroirs ont été testés à 45° d'incidence.

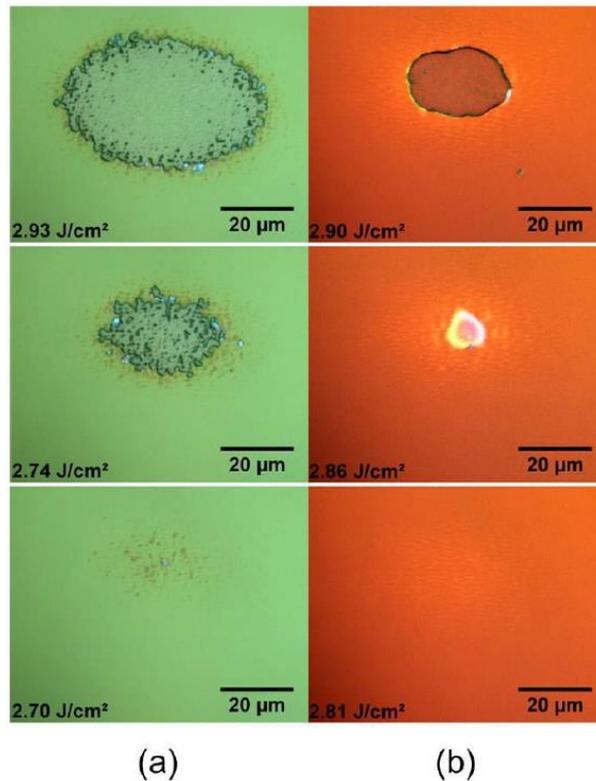


Figure 1-18 : Comparaison de morphologies de dommages pour plusieurs fluences proches (indiquées en bas à gauche de chaque image) sur deux miroirs diélectriques en tout point identiques hormis leur substrat [22]. (a) Substrat en BK7 et (b) substrat en silice fondue. Les valeurs de LIDT des miroirs et les morphologies des dommages ne sont pas les mêmes selon le substrat.

Une piste évoquée pour expliquer ces différences de morphologie est la différence de coefficients de dilatation thermique entre les deux substrats qui sont maintenus à des températures élevées lors du processus de dépôt [22]. Ces différences peuvent engendrer des contraintes mécaniques lors du refroidissement [22].

### I.B.3.b L'endommagement laser sur défauts

Lors de la description des mécanismes d'endommagement, nous avons plusieurs fois mentionné le fait que l'endommagement ne concerne pas seulement le ou les matériaux constitutifs des composants (cas de l'endommagement intrinsèque discuté ci-dessus). L'endommagement peut aussi avoir lieu à partir de défauts présents dans le composant ou à sa surface qui fragilisent alors sa tenue au flux. On parle ainsi d'endommagement sur défauts. Dans ce manuscrit, il sera uniquement question de l'endommagement provoqué par des défauts situés à l'intérieur même du composant (ceux en surface constituent la problématique de la contamination, non abordée dans cette thèse).

L'origine et la nature des défauts situés en volume sont directement liées aux procédés de fabrication des optiques. En particulier, nous considérerons la technique dite de PVD (Physical Vapor Deposition) qui est la plus répandue pour la réalisation d'optiques réfléchives nécessaires à la propagation d'un faisceau laser intense et énergétique. La technique PVD se décline selon plusieurs variantes dont on trouvera une description en [22], nous nous contentons ici d'en donner le principe général : le matériau diélectrique à déposer ( $\text{SiO}_2$  ou  $\text{HfO}_2$  par exemple) est d'abord introduit sous forme de bloc cible au bas d'une enceinte (ou bâti) mise ensuite sous vide. Ce bloc est alors chauffé ou bombardé (très souvent par des

électrons via un canon à électrons) de manière à évaporer ou éjecter le matériau sous forme de molécules suivant un cône d'éjection. Au sommet de l'enceinte se trouve une platine en rotation contenant un certain nombre de substrats (majoritairement fait dans notre cas en BK7 ou silice fondue, également dite amorphe ou encore massive) sur lesquels le matériau se dépose alors peu à peu pour finalement former une couche mince de typiquement quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres d'épaisseur (la vitesse de dépôt est contrôlée, elle est souvent de quelques nanomètres par seconde). Les platines peuvent accueillir un nombre relativement important de substrats (vingt par exemple) ce qui rentabilise la fabrication. L'enceinte contient différents blocs cibles activés soit séquentiellement (pour ne déposer qu'un matériau à la fois) soit en même temps (pour déposer une mixture).

Lors du processus de dépôt, il arrive que le bombardement d'électrons ne parvienne pas à évaporer correctement le bloc cible et qu'une particule nanométrique voire micrométrique (voir Figure 1-19 [52]) soit émise. Cette particule, que nous appellerons particule germe, vient alors se déposer et s'intégrer dans la couche en cours de dépôt puis est recouverte petit à petit jusqu'à l'arrêt du dépôt. Dans le cas du matériau  $\text{HfO}_2$ , une diminution significative de la quantité de particules germes ainsi générées a été obtenue en remplaçant le bloc cible de  $\text{HfO}_2$  par un bloc de Hf (métal hafnium) [52]. Du dioxygène  $\text{O}_2$  est alors introduit dans l'enceinte (pression partielle maintenue constante) pour réagir chimiquement avec le Hf évaporé et former le diélectrique  $\text{HfO}_2$  avant déposition. Ces particules germes proviennent aussi de la saleté même de l'enceinte (enchaînement des dépôts).

Dans ce manuscrit, nous traiterons essentiellement du cas des miroirs diélectriques. Parce que ce type de composant implique de nombreuses couches déposées les unes sur les autres, l'introduction d'une particule germe à une certaine étape du processus de dépôt va engendrer une structure d'autant plus problématique et visible que l'introduction se fait proche du substrat. En effet, la particule germe entraîne une surépaisseur par rapport à l'épaisseur souhaitée pour la couche. Cette surépaisseur va croître au fur et à mesure que d'autres couches sont déposées par-dessus. La structure résultante, typiquement en forme de dôme (voir Figure 1-19), est appelée nodule que nous désignerons également par « défaut précurseur » ou simplement « défaut » par la suite. Les nodules peuvent aussi être directement engendrés à partir des irrégularités de surface du substrat (Stolz et al. [53] ont proposé de gommer ces irrégularités en déposant à même le substrat une couche épaisse de silice, jusqu'à  $6 \mu\text{m}$  d'épaisseur).

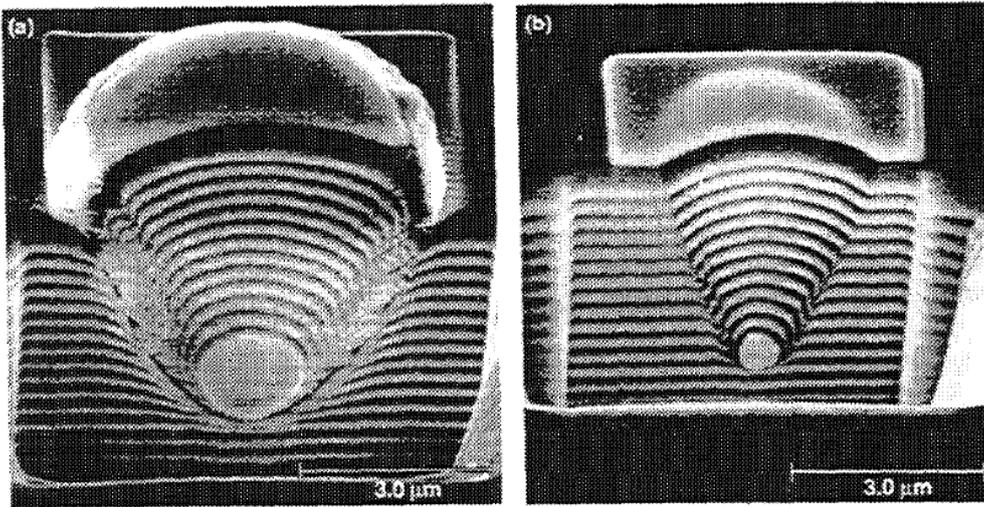


Figure 1-19 : Deux exemples de nodules au sein d'empilements diélectriques  $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$  (respectivement couches sombres et claires) [52]. Le cas (a) présente un nodule initié sur une particule de diamètre important ( $\sim 1500$  nm) et le cas (b) sur une plus petite ( $\sim 600$  nm). Les particules sont ici du  $\text{HfO}_2$  (couleur claire). Les images ont été obtenues à l'aide d'un FIB (Focused Ion Beam) permettant une coupe par bombardement électronique moyennant l'inclinaison du composant. La couche translucide en surface est une couche de palladium pour éviter l'accumulation de charges lors du bombardement.

L'endommagement laser sur défauts est la forme d'endommagement la plus problématique pour les grandes installations lasers travaillant en régime nanoseconde (NIF, LMJ). Du côté des chaînes lasers de puissance travaillant avec des impulsions courtes (sub-picoseconde et/ou picoseconde comme ARC [54] ou PETAL [12]), l'endommagement intrinsèque constitue l'obstacle principal à leur montée en énergie. Néanmoins, il a été montré, notamment par Sozet et al. [55], que des miroirs diélectriques peuvent subir un endommagement sur défauts même en régime court (0,7 ps pour cette étude). Les dommages amorcés présentent alors des caractéristiques sensiblement différentes de ceux amorcés intrinsèquement :

- Une fluence d'amorçage inférieure au LIDT (par exemple dès 20% de celui-ci [22]).
- Une taille en surface plus petite avec une localisation au niveau du défaut précurseur (éjecté si la fluence est assez grande) alors que l'endommagement intrinsèque se produit en tout point du matériau qui est irradié par une fluence (locale) supérieure au LIDT (ce qui dans le cas d'un faisceau gaussien génère des dommages centrés sur le faisceau, voir Figure 1-15).
- Une morphologie très variable car dépendant beaucoup plus du nodule que du faisceau. En effet, un dommage intrinsèque est par nature répétable : pour un composant donné, plusieurs tirs effectués à une même fluence de consigne (supérieure au LIDT) donnent des dommages intrinsèques quasiment identiques (aux fluctuations de fluence près). En revanche, les nodules sont très diversifiés (selon la nature, la taille, la position de la particule germe...) et l'endommagement sur défauts résulte de leur éjection. L'arrachage des couches lors de cette éjection (et en définitif le dommage) est ainsi propre à chaque nodule.

Dans la Figure 1-20 ci-après est rapporté un exemple de dommage amorcé sur défaut observé au microscope à balayage électronique de l'Institut Fresnel (modèle Hitachi TM-1000).

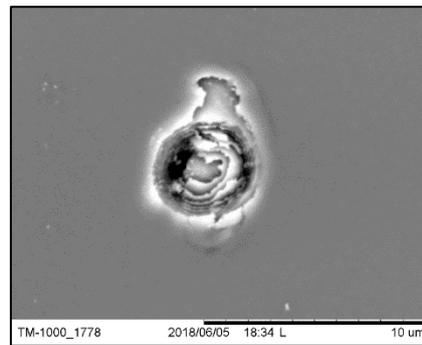


Figure 1-20 : Observation au MEB d'un dommage amorcé sur défaut pour un miroir diélectrique à 1054 nm, 0,8 ps, 45° d'incidence et une polarisation P. Le faisceau utilisé est le même que pour le cas de la Figure 1-15 (gaussien, diamètre de 170 μm à 1/e). Le dommage est très localisé, autour du défaut précurseur. La fluence d'irradiation est de 2,18 J/cm² pour un LIDT de 2,43 J/cm².

Surtout, il a été mis en évidence que les nodules engendrent des modulations de champ nettement supérieures à celles observées dans un miroir parfait : Stolz et al. [56] ont été parmi les premiers à le rapporter dans le cadre d'irradiations nanosecondes (voir Figure 1-21(a)). Gallais et al. [57] ont quant à eux été les premiers à le rapporter pour des irradiations courtes (400 fs) à la fois numériquement via des calculs d'EFI sur nodule (voir Figure 1-21(b)) et expérimentalement sur ces mêmes nodules irradiés à plusieurs fluences inférieures au LIDT du miroir d'étude (où il est constaté que l'éjection du nodule est d'autant plus forte que la fluence d'irradiation est forte).

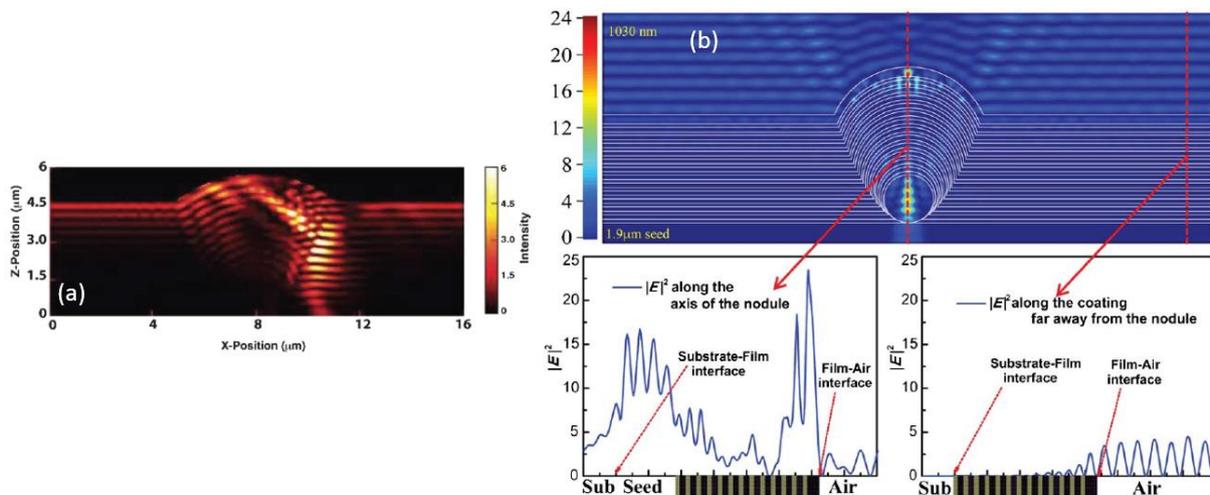


Figure 1-21 : Calculs d'EFI au sein de nodules modèles. (a) Calcul de Stolz et al. [56] à 1053 nm, 45° d'incidence et une polarisation S pour un nodule partant d'une particule de 1 μm de diamètre et réparti sur une dizaine de couches. (b) Calcul de Gallais et al. [57] à 1030 nm et incidence nulle pour un nodule partant d'une particule de 1,9 μm de diamètre et réparti sur une trentaine de couches. Par rapport à un matériau sans défauts, un nodule engendre des surintensifications de champ très importantes (facteur 20 par exemple dans le cas (b)).

Ces fortes surintensifications du champ électrique provoquées par des nodules permettent d'interpréter l'ensemble des caractéristiques propres à l'endommagement sur défauts : une fluence d'amorçage d'autant inférieure au LIDT que les surintensifications sont supérieures à l'EFI<sub>max</sub> du miroir sans nodules et un dommage localisé au niveau de l'emplacement du défaut puisque les fortes modulations de champ qu'il cause rendent le faisceau beaucoup plus intense précisément au niveau du défaut.

La possibilité d'endommager sur défauts même en régime d'irradiation courte impose donc d'adapter la qualification de composants optiques pour grandes chaînes lasers de puissance : en plus de la détermination du LIDT du ou des matériaux constitutifs des optiques, il devient nécessaire de quantifier la qualité de toute optique en estimant au mieux la quantité qu'elle contient de défauts pouvant amorcer des dommages. Ainsi, tout comme dans le régime d'irradiation longue, des densités surfaciques de dommages induits sur défauts en fonction de la fluence d'irradiation sont établies : une certaine surface de composant est irradiée à faible fluence (inférieure au LIDT préalablement déterminé) puis on compte le nombre de dommages amorcés (sur défauts donc) dans cette surface. Le résultat est traduit en densité surfacique de dommages. Sozet et al. [55] ont été les premiers à quantifier de telles densités sur miroirs diélectriques en régime sub-picoseconde (0,7 ps) comme reporté en Figure 1-22.

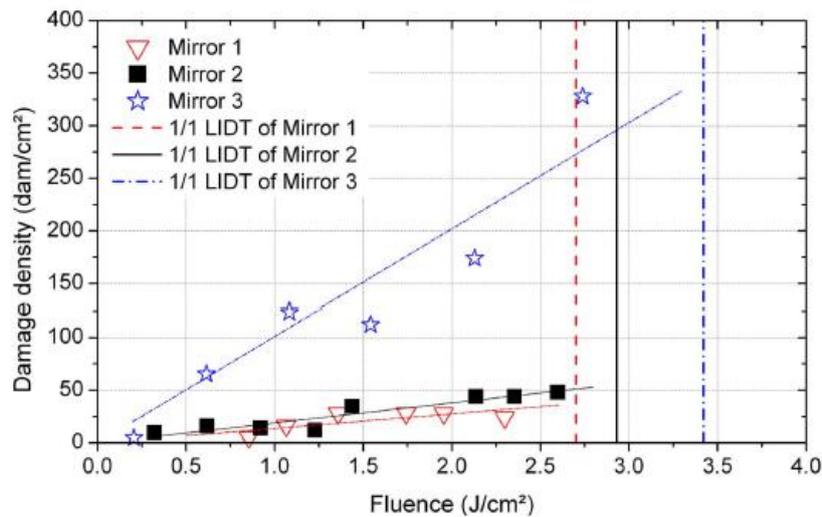


Figure 1-22 : Densités surfaciques de dommages induits sur défauts obtenues sur trois miroirs diélectriques différents à 0,7 ps (45° d'incidence et polarisation P) [55]. Chaque miroir a été fabriqué à partir d'une variante de la technique PVD : le miroir 1 a été conçu à partir d'un procédé de dépôt par évaporation par canon à électrons avec assistance ionique [58] souvent noté e-beam + IAD (Ion Assisted Deposition) et les miroirs 2 et 3 à partir d'un même procédé par évaporation par canon à électrons [59] souvent noté e-beam (ou EBD pour Electron Beam Deposition) mais selon deux fabricants différents. Cette étude illustre bien la possibilité d'endommager sur défauts même pour des fluences faibles de l'ordre de 20% du LIDT ainsi que les niveaux de densités surfaciques pouvant être atteints (qui dépendent fortement de la maîtrise technologique de chaque fabricant d'un procédé donné comme en témoignent les niveaux de densités très différents obtenues entre les miroirs 2 et 3).

Nous reviendrons dans le deuxième chapitre sur les techniques de qualification des optiques soumises à des irradiations courtes (détermination du LIDT comme des densités surfaciques de dommages induits sur défauts).

Phénomènes de fatigue et de conditionnement : ces deux phénomènes ont rapport à la tenue au flux d'une optique lorsqu'elle celle-ci est soumise à plusieurs irradiations. Ils concernent à la fois les phénomènes d'endommagement intrinsèque et sur défaut. En effet, le conditionnement désigne le phénomène par lequel il a été observé qu'un miroir diélectrique présente une tenue au flux plus élevée après avoir été irradié sur toute sa surface à très faible fluence. Une des explications proposée à ce phénomène est que cette irradiation initiale éjecte la plupart des nodules ce qui nettoie le miroir, le rendant ainsi plus pur et donc plus proche de sa résistance propre [52] (LIDT caractéristique de l'endommagement intrinsèque). De manière générale, le conditionnement est utilisé pour nettoyer les optiques de toute

pollution avant expérience (d'où le nom du phénomène ; les optiques sont d'une certaine manière conditionnées avant expérience afin d'augmenter l'énergie disponible pour celle-ci). D'un autre côté, la fatigue désigne la baisse également constatée [22,60-61] du LIDT d'un miroir quand celui-ci est soumis à un nombre élevé d'irradiations (dix, cent, mille...). Une explication courante avancée pour ce phénomène est la création, par les impacts répétés, de défauts dans le miroir [60-61]. Nous aurons l'occasion de revenir sur ce phénomène de fatigue dans le deuxième chapitre.

### I.B.3.c La croissance des dommages lasers

Comme vu précédemment, un dommage peut donc être amorcé soit intrinsèquement soit sur défaut. Se pose alors la question du devenir de ce dommage quand il se retrouve soumis à de nouvelles irradiations puisque le composant sur lequel il est apparu fait généralement partie intégrante d'une chaîne de laser de puissance : il s'agit alors d'étudier ce qu'on appelle la croissance des dommages lasers. Cette forme d'endommagement est la plus problématique pour les grandes installations lasers telles que le LMJ ou PETAL : tout l'enjeu consiste à savoir sous quelles conditions un dommage déjà amorcé va croître et le cas échéant, comment et à quel rythme. De cette manière, il devient possible d'estimer le nombre de tirs que l'optique peut supporter jusqu'à ce que sa fonction optique soit trop altérée par la croissance d'un de ses dommages et qu'il faille alors remplacer l'optique toute entière. Il est dans le plus grand intérêt des installations lasers d'augmenter le plus possible cette espérance de vie de leurs optiques car ces composants coûtent très chers (plusieurs dizaines à centaines de milliers d'euros pièce), la croissance des dommages est ainsi autant une problématique scientifique qu'économique.

L'étude de la croissance des dommages lasers en régime d'impulsions courtes sur des miroirs diélectriques reste relativement récente. Nous rapportons ci-après l'ensemble des résultats obtenus par Martin Sozet durant de sa thèse [22] lors de laquelle une large étude paramétrique de la croissance des dommages a été réalisée (ces études de croissance ont été réalisées à l'Institut Fresnel avec un faisceau spatialement gaussien de 65  $\mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e$  au niveau de l'échantillon).

Probabilité de croissance : face à un dommage amorcé, une première manière d'étudier son comportement en croissance est d'établir la probabilité qu'il croisse. Les variables à l'étude sont ici la nature du dommage initial (amorce) et la fluence à laquelle il est irradié. Plusieurs dommages ont d'abord été amorcés sur défauts à respectivement 30%, 70% et 90% du LIDT du miroir d'étude. Puis, tous ont été irradiés selon la procédure suivante :

- Une première séquence de cent irradiations est effectuée à une fluence de croissance basse valant environ 20% du LIDT.
- Si aucune évolution n'est constatée à l'issue de cette séquence, une nouvelle salve de cent irradiations est effectuée avec une fluence de consigne augmentée d'environ 10% du LIDT. Cette étape est répétée tant qu'aucune évolution du dommage n'est constatée et que la fluence de croissance ne dépasse pas 85% du LIDT.
- Si une évolution du dommage est constatée à l'issue d'une séquence, la procédure s'arrête et le dommage est considéré comme croissant à partir de la fluence de croissance correspondant à la dernière séquence effectuée.

Les paramètres d'étude sont les suivants [22] : la longueur d'onde est de 1053 nm, l'angle d'incidence est de 45°, le faisceau est polarisé P et la durée d'impulsion est de 980 fs. Le miroir est quant à lui issu du procédé de fabrication e-beam et est constitué d'un empilement de couches minces SiO<sub>2</sub>/HfO<sub>2</sub> sur un substrat en silice fondue.

La Figure 1-23 reporte les résultats obtenus [22].

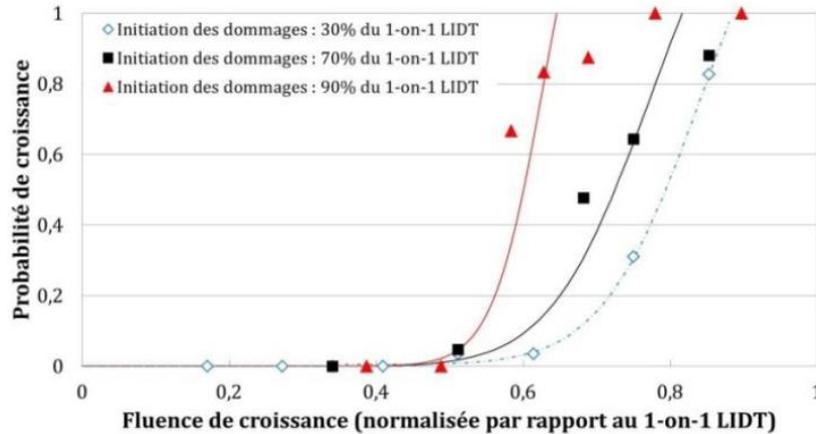


Figure 1-23 : Évolution selon la fluence de la probabilité de croissance pour des dommages amorcés sur défauts à respectivement 30%, 70% et 90% du LIDT à 45° d'incidence et en polarisation P [22]. Les courbes sont un guide pour l'œil.

Deux résultats ressortent :

- La probabilité de croissance est d'autant plus grande que le dommage initial a été amorcé à une fluence élevée et qu'il est irradié à une fluence élevée.
- Il existe une fluence seuil de croissance à environ 50% du LIDT.

Il a été suggéré que le premier résultat peut s'expliquer grâce à des calculs d'EFI réalisés sous COMSOL qui montrent qu'un miroir présentant un dommage uniquement sur sa première couche irradiée (dommage amorcé avec une fluence faible) génère des modulations de champ plus faibles que ce même miroir présentant un dommage profond de plusieurs couches (dommage amorcé avec une fluence forte). Le deuxième résultat s'est quant à lui montré en accord avec l'étude de Gallais et al. [57] où une croissance est aussi observée à partir d'une fluence de croissance valant 50% du LIDT.

Comportement en croissance : une fois établie la probabilité qu'a un dommage de croître, l'étape suivante consiste à étudier tir à tir son comportement en croissance. La surface endommagée apparaît alors naturellement comme une grandeur pertinente pour rendre compte du phénomène de croissance. La variable d'étude est ici la nature de l'amorce. Trois types d'amorce sont ainsi considérés : un dommage amorcé 1) sur défaut (90% du LIDT), 2) intrinsèquement et 3) en fatigue (site initialement vierge).

Les paramètres d'études sont les mêmes que précédemment.

Il a été constaté pour les trois cas que la surface évolue linéairement avec le nombre de tirs [22] :

$$S_N = \beta \times N + S_0$$

Équation 1-9 : Loi de croissance constatée sur miroirs diélectriques pour trois types différents d'amorce [22].  $S_N$  est la surface du dommage (en  $\mu\text{m}^2$ ) après le tir numéro N.  $S_0$  est la surface du dommage initiale ( $\mu\text{m}^2$ ). L'évolution de la surface endommagée apparaît comme une fonction affine du nombre de tirs avec pour pente  $\beta$  ( $\mu\text{m}^2/\text{tir}$ ) appelée par la suite coefficient de croissance.

En plus des notions de probabilité et de seuil de croissance, le phénomène de croissance se caractérise ainsi également par un coefficient de croissance  $\beta$  (exprimé en  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$  pour des faisceaux de tailles micrométriques).

Impact de la fluence : en considérant désormais seulement le coefficient de croissance, la variable d'étude est ici la fluence (dite ici de croissance). En considérant toujours les trois types d'amorces précédentes, la fluence varie entre 40% et 90% du LIDT pour les dommages amorcés sur défauts, entre 40% et 70% du LIDT pour ceux amorcés intrinsèquement et entre 90% et 110% pour ceux en fatigue (le phénomène en lui-même impose d'avoir la fluence d'amorçage égale à la fluence de croissance).

Tous les autres paramètres sont identiques aux cas précédents.

Les résultats sont reportés en Figure 1-24 [22].

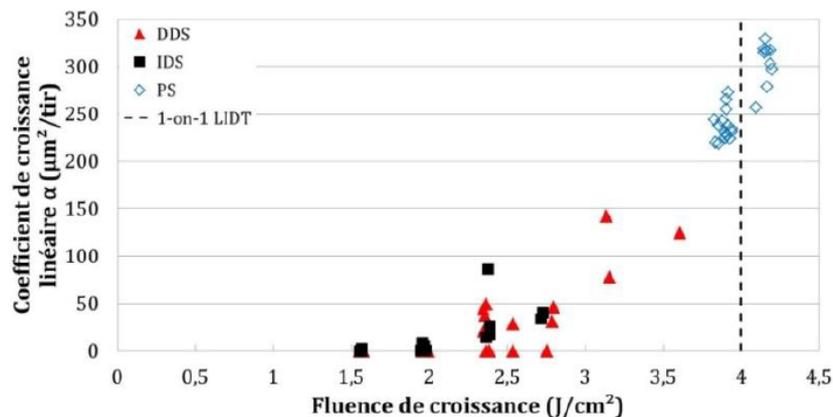


Figure 1-24 : Évolution du coefficient de croissance en fonction de la fluence de croissance pour trois types d'amorce (sur défauts, intrinsèque et en fatigue) [22].

Trois résultats ressortent :

- Le coefficient de croissance augmente avec la fluence.
- Le coefficient de croissance ne dépend pas de la nature de l'amorce.
- Il existe une fluence seuil de croissance à environ 50% du LIDT.

Impact du procédé de fabrication : les précédentes études ont été effectuées sur un même miroir, fabriqué à l'aide du procédé e-beam. Un second miroir fabriqué à partir du procédé e-beam + IAD a été alors testé pour juger de l'impact du procédé de fabrication sur la croissance d'un dommage laser toujours à travers l'évolution du coefficient de croissance avec la fluence (il a été constaté que la croissance reste linéaire pour ce miroir ce qui indique déjà que le comportement en croissance est indépendant du procédé de fabrication). Ce nouveau miroir d'étude diffère également par son substrat (BK7) et le nombre de couches (une couche de  $\text{SiO}_2$  et une de  $\text{HfO}_2$  en moins par rapport au miroir e-beam).

Également, trois autres paramètres changent : la longueur d'onde est de 1030 nm, la durée d'impulsion est de 550 fs et les amorces sont uniquement intrinsèques. Le changement de longueur d'onde n'est pas problématique puisque la réflectivité du miroir (centrée à 1053 nm à 45° d'incidence) est suffisamment large pour être toujours réflectif à 1030 nm (et à 45° d'incidence, ce paramètre ne changeant pas). Le changement de durée d'impulsion implique une modification du LIDT (ce point précis est discuté dans la prochaine section) si bien que les résultats sont présentés avec des fluences normalisées par rapport au LIDT afin de comparer. Le fait de n'avoir que des amorces intrinsèques n'est pas problématique d'après l'étude précédente.

Les résultats sont donnés ci-dessous en Figure 1-25 [22] :

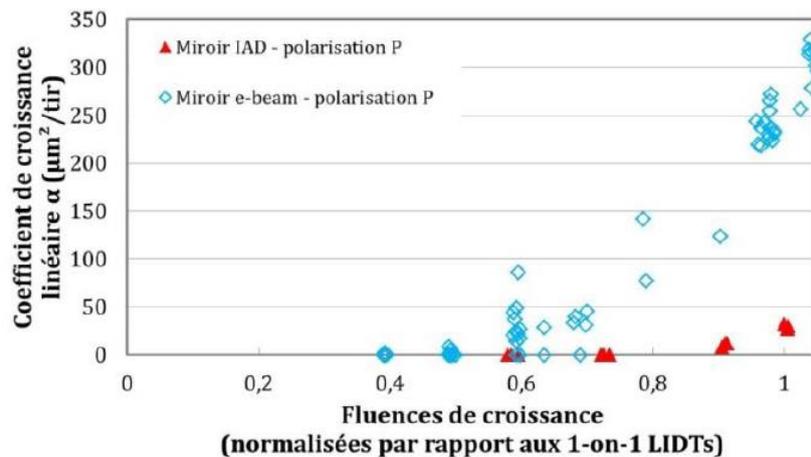


Figure 1-25 : Évolution du coefficient de croissance en fonction de la fluence pour deux miroirs diélectriques fabriqués à partir de procédés différents : e-beam pour l'un (bleu), e-beam + IAD pour l'autre (rouge) [22].

Deux résultats ressortent :

- Le seuil de croissance dépend de la nature du miroir (à ce stade, il n'est pas possible de départager les influences respectives du procédé de dépôt et de la constitution même du miroir). Plus précisément, le seuil de croissance est à environ 80% du LIDT pour le nouveau miroir d'étude (miroir IAD dans la Figure 1-25, le miroir e-beam présentant un seuil de croissance à environ 50% du LIDT).
- Le coefficient de croissance dépend de la nature du miroir (procédé de fabrication et/ou constitution). Plus précisément, on observe que pour une même fluence de croissance (normalisée par rapport au LIDT), le coefficient est plus faible pour le miroir IAD que pour le miroir e-beam.

Impact de la polarisation : toujours à travers l'évolution du coefficient de croissance avec la fluence, l'impact de la polarisation a été étudié sur ce même miroir IAD.

Les autres paramètres sont inchangés par rapport au cas précédent.

Les résultats obtenus donnés ci-après en Figure 1-26 [22].

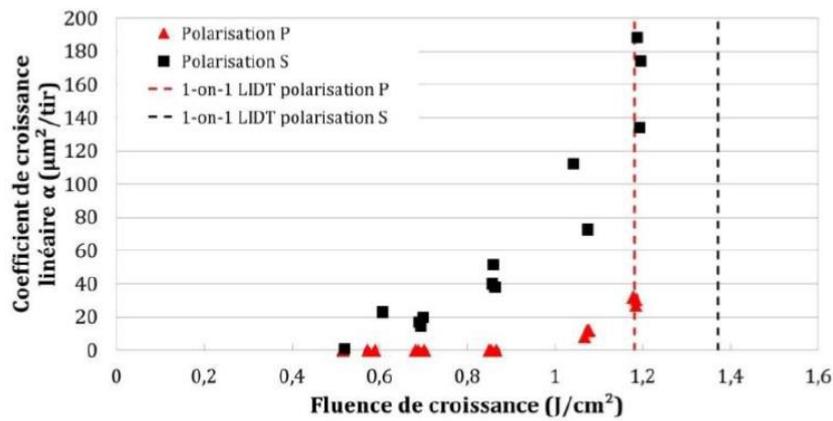


Figure 1-26 : Évolution du coefficient de croissance en fonction de la fluence pour les polarisations S et P sur un même miroir diélectrique [22].

Deux résultats ressortent :

- Le seuil de croissance dépend de la polarisation, un seuil à environ 80% du LIDT étant obtenu en polarisation P (cas précédent) et à environ 40% du LIDT en polarisation S.
- À fluence donnée, le coefficient de croissance est plus important en polarisation S qu'en polarisation P.

Ces résultats indiquent en particulier que, pour ce miroir et dans les conditions opératoires précédemment décrites, la polarisation S est favorable au LIDT mais pas à la croissance. À l'opposé, la polarisation P cause plus facilement un premier endommagement sur le miroir mais inhibe ensuite mieux sa croissance.

Un modèle numérique 2D combinant COMSOL et Matlab a été développé [14] pour reconstruire à partir des modulations de champ l'évolution d'un dommage initialement contenu dans la première couche d'un miroir diélectrique : en assimilant le faisceau à une onde plane d'une certaine fluence, un algorithme itératif permet de calculer l'EFI dans toute la structure avant chaque tir puis, connaissant les fluences intrinsèques des matériaux constitutifs du miroir, d'appliquer localement (pour chaque maille de calcul) l'équation 1-8 afin de déterminer tous les points (en surface) où l'EFI est tel que la fluence d'irradiation est supérieure au LIDT, auquel cas ce point est considéré comme endommagé. Les résultats ont été comparés à des expériences de croissance menées sur des dommages modèles réalisés par FIB (à l'Institut Fresnel). Pour la polarisation P comme pour la polarisation S, un très bon accord a été constaté entre expériences et simulations, confirmant ainsi le rôle central joué par les modulations de champ dans la croissance d'un dommage laser.

**Bilan :** cette étude paramétrique [22] a permis de mettre en évidence plusieurs points clés concernant la croissance d'un dommage sur miroir diélectrique en régime d'impulsions courtes. Tout d'abord, il est possible d'établir une probabilité de croissance selon la fluence d'amorçage et de celle de croissance, probabilité qui augmente avec ces deux grandeurs. Ensuite, un comportement en croissance indépendant de la nature de l'amorce a été mis en évidence : la surface endommagée croît linéairement avec le nombre de tirs quelle que soit la nature de l'amorce. Cette croissance linéaire est caractérisée par un coefficient de croissance (usuellement en  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$ ) qui croît avec la fluence, dépend de la nature du miroir et de la polarisation et est indépendant de la nature de l'amorce. Il existe également un seuil de croissance (en  $\text{J}/\text{cm}^2$ ) inférieur au LIDT et qui dépend de la nature du miroir et de la

polarisation. Enfin, l'évolution de la probabilité de croissance avec la fluence d'amorçage et de croissance tout comme l'impact de la polarisation sur la croissance ont été expliquées à partir des modulations de champ générées par un dommage laser.

Nous complétons cette étude paramétrique dans le quatrième chapitre où sont présentées l'ensemble des expériences de croissance de dommages lasers menées durant cette thèse.

### I.B.4 Dépendance temporelle des phénomènes d'endommagement laser

Dès les années 90 avec l'essor des lasers à impulsions courtes, les premières études de l'endommagement laser en régime court ont vu le jour et ont rapidement constaté [30,41,43,62] une différence dans la dépendance temporelle du LIDT avec la durée d'impulsion par rapport à celle connue en régime long. Cette dernière est caractérisée, en notant  $\tau$  la durée d'impulsion, par une augmentation du LIDT avec la durée d'impulsion selon une loi en  $\sqrt{\tau}$  ce qui découle directement du caractère thermique de ce régime (comme expliqué plus haut). Or, les études précédemment mentionnées ont relevé une déviation par rapport à cette loi pour des impulsions courtes ; le LIDT continue d'augmenter avec la durée d'impulsion mais selon une loi différente avant de converger peu à peu vers la loi en  $\sqrt{\tau}$ . Stuart et al. [41] ont montré (Figure 1-27) que cette transition s'opère vers 10-20 ps pour de la silice fondue.

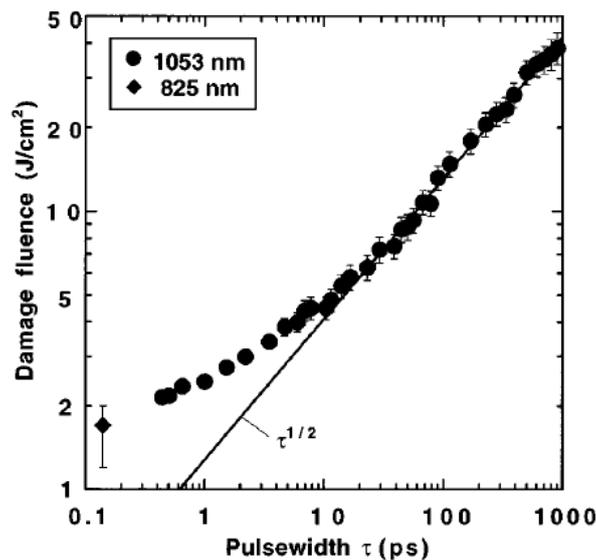


Figure 1-27 : Dépendance temporelle du LIDT d'un échantillon de silice fondue (échantillon d'épaisseur 1 cm) à 1053 nm entre 400 fs et 1 ns (seuil déterminé pour un tir unique, un point de mesure a aussi été réalisé à 825 nm et 140 fs) [41]. Le faisceau utilisé est spatialement et temporellement gaussien. Le LIDT augmente avec la durée d'impulsion ; une déviation de la loi en  $\sqrt{\tau}$  typique du régime d'irradiations longues est observée pour des durées d'impulsions inférieures à 10-20 ps.

Mero et al. [38] ont plus tard également montré une déviation par rapport à la loi en  $\tau^{0,5}$  pour cinq monocouches d'oxydes diélectriques entre 25 fs et 1,3 ps (voir Figure 1-28(a)). La loi d'échelle temporelle du LIDT apparaît varier en  $\tau^k$  avec  $k \sim 0,3$  pour les cinq matériaux (valeurs précises données en Figure 1-28(b)).

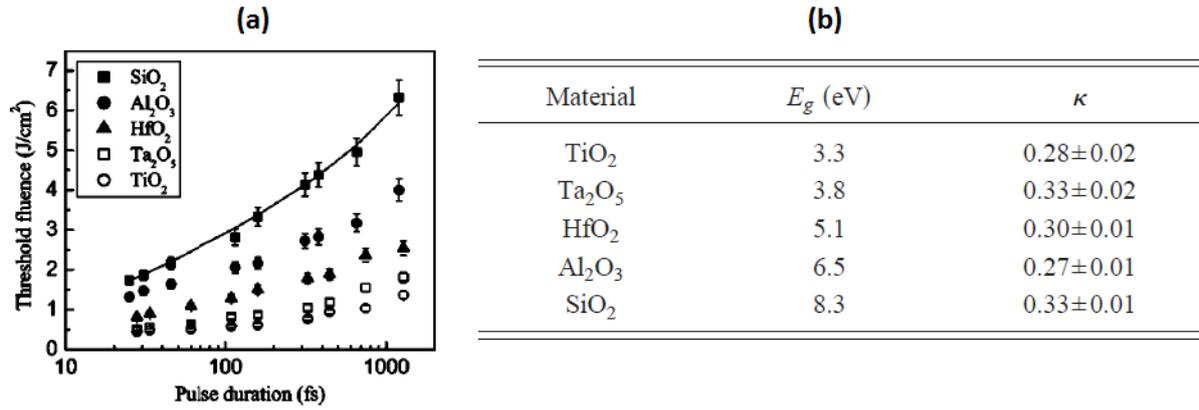


Figure 1-28 : (a) Évolution du LIDT entre 25 fs et 1,3 ps pour cinq monocouches d'oxydes à 800 nm ; dans chaque cas la dépendance temporelle du LIDT est paramétrée par une loi de puissance  $\tau^k$  (visible pour le cas SiO<sub>2</sub>) [38]. (b) Valeurs de l'exposant  $k$  selon les matériaux (sont également donnés leurs énergies de bandes interdites  $E_g$  en eV) [38].

Grâce à cette étude, une expression du LIDT exprimant sa dépendance avec la durée d'impulsion ainsi que l'énergie de bande interdite a été proposée [38] :

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

Équation 1-10 : Expression obtenue par Mero et al. [38] pour exprimer, dans le cas de monocouches d'oxydes diélectriques, la dépendance du LIDT avec la durée d'impulsion  $\tau$  (fs) et l'énergie de bande interdite  $E_g$  (eV).  $c_1 = -0,16 \pm 0,02 \text{ J.cm}^{-2}.\text{fs}^{-k}$  et  $c_2 = 0,074 \pm 0,004 \text{ J.cm}^{-2}.\text{fs}^{-k}.\text{eV}^{-1}$  sont des coefficients indépendants du matériau et de l'impulsion.

Concernant la dépendance temporelle de l'endommagement laser sur défauts, nous mentionnerons les travaux de Negres et al. [63] qui ont étudié la densité surfacique de dommages induits sur défauts pour des miroirs diélectriques à 30 ps (voir Figure 1-29). L'étude en elle-même n'est pas une étude de la dépendance temporelle à proprement parler mais elle peut être comparée à celle de Sozet et al. [55] qui concerne la même problématique à 0,7 ps (donnés en Figure 1-22). Des niveaux de densités similaires sont trouvés même s'il est important de faire remarquer que l'étude de Negres et al. [63] a été réalisée sous vide sur des miroirs SiO<sub>2</sub>/HfO<sub>2</sub> où quelques couches HfO<sub>2</sub> ont été remplacées par du Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et avec une procédure de test légèrement différente de celle employée par Sozet et al. [55]. Nous aurons l'occasion de revenir en détail sur tous ces points dans le troisième chapitre.

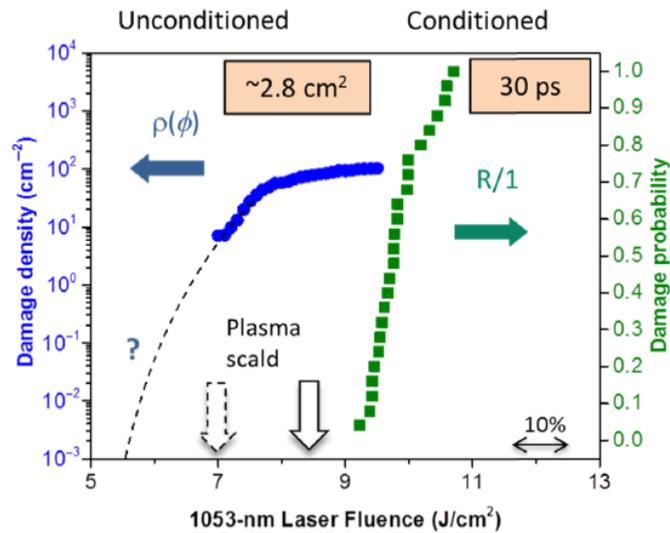


Figure 1-29 : Densités surfaciques de dommages induits sur défauts (courbe bleue pleine) obtenus sous vide à 1053 nm, 50° d'incidence, une polarisation P et 30 ps pour des miroirs diélectriques  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  (fabriqués avec le procédé e-beam) [63]. La surface étudiée est d'environ 2,8 cm<sup>2</sup>. La courbe verte représente des résultats de probabilités d'endommagement intrinsèque obtenus par une procédure appelée R-on-1 que nous décrirons au deuxième chapitre. Ces résultats permettent de sélectionner la fluence à laquelle le miroir est ensuite irradié pour l'étude de l'endommagement sur défauts.

Bien d'autres domaines d'études restent cependant à couvrir concernant la dépendance temporelle de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes en particulier pour des miroirs diélectriques. C'est l'objectif de cette thèse : nous présentons dans le troisième chapitre les premières études de la dépendance temporelle en régime court de l'endommagement intrinsèque et de la densité surfacique de dommages induits sur défauts pour des miroirs diélectriques. La dépendance temporelle de la croissance des dommages lasers sur miroirs est quant à elle abordée dans le quatrième chapitre.

## Conclusion du Chapitre I

Au cours de ce premier chapitre, nous avons présenté le laser PETAL et décrit son architecture lui permettant de délivrer des impulsions Petawatt dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde. Pour générer de telles impulsions lasers, PETAL est façonné autour de la technique CPA qui depuis le début des années 90 a ouvert la voie à la construction de lasers énergétiques courts et intenses [9,18]. Cependant, PETAL doit se limiter en énergie à cause du risque d'endommagement laser sur les composants diélectriques situés en fin de chaîne (surtout les miroirs de transport), là où les intensités sont les plus élevées. Nous avons abordé plus en détail cette problématique de l'endommagement laser sur matériau diélectrique en commençant par détailler les mécanismes propres à l'endommagement en régime d'irradiations courtes, phénomène prenant racine dans plusieurs mécanismes électroniques, puis en distinguant trois formes d'endommagement lasers que sont l'endommagement intrinsèque (à partir des matériaux constitutifs des optiques), l'endommagement sur défauts (à partir de défauts introduits dans les matériaux lors de la fabrication des optiques) et enfin la croissance des dommages qui concerne l'évolution d'un dommage tir à tir (dommage ayant pu être amorcé soit intrinsèquement soit sur défauts). Ces différentes formes d'endommagement lasers ont déjà fait l'objet de nombreuses études dont un état de l'art a été dressé [14,55,63]. Il ressort en particulier que l'endommagement laser en régime d'irradiations courtes est très fortement lié aux modulations du champ électrique au sein des composants optiques. Enfin, nous nous sommes penchés sur la dépendance temporelle de l'endommagement laser qui, historiquement, a démarqué les régimes d'irradiation longue et courte (dépendance en  $\tau^{0,5}$  pour le premier, en  $\tau^k$  avec  $k \sim 0,3$  pour le second,  $\tau$  étant la durée d'impulsion [38,41]) et qui a jusqu'ici surtout suscité des travaux sur monocouches diélectriques pour le régime court. C'est ici que s'inscrit cette thèse dont l'objectif principal est d'étudier la dépendance temporelle de l'endommagement laser de miroirs diélectriques irradiés par des impulsions sub-picoseconde ou picoseconde. Avant de présenter les études menées aux troisième et quatrième chapitres, nous détaillons au deuxième chapitre le banc d'endommagement laser spécialement utilisé pour ces études ainsi que la métrologie mise en place autour de ce banc.

---

## Chapitre II

# Métrologie de l'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde

La métrologie désigne l'ensemble des outils et processus de mesures mis en place pour garantir le plus possible la qualité des mesures effectuées. Dans ce chapitre, nous présentons la métrologie associée à l'étude de l'endommagement laser de matériaux diélectriques dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde. Le support de toute cette métrologie est le banc d'endommagement laser DERIC (Dispositif d'Endommagement en Régime d'Impulsions Courtes) avec lequel l'ensemble des expériences de cette thèse ont été réalisées. Nous commençons par en décrire la source laser avant de donner les caractéristiques des impulsions qu'elle délivre. En particulier, nous nous attardons sur leurs caractéristiques temporelles qui nécessitent l'emploi de deux diagnostics lasers spécifiques. Dans un deuxième temps, nous présentons l'ensemble des procédures de tests pouvant être mises en place sur DERIC selon le type d'endommagement laser à l'étude. Enfin, ce banc a la particularité d'être constitué de deux voies lasers indépendantes que nous décrivons. Elles diffèrent essentiellement de par la nature du profil spatial des impulsions lasers qui s'y propagent : d'un côté celle appelée voie gaussienne (répartition spatiale gaussienne de la densité d'énergie) et de l'autre celle appelée voie top-hat (répartition homogène de la densité d'énergie, dite top-hat). Qualifier DERIC revient ainsi à qualifier ces deux voies ; nous concluons ce chapitre en présentant les tests menés en ce sens, cette étape fondamentale de qualification s'étant déroulée en deux temps : tout d'abord de manière interne avec la qualification de chaque voie qui a permis de démontrer leur équivalence puis, de manière externe, avec la comparaison des résultats obtenus sur ce banc avec ceux obtenus par d'autres laboratoires nationaux et internationaux lors d'une inter-comparaison originale que nous avons initiée.

**Tables des matières du Chapitre II**

<b>II.A</b>	Le banc d'endommagement laser DERIC.....	63
<b>II.A.1</b>	Formation et caractérisation des impulsions lasers.....	64
<b>II.A.1.a</b>	Caractéristiques générales.....	64
<b>II.A.1.b</b>	Caractéristiques spatiales.....	65
<b>II.A.1.c</b>	Caractéristiques spectrales.....	66
<b>II.A.1.d</b>	Caractéristiques temporelles.....	66
<b>II.A.1.d.i</b>	Contraste temporel.....	66
<b>II.A.1.d.ii</b>	Durée d'impulsion estimée par autocorrélation.....	69
<b>II.A.1.d.iii</b>	Profils temporels d'intensité.....	73
<b>II.A.1.d.iv</b>	Plages temporelles.....	78
<b>II.A.2</b>	Voie gaussienne.....	81
<b>II.A.3</b>	Voie top-hat.....	85
<b>II.B</b>	Qualification du banc DERIC.....	92
<b>II.B.1</b>	Méthodes de qualification de composants optiques.....	92
<b>II.B.1.a</b>	1-on-1.....	92
<b>II.B.1.b</b>	Monoshot.....	95
<b>II.B.1.c</b>	S-on-1.....	96
<b>II.B.1.d</b>	R-on-1.....	97
<b>II.B.1.e</b>	Rasterscan.....	97
<b>II.B.1.e.i</b>	Méthodes d'analyse.....	101
<b>II.B.1.e.ii</b>	Résolution du système de détection par diffusion lumineuse.....	105
<b>II.B.2</b>	Comparaison entre les voies gaussienne et top-hat.....	107
<b>II.B.3</b>	Inter-comparaison avec des laboratoires nationaux et internationaux.....	109
<b>II.B.3.a</b>	Principe de l'étude comparative.....	109
<b>II.B.3.b</b>	Résultats expérimentaux.....	110
<b>II.B.3.c</b>	Mesures complémentaires.....	112
<b>II.B.3.d</b>	Bilan de l'inter-comparaison.....	115
	<b>Conclusion du Chapitre II.....</b>	<b>117</b>

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

L'étude de l'endommagement laser sur PETAL est une composante à part entière de son exploitation. Un banc d'endommagement a ainsi été spécifiquement développé au CEA-CESTA pour l'étude de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde et picoseconde : le Dispositif d'Endommagement laser en Régime d'Impulsions Courtes (DERIC). Un synoptique et une photographie de ce banc sont données en Figure 2-1.

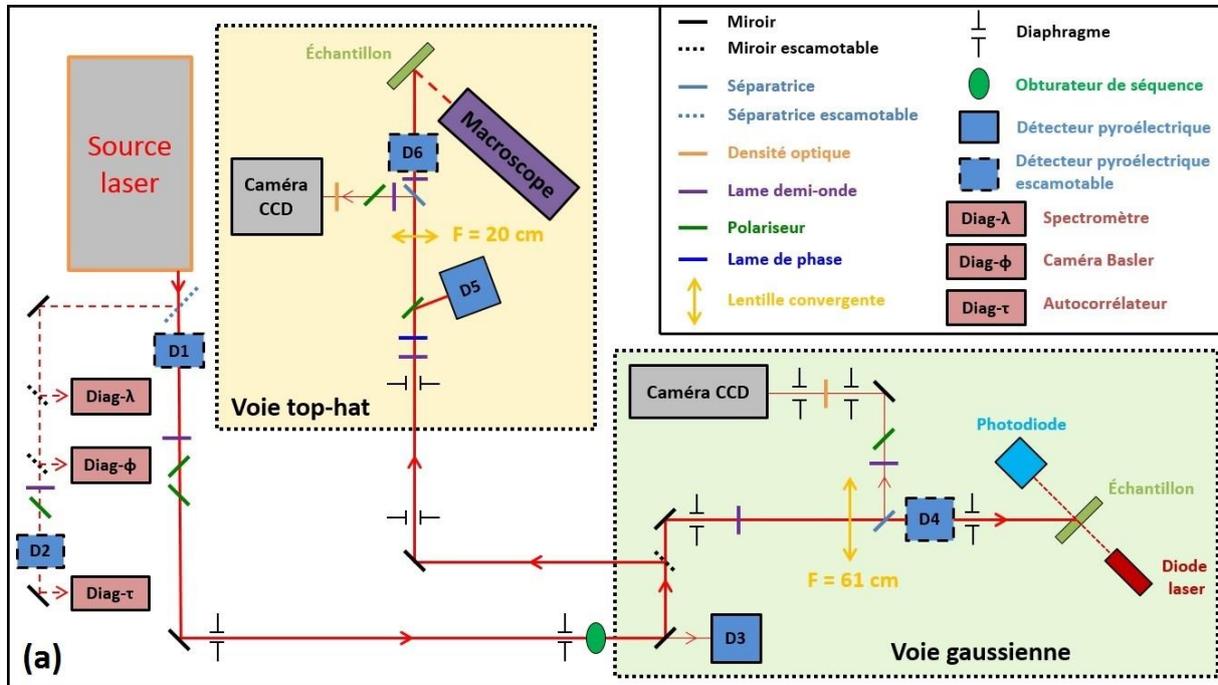


Figure 2-1 : Présentation du banc d'endommagement laser DERIC utilisé durant toute cette thèse. Ce banc a la particularité de posséder deux voies lasers : une voie gaussienne et une voie top-hat.

(a) Synoptique de DERIC. (b) Photographie de DERIC.

## II.A.1 Formation et caractérisation des impulsions lasers

### II.A.1.a Caractéristiques générales

DERIC est équipé d'une source laser commerciale (modèle S-Pulse) fournie par la société Amplitude Systèmes (située à Pessac, 33). Le tableau 2-1 rassemble les principales caractéristiques des impulsions lasers fournies par cette source.

<b>Longueur d'onde centrale</b>	1054 nm
<b>Largeur spectrale à mi-hauteur</b>	2,5 nm
<b>Durée d'impulsion minimale</b>	0,8 ps
<b>Contraste temporel</b>	1 post-impulsion $10^{-4}$ fois moins intense que l'impulsion principale 2 pré-impulsions $10^{-3}$ moins intenses que l'impulsion principale
<b>Énergie en sortie de source</b>	2,1 mJ
<b>Taux de répétition</b>	10 Hz ou 100 Hz

Tableau 2-1 : Caractéristiques des impulsions lasers en sortie de source sur DERIC.

Les impulsions lasers sont générées de la manière suivante :

- Un train d'impulsions à 40 MHz (une impulsion toutes les 25 ns) est d'abord délivré par un oscillateur fibré. Chaque impulsion est centrée à 1054 nm (pour une largeur spectrale à mi-hauteur de 14 nm), dure une centaine de femtosecondes et possède une énergie de quelques nanojoules.
- Ce train d'impulsion passe ensuite dans un cristal appelé modulateur acousto-optique. Traversé par un signal électrique impulsionnel de courte durée et radio-fréquence (RF, 10 Hz ou 100 Hz au choix de l'opérateur), ce cristal voit son indice optique varier périodiquement sur une distance correspondant à la longueur de l'impulsion RF. Ce réseau local d'indice (qui se déplace avec l'impulsion RF) fait que le cristal se comporte alors comme un réseau de diffraction en transmission : toutes les 100 ns ou 10 ms, une dizaine d'impulsions sont prélevées par transmission dans l'ordre 1 (pendant tout le temps où l'impulsion RF croise le train d'impulsions venant de l'oscillateur) tandis que le reste du train initial est transmis et rejeté dans l'ordre 0. Ce système de prélèvement d'impulsions est nommé « Pulse Picker » et fixe ainsi le taux de répétition de la source laser (10 Hz ou 100 Hz). Remarque : sauf indication contraire, les expériences présentées dans ce manuscrit ont été menées à 10 Hz.
- Les impulsions transmises depuis l'ordre 1 sont alors transformées grâce à la technique CPA (présentée au premier chapitre) qui se décompose en trois étapes :
  - 1) Les impulsions passent d'abord dans un étireur dit replié (un réseau associé à un dièdre pour simuler une paire de réseaux) introduisant une dispersion positive à l'aide d'une lentille. Elles sont ainsi temporellement étirées jusqu'à environ 400 ps.
  - 2) L'une de ces impulsions est ensuite injectée dans une cavité amplificatrice régénérative à l'aide d'une cellule de Pockels (les autres sont dirigées vers la section suivante de compression mais peuvent être négligées par la suite puisqu'elles ne sont pas amplifiées). Elle y est amplifiée par passages successifs dans un cristal  $\text{CaF}_2$  dopé à partir d'ions Ytterbium  $\text{Yb}^{3+}$  (notation  $\text{Yb}:\text{CaF}_2$ ) et

pompé par diode laser à 980 nm. Après un nombre de passages fixé, la cellule de Pockels libère l'impulsion dont l'énergie est désormais de 2,2 mJ.

- 3) Enfin, l'impulsion amplifiée passe dans un compresseur lui aussi replié (réseau + dièdre) qui introduit une dispersion négative afin de notamment compenser celle introduite par l'étireur. Le dièdre du compresseur étant monté sur une platine de translation motorisée, sa position est contrôlable par l'opérateur afin de régler la compression. La durée d'impulsion minimale atteignable est d'environ 800 fs. Nous reviendrons dans la section II.A.1.d.iv sur le fonctionnement du dièdre motorisé et sur la gamme dans laquelle la durée d'impulsion varie.

### II.A.1.b Caractéristiques spatiales

La mesure du profil spatial d'intensité (dans un plan perpendiculaire à la propagation du faisceau) est effectuée sur la voie diagnostic (visible en Figure 2-1) à l'aide d'une caméra Basler (modèle 102f). En sortie de source, les impulsions ont un profil spatial quasiment gaussien (voir Figure 2-2) pour un diamètre de 3,25 mm à  $1/e^2$  (où l'intensité vaut  $1/e^2$  fois l'intensité maximale au centre du faisceau).

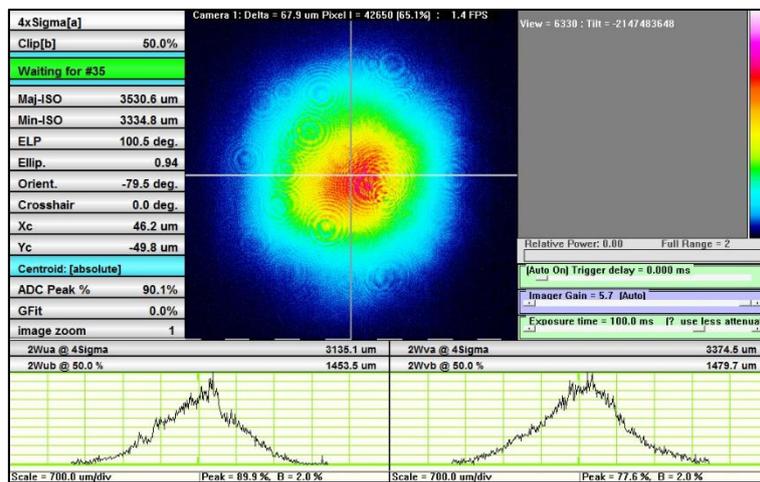


Figure 2-2 : Profil spatial des impulsions lasers de DERIC en sortie de source.

### II.A.1.c Caractéristiques spectrales

Les propriétés spectrales des impulsions sont mesurées grâce à un spectromètre HR4000 de chez Ocean Optics. Les mesures révèlent des impulsions centrées à 1054,4 nm avec une largeur spectrale de 2,5 nm à mi-hauteur. Un exemple d'acquisition du profil spectral est donné en Figure 2-3.

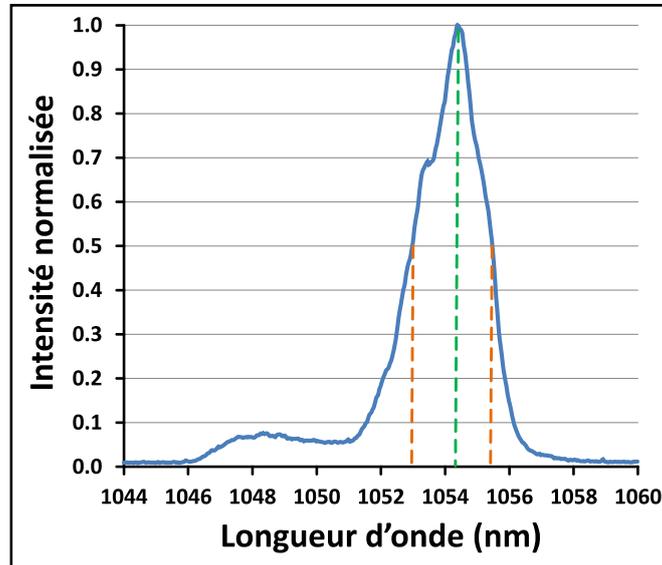


Figure 2-3 : Profil spectral des impulsions lasers de DERIC.

Nous notons la présence d'un pied spectral d'environ 5 nm autour de 1049 nm. Ceci est très probablement dû au cristal  $\text{CaF}_2$  (précédemment mentionné) car son efficacité d'amplification est en réalité maximale autour de 1049,5 nm. Une configuration spéciale est utilisée au sein de la source pour empêcher l'amplification de cette gamme de longueur d'onde et favoriser celle autour de 1054 nm. Nous montrerons en section II.A.1.d.iv en quoi ce pied spectral n'a pas d'impact significatif sur l'aspect temporel des impulsions. En effet, les propriétés spectrales et temporelles d'une impulsion laser sont liées (lien discuté en section II.A.1.d.ii).

### II.A.1.d Caractéristiques temporelles

#### II.A.1.d.i Contraste temporel

Dans le cas de lasers impulsionsnels, il est souvent primordial de savoir si chaque impulsion est accompagnée de pré-impulsions et/ou de post-impulsions. Cela revient à en déterminer le contraste temporel dont la mesure requiert un diagnostic spécifique. Dans le cas de DERIC, la mesure du contraste temporel a été réalisée en 2016 lors de la thèse de Martin Sozet grâce à l'emploi, temporaire, du diagnostic CROSSCO (pour cross-corrélation). Ce dispositif a été développé au CEA-CESTA [22] et sert de manière permanente à mesurer le contraste temporel de PETAL. Son schéma de principe est donné en Figure 2-4.

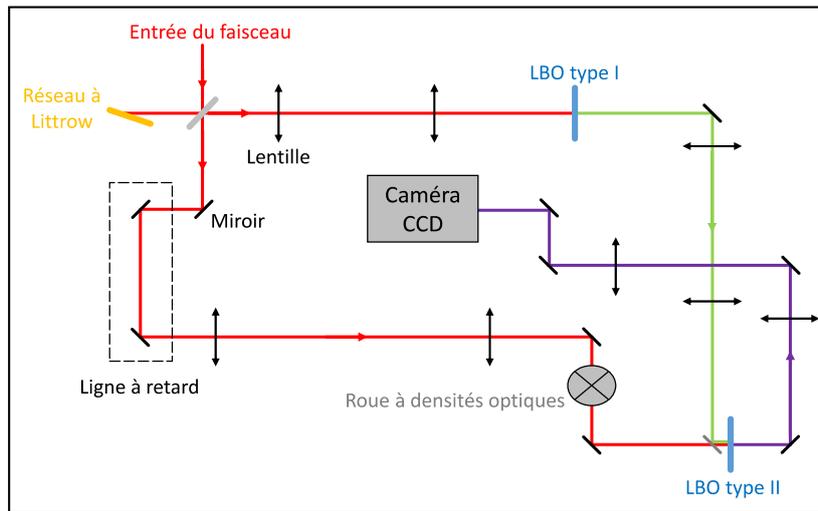


Figure 2-4 : Schéma de principe du diagnostic CROSSCO. Les couleurs rouge, verte et violette correspondent respectivement aux trois premières harmoniques de l'impulsion (1054, 527 et 351 nm).

Ce diagnostic a l'avantage de fonctionner en monocoup (une seule impulsion nécessaire) et mesure le contraste temporel d'une impulsion sur une fenêtre de 45 ps.

En entrée du dispositif, l'impulsion est scindée en deux répliques via une lame séparatrice : une impulsion principale et une impulsion secondaire que nous appellerons respectivement signal et faisceau sonde par la suite. Le faisceau sonde, de dimensions transverses centimétriques, voit son front d'énergie devenir tilté par rapport à son front de phase par un réseau de diffraction fonctionnant en réflexion et placé à l'angle de Littrow (le faisceau émergent ressort dans la même direction que le faisceau incident qui est ici celle du premier ordre de diffraction). Il est ensuite imagé sur un cristal non-linéaire LBO de type I où il est converti par SHG (Second Harmonic Generation) en deuxième harmonique (527 nm, notée  $2\omega$ ) : l'intensité de ce faisceau sonde  $2\omega$  converti étant proportionnelle au carré de celle du faisceau sonde incident (de première harmonique à 1054 nm, notée  $1\omega$ ), cette étape améliore la qualité du faisceau sonde en le rapprochant d'un faisceau de type Dirac car la conversion augmente le contraste entre l'impulsion principale et toute pré/post-impulsion (par exemple, un ratio d'intensité de 10:1 devient un ratio de 100:1). Le contraste sera d'autant meilleur que le faisceau sonde  $1\omega$  au niveau du réseau est bien imagé sur le cristal doubleur (c'est au niveau du réseau que le faisceau sonde  $1\omega$  est, après diffraction, le plus intense car il subit ensuite lors de sa propagation une dispersion qui le déforme temporellement). Le faisceau sonde  $2\omega$  ainsi nettoyé (et au front d'énergie toujours tilté) est ensuite de nouveau imagé sur un second cristal non-linéaire LBO de type II vers lequel est également acheminé le signal  $1\omega$ . Il s'ensuit la génération d'une impulsion de troisième harmonique (351 nm, noté  $3\omega$ ) par THG (Third Harmonic Generation) qui dans ce cas provient de la cross-corrélation entre le signal  $1\omega$  et le faisceau sonde  $2\omega$  : étant fait en sorte que les directions de propagation de ces deux faisceaux fassent un angle entre elles et que la zone de croisement se situe dans le cristal tripleur, le faisceau  $3\omega$  ainsi généré en sortie du cristal se propage selon la bissectrice de cet angle. C'est grâce à ce dernier et au fait que le front d'énergie du faisceau sonde  $2\omega$  soit tilté que l'information temporelle du signal  $1\omega$  est transcrite en information spatiale au sein du faisceau  $3\omega$ . Le contraste temporel apparaît alors en effet selon la direction transverse à celle de propagation du faisceau  $3\omega$  (dans le plan de propagation). La visualisation effective du contraste temporel se fait en imageant sur le capteur d'une caméra CCD le faisceau  $3\omega$  généré

dans le cristal tripleur (en regardant le capteur de face, le contraste temporel apparaît alors dans la direction horizontale). La conversion vers la troisième harmonique est réalisée selon un schéma dit de conversion non colinéaire c'est-à-dire permettant de séparer les faisceaux  $1\omega$  et  $2\omega$  du faisceau  $3\omega$  afin que seul ce dernier soit mesuré par la caméra.

Comme indiqué plus haut, le CROSSCO est capable d'évaluer le contraste temporel sur une fenêtre de 45 ps. Cette fenêtre temporelle est fixée par le retard relatif subit par les extrémités du faisceau sonde  $1\omega$  après la diffraction sur le réseau positionné en entrée de diagnostic. Pour les mêmes raisons déjà évoquées relatives à la dispersion, la résolution temporelle au sein de cette fenêtre sera d'autant meilleure que le faisceau sonde  $2\omega$  généré au niveau du cristal LBO I est bien imagé sur le cristal LBO II. La résolution temporelle du CROSSCO est ainsi typiquement de l'ordre de la picoseconde (un autre élément limitant cette résolution temporelle est la résolution spatiale de la caméra puisque comme expliqué précédemment, l'information temporelle se retrouve codée spatialement). Le dispositif nécessite l'emploi de densités optiques pour ne pas saturer la caméra et optimiser le contraste des acquisitions (d'où l'installation d'une roue à densité sur le trajet du signal  $1\omega$  qui est le plus énergétique, voir Figure 2-4). Une ligne à retard installée sur le trajet du signal  $1\omega$  permet d'ajuster son délai avec le faisceau sonde  $2\omega$  de manière à mesurer le contraste temporel sur différentes fenêtres de 45 ps. En traitant plusieurs de ces acquisitions de délais variables, le contraste temporel des impulsions de DERIC a été reconstruit sur une plage de 200 ps. Le résultat est fourni en Figure 2-5 [22].

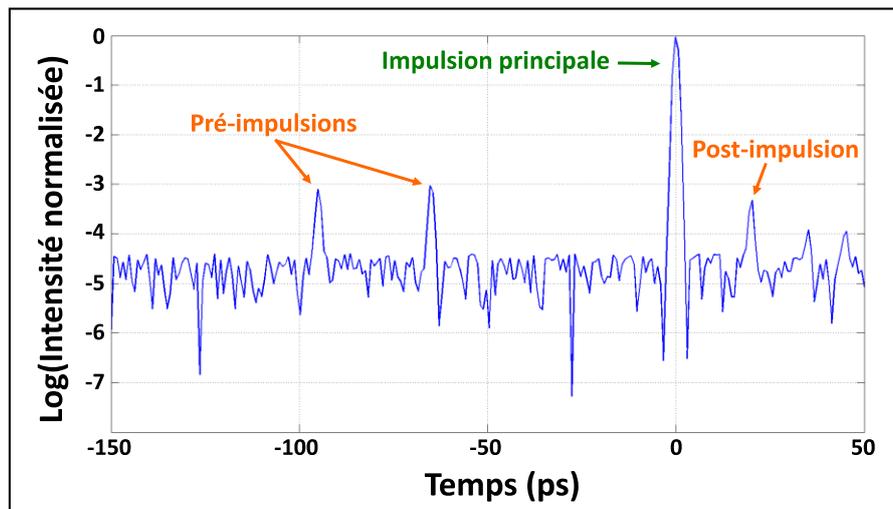


Figure 2-5 : Contraste temporel des impulsions de DERIC [22].

Nous notons la présence de deux pré-impulsions et d'une post-impulsion (nous supposons qu'elles proviennent de réflexions parasites sur les faces arrière des composants de la section amplificatrice). Cependant, ces impulsions secondaires sont au maximum environ mille fois moins intenses que l'impulsion principale. Cela signifie qu'elles peuvent être négligées et que toutes les expériences d'endommagement menées sur DERIC ne seront bien dues qu'à l'impulsion principale. Il s'agit alors de caractériser au mieux cette impulsion ce qui est l'objet des deux prochaines sections.

### II.A.1.d.ii Durée d'impulsion estimée par autocorrélation

Actuellement, il est possible de résoudre temporellement des impulsions nanosecondes car il existe des instruments (photodétecteurs et oscilloscopes) dont les bandes passantes (résolution) sont de l'ordre de plusieurs dizaines de GHz (résolution à environ un dixième de nanoseconde). En revanche, il n'existe pas dans le commerce d'appareils de résolution suffisante pour mesurer le profil temporel d'impulsions picosecondes ou femtosecondes. Les instruments de mesures les plus répandus pour la caractérisation temporelle d'impulsions courtes restent les autocorrélateurs qui permettent au moins d'en estimer la durée d'impulsion moyennant une hypothèse sur la forme du profil temporel. Cette estimation se fait à partir de la trace d'autocorrélation du signal (explicitée ci-après). Il existe différents autocorrélateurs selon l'ordre de leur trace d'autocorrélation (deuxième ou troisième ordre [64-65]) et le nombre d'impulsions nécessaires à leur détermination : les autocorrélateurs sont dits monocoups si une seule impulsion est nécessaire, multi-coups ou récurrents si plusieurs sont nécessaires. DERIC dispose de manière permanente d'un autocorrélateur APE Pulse Check récurrent du deuxième ordre (schéma de fonctionnement donné en Figure 2-6).

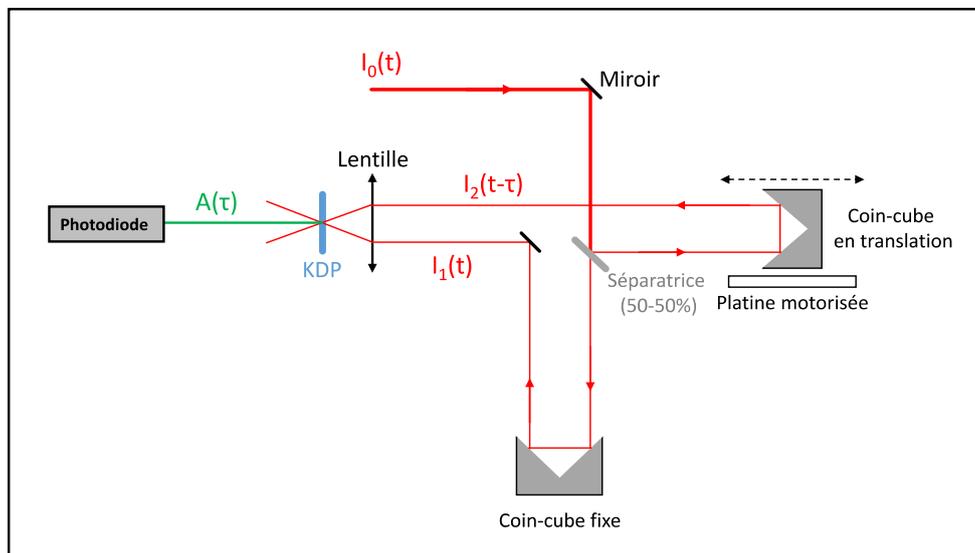


Figure 2-6 : Schéma de fonctionnement de l'autocorrélateur de DERIC.

Une impulsion d'entrée  $I_0$  est divisée par une séparatrice en deux répliques  $I_1$  et  $I_2$  de même énergie.  $I_1$  suit un trajet de longueur fixe tandis que  $I_2$  suit un trajet de longueur variable via un coin cube bougeant en translation par effet piézo-électrique. Cette configuration introduit ainsi un retard  $\tau$  sur  $I_2$  par rapport à  $I_1$ . Ces deux signaux sont ensuite focalisés sur un cristal de KDP doubleur de fréquence. Il génère un signal  $A$  de deuxième harmonique dont l'intensité, qui résulte du produit de corrélation entre  $I_1$  et  $I_2$ , est enregistré par une photodiode. On parle même ici d'autocorrélation car les signaux sont identiques (même profil d'intensité) :

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_1(t) \times I_2(t - \tau) dt$$

Équation 2-1 : Produit d'autocorrélation entre deux signaux identiques retardés de  $\tau$  l'un par rapport à l'autre.

Pour chaque nouvelle impulsion entrant dans l'autocorrélateur, le délai  $\tau$  est modifié. La trace d'autocorrélation est la représentation graphique de A en fonction de  $\tau$  (voir Figure 2-7) : l'intensité est maximale pour un retard nul (recouvrement total des impulsions) puis décroît symétriquement au fur et à mesure que ce retard augmente.

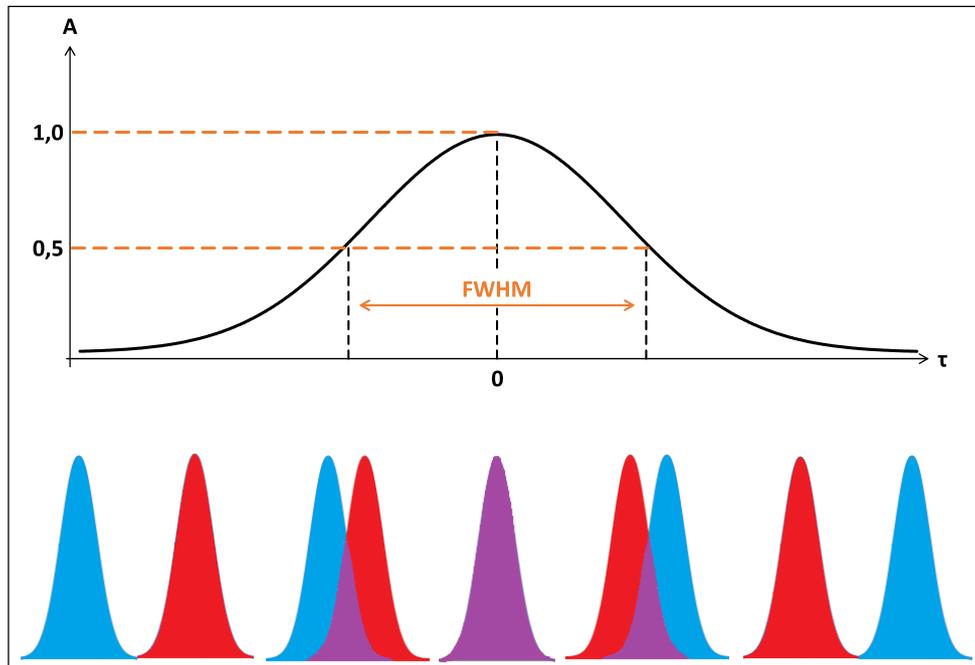


Figure 2-7 : Trace d'autocorrélation (idéalisée). Une trace symétrique est synonyme d'un autocorrélateur du deuxième ordre (ceux du troisième ordre peuvent avoir des traces asymétriques [65]).

La grandeur d'intérêt de toute trace d'autocorrélation est sa largeur à mi-hauteur généralement notée par son acronyme anglais FWHM pour Full Width at Half Maximum. C'est à partir de cette dernière qu'est estimée la durée d'impulsion (correspondant à la largeur à mi-hauteur de son profil temporel d'intensité) :

$$\text{FWHM} = C_p \times \Delta\tau$$

Équation 2-2 : Lien entre la durée d'impulsion  $\Delta\tau$  (s) et la largeur à mi-hauteur FWHM (s) de la trace d'autocorrélation correspondant à l'impulsion.  $C_p$  est un facteur de déconvolution dépendant de l'hypothèse faite sur la forme du profil temporel de l'impulsion.

La valeur du facteur  $C_p$  dépend de l'hypothèse faite sur la forme (inconnue) du profil temporel. Parmi les hypothèses les plus courantes, on trouve celles de la forme gaussienne, de la sécante hyperbolique carrée et de la courbe de Lorentz (les valeurs correspondantes du coefficient  $C_p$  sont reportées dans le tableau 2-2). Un exemple de trace d'autocorrélation mesurée au minimum de durée d'impulsion est donné en Figure 2-8.

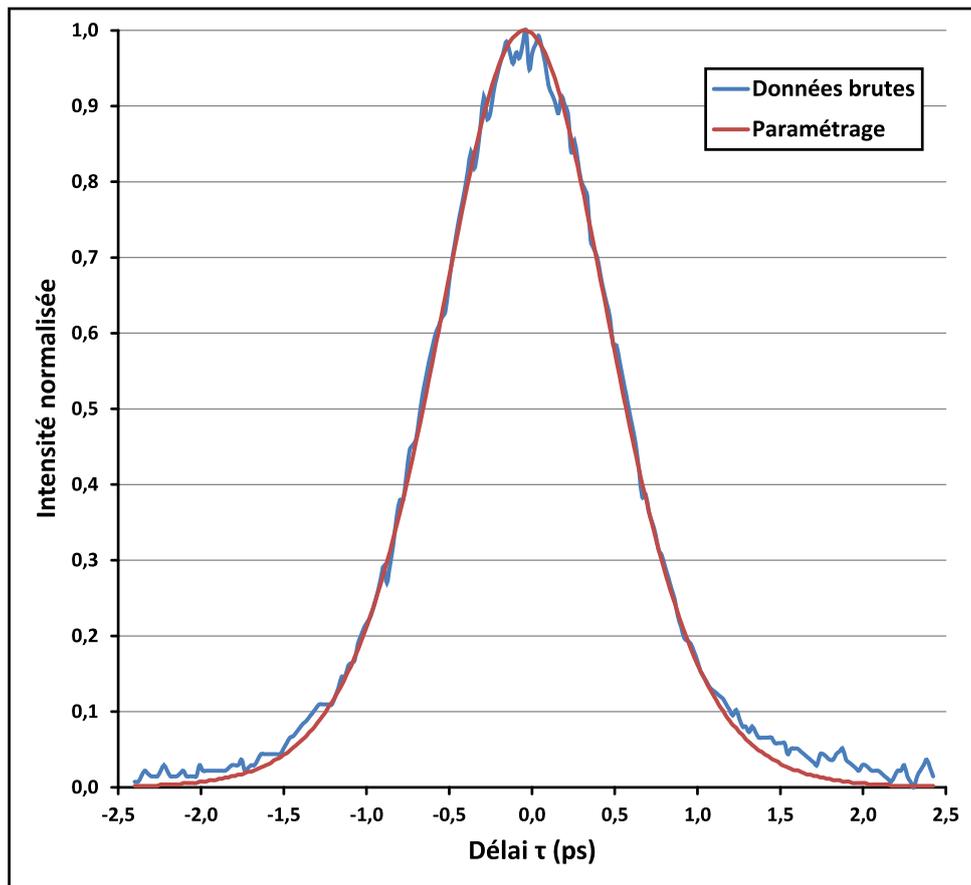


Figure 2-8 : Exemple de trace d'autocorrélation au minimum de durée d'impulsion de DERIC. La largeur à mi-hauteur (FWHM) est de 1230 fs. La courbe est ici paramétrée en supposant un profil temporel en forme de sécante hyperbolique carrée ce qui donne une durée d'impulsion minimale de 797 fs (voir tableau 2-2). Deux autres valeurs possibles de durées d'impulsion sont reportées dans le tableau 2-2 en supposant un profil temporel gaussien ou en forme de courbe de Lorentz.

Cette hypothèse sur le profil temporel se retrouve également dans l'expression du principe d'incertitude d'Heisenberg qui relie la largeur temporelle à mi-hauteur  $\Delta\tau$  d'une impulsion à sa largeur spectrale à mi-hauteur  $\Delta\nu$  (exprimée en fréquence) [66] :

$$\Delta\nu \times \Delta\tau \geq K$$

$$\text{avec } |\Delta\nu| = \left| c \times \Delta\lambda / (\lambda_0^2 - \frac{1}{4} \Delta\lambda^2) \right|$$

Équation 2-3 : Principe d'incertitude d'Heisenberg (inégalité du haut). L'équation reliant  $\Delta\nu$  à  $\Delta\lambda$  et  $\lambda_0$  provient du calcul de la différence  $\nu_2 - \nu_1$  avec  $\nu_2 = c/\lambda_2$ ,  $\nu_1 = c/\lambda_1$ ,  $\lambda_1 = \lambda_0 - \Delta\lambda/2$  et  $\lambda_2 = \lambda_0 + \Delta\lambda/2$  avec l'approximation que  $\lambda_1 \times \lambda_2 \sim (\lambda_0)^2$ .

avec

$\Delta\nu$  : largeur spectrale à mi-hauteur en fréquence (Hz)

$\Delta\tau$  : largeur temporelle à mi-hauteur (s) correspondant à la durée d'impulsion que nous notons plus généralement  $\tau$

K : facteur dont la valeur dépend de la forme du profil temporel (voir tableau 2-2)

$\lambda_0$  : longueur d'onde centrale (m)

$\Delta\lambda$  : largeur spectrale à mi-hauteur (m)

c : vitesse de la lumière dans le vide (m/s)

Le principe d'incertitude d'Heisenberg indique que plus la largeur spectrale d'une impulsion est grande, plus sa durée d'impulsion peut être courte (nous reviendrons dans la prochaine section sur la condition à respecter pour effectivement atteindre le minimum de durée d'impulsion). Cette relation permet de calculer ce minimum théorique une fois la largeur spectrale connue (on dit alors que l'impulsion est limitée par Fourier). Dans notre cas,  $\Delta\lambda = 2,5$  nm. Le tableau 2-2 rassemble les valeurs théoriques du minimum de durée d'impulsion selon la valeur du coefficient K considéré.

Forme du profil temporel	Facteur de déconvolution $C_p$ [66]	Facteur K de la relation d'Heisenberg [66]	Durée minimale d'impulsion limitée par Fourier (fs)	Durée minimale d'impulsion mesurée à l'autocorrélateur (fs)
Gaussienne	1,414	0,441	654	870
Sécante hyperbolique carrée	1,543	0,315	467	797
Courbe de Lorentz	2,00	0,142	211	615

Tableau 2-2 : Valeurs du facteur de déconvolution  $C_p$  (équation 2-2) et du facteur K de la relation d'Heisenberg (équation 2-3) pour trois formes idéales de profil temporel (Gaussienne, sécante hyperbolique carrée ou courbe de Lorentz). Sont également données pour ces trois formes idéales, une longueur d'onde centrale de 1054,4 nm et une largeur spectrale à mi-hauteur de 2,5 nm, les valeurs possibles du minimum théorique de durée d'impulsion ainsi que les valeurs de ce minimum mesurées par autocorrélation (à partir de la FWHM de la Figure 2-8). La précision de l'autocorrélateur est de 20 fs.

Les mesures par autocorrélation montrent que le minimum d'impulsion limité par Fourier n'est pas atteint. Comme nous le montrerons à travers la prochaine section, cela s'explique à la fois par l'inadéquation entre les hypothèses faites sur le profil temporel qui le supposent idéal (Gaussien, sécante...) et sa véritable forme ainsi que par la qualité de la compression temporelle de l'impulsion.

Enfin, comme rappelé plus haut, la technique d'autocorrélation ne permet qu'une estimation de la durée d'impulsion à partir d'une hypothèse faite sur la forme du profil temporel. Cette impossibilité d'accéder au profil temporel pour un autocorrélateur le rend également ambiguë dans sa mesure : bien que deux profils temporels différents génèrent chacun sa propre trace d'autocorrélation, il est possible que ces deux traces présentent la même largeur à mi-hauteur (FWHM) auquel cas aucune distinction n'est faite entre les deux profils temporels qui se voient attribuer la même durée d'impulsion. La Figure 2-9 illustre cette possibilité à partir de deux traces d'autocorrélation mesurées sur DERIC accompagnées de leurs profils temporels respectifs. La mesure des profils temporels a été réalisée à partir d'un autre diagnostic qui fait l'objet de la prochaine section.

Remarque : considérer l'intégrale de la trace d'autocorrélation n'améliorerait qu'à peine la situation car on serait simplement capable de dire si le profil temporel est différent mais toujours sans le connaître.

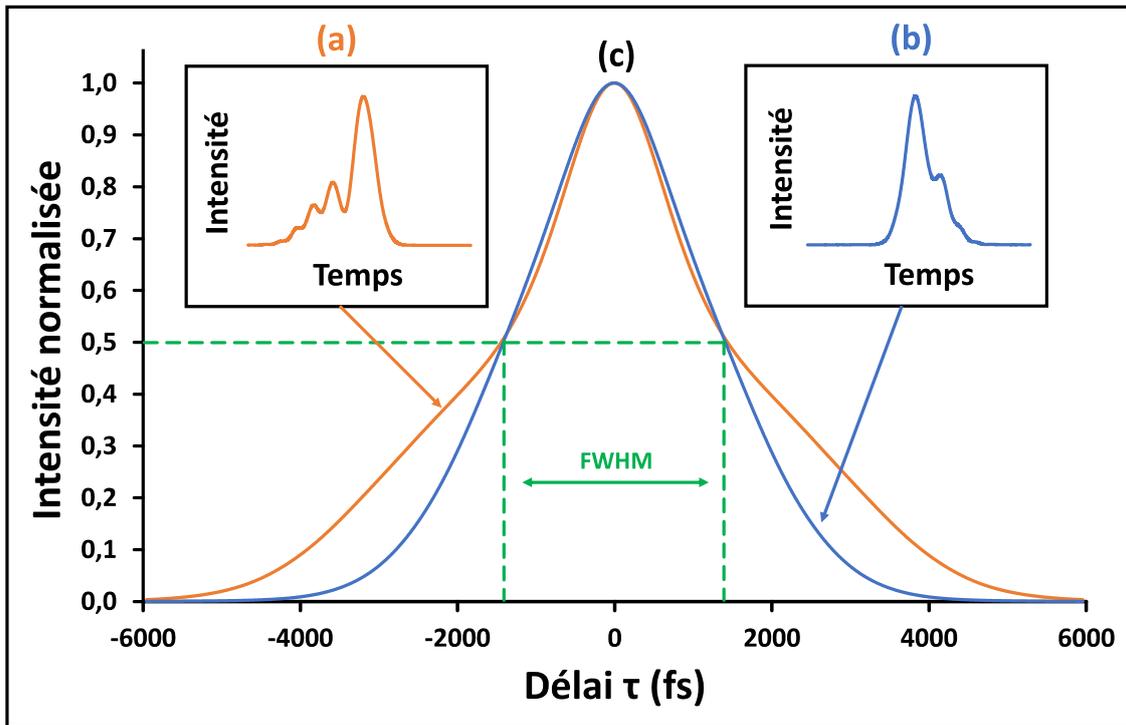


Figure 2-9 : (a) et (b) Deux profils temporels de la source laser de DERIC (mesurés par un diagnostic spécifique décrit en section II.A.1.d.iii). Les deux profils sont normalisés et contenus dans la même fenêtre temporelle (environ 12 ps). (c) Les traces d'autocorrélation correspondantes à ces deux profils (calculées directement à partir des deux profils, ces courbes sont quasi-identiques au paramétrage fourni par l'autocorrélateur de DERIC [22]). Bien que les deux traces aient des formes différentes, elles présentent la même FWHM. Ainsi, il n'est pas possible de faire la distinction entre les deux profils via la technique d'autocorrélation.

#### II.A.1.d.iii Profils temporels d'intensité

Afin de lever l'ambiguïté des mesures par autocorrélation qui ne permettent pas de remonter au profil temporel de l'impulsion, nous nous sommes appuyés sur des mesures réalisées en 2016 (lors de la thèse de Martin Sozet) sur le banc DERIC avec le diagnostic SPIRITED (Spectral Phase Interferometry Resolved In Time Extra Dimensional). Ce diagnostic a été spécialement développé au CEA-CESTA [67] afin de pouvoir mesurer le profil temporel d'impulsions picoseconde ou sub-picoseconde. Tout comme le diagnostic CROSSCO décrit précédemment, il a été temporairement utilisé sur DERIC avant d'être installé de façon permanente sur PETAL. Deux avantages majeurs de ce dispositif sont qu'il fonctionne en monocoup et qu'il facilite grandement le réglage de la compression grâce à une visualisation de la phase de l'impulsion.

La relation d'Heisenberg présentée précédemment illustre le lien entre la largeur spectrale d'une impulsion et sa durée minimale théorique. Ce lien découle en réalité de la transformée de Fourier qui lie les propriétés temporelles et spectrales de toute impulsion. Nous noterons  $t$  le temps et  $\omega$  la pulsation. Pour le domaine temporel (resp. spectral), nous noterons  $\mathbf{E}$  (resp.  $\tilde{\mathbf{E}}$ ) le vecteur champ électrique,  $\psi$  (resp.  $\varphi$ ) sa phase et  $A$  (resp.  $B$ ) son amplitude. Nous avons alors (aux facteurs de normalisation près) les deux relations fondamentales suivantes pour une impulsion centrée à la pulsation  $\omega_0$  :

$$\tilde{\mathbf{E}}(\omega - \omega_0) = B(\omega - \omega_0) \times e^{i\varphi(\omega - \omega_0)} = \int_{-\infty}^{+\infty} A(t) \times e^{i\psi(t)} \times e^{-i(\omega - \omega_0)t} dt$$

$$\mathbf{E}(t) = A(t) \times e^{i\psi(t)} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} B(\omega - \omega_0) \times e^{i\varphi(\omega - \omega_0)} \times e^{i(\omega - \omega_0)t} d\omega$$

Équations 2-4 et 2-5 : Transformée de Fourier (2-4 pour  $\tilde{\mathbf{E}}(\omega - \omega_0)$ ) et transformée de Fourier inverse (2-5 pour  $\mathbf{E}(t)$ ) lient les décompositions spectrales et temporelles du champ électrique. Remarque : il existe plusieurs conventions d'écriture de la transformée de Fourier et de sa transformée inverse selon les coefficients mis devant les intégrales (1 et  $1/2\pi$  dans notre cas) et le signe de l'exponentielle liant les variables des espaces duals (+ pour la transformée inverse dans notre cas).

Le diagnostic SPIRITED s'appuie ainsi sur la résolution de l'équation 2-5, son objectif étant de remonter au profil temporel d'intensité  $I(t) = |\mathbf{E}(t)|^2$ . Son architecture (Figure 2-10) est donc telle qu'elle permet de mesurer l'amplitude et la phase spectrale de l'impulsion.

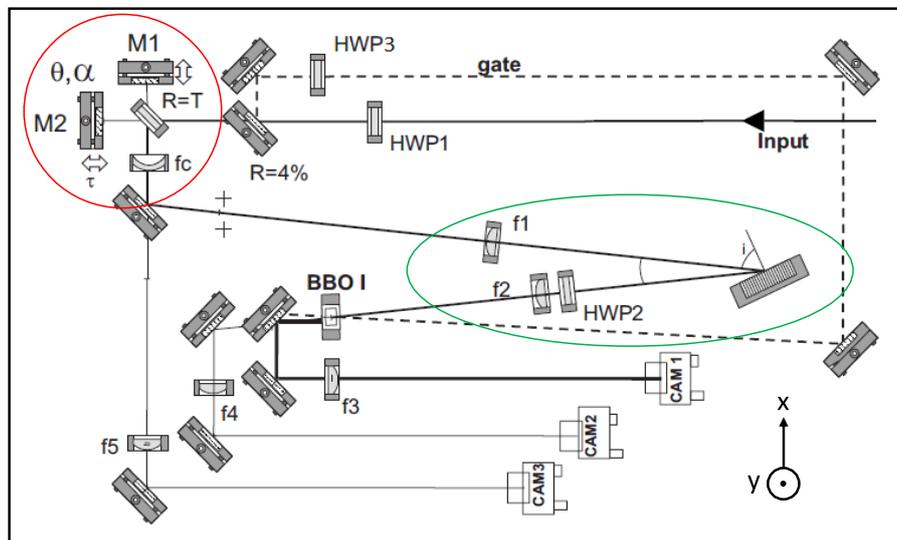


Figure 2-10 : Synoptique du diagnostic SPIRITED [67].

En entrée du diagnostic, l'impulsion passe dans un dispositif de Michelson en configuration coin d'air (entouré en rouge sur la Figure 2-10) qui génère deux répliques de même énergie mais décalées dans l'espace par l'intermédiaire d'un miroir M2 qui introduit deux tilts d'angles horizontal et vertical (respectivement notés  $\theta$  et  $\alpha$ ). Un miroir M1 bougeant en translation permet d'annuler tout décalage temporel entre les deux répliques (une désynchronisation entraînerait une erreur de mesure systématique sur la composante quadratique de la phase spectrale, voir équation 2-8). Ces dernières sont une première fois imagées (focalisées) au moyen d'une lentille cylindrique de distance focale  $f_c$  afin de former deux fentes (repérées par les deux signes + sur la Figure 2-10) constituant l'entrée d'un spectromètre (entouré en vert sur la Figure 2-10). Les deux répliques sont collimatées par une lentille convergente de distance focale  $f_1$  (les fentes étant placées dans le plan objet de cette lentille) afin d'être correctement dispersées par un réseau diffractif fonctionnant en réflexion. Une deuxième lentille convergente de distance focale  $f_2$  les focalise enfin sur un cristal non-linéaire BBO de type I où est également acheminé un faisceau sonde (prélèvement à 4% en entrée du dispositif, « gate » sur la Figure 2-10). Le cristal est placé dans le plan focal de  $f_2$  où les deux répliques interfèrent. La figure d'interférence résultante est imagée sur la caméra CAM1 (voir

Figure 2-10) grâce au faisceau sonde dont l'emploi est nécessaire afin de figer les franges d'interférences qui défilent en temps normal. Un exemple d'interférogramme acquis par cette caméra au minimum de durée d'impulsion de DERIC est donné en Figure 2-11.

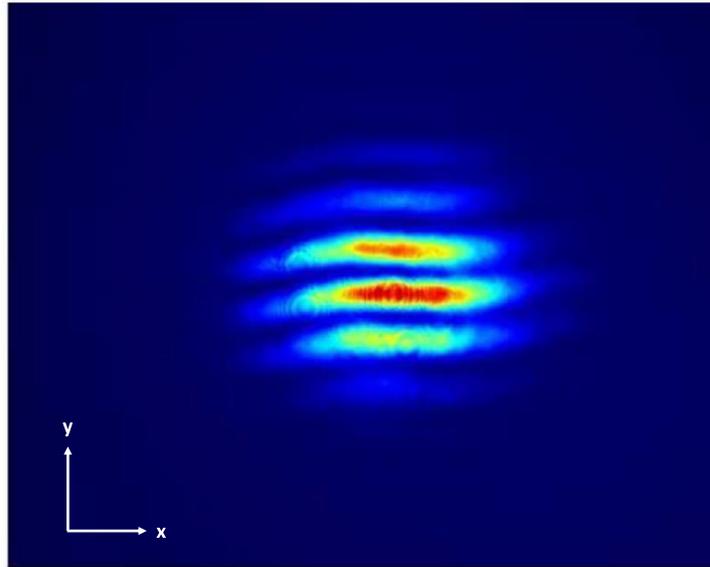


Figure 2-11 : Exemple d'interférogramme mesuré par le diagnostic SPIRITED, obtenu à la durée d'impulsion minimale de la source laser de DERIC [68]. L'axe horizontal, selon x, est l'image de l'axe spectral.

Sur chaque interférogramme, l'intensité varie selon la formule suivante [67] :

$$I(x, y) = I_0 \times \left[ 1 + \cos \left( \left. \frac{\partial \varphi}{\partial \omega} \right|_{\omega(x)} \times \Delta \omega - \frac{y}{y_0} \times \frac{2\pi}{\Delta \omega} \right) \right]$$

Équation 2-6 : Expression de l'intensité en tout point (x,y) de tout interférogramme du diagnostic SPIRITED.

avec

$I_0$  : constante non nulle (unité arbitraire)

$\omega(x)$  : pulsation (ou fréquence angulaire en Hz) liée au déplacement en x d'après la dispersion introduite par le réseau (il est possible de remonter à  $\omega$  via x grâce à la loi de dispersion du réseau et de la distance focale de la lentille f2)

$\omega_0$  : pulsation centrale (Hz)

$\Delta \omega$  : décalage (Hz) entre les pulsations centrales des deux répliques provoqué par le tilt d'angle  $\theta$  (on a  $\Delta \omega = \omega_0(x_1) - \omega_0(x_2)$  ;  $x_1$  et  $x_2$  étant les positions des images des deux fentes avec  $x_2 - x_1 = \theta \times f_c \times f_2/f_1$ )

$y_0$  : interfrange selon l'axe y à x fixé

Comme le montre l'équation 2-6, l'intensité de tout interférogramme généré grâce au SPIRITED dépend notamment du gradient de phase de l'impulsion. C'est en cela que ce diagnostic permet à la fois de visualiser directement la phase de l'impulsion (via sa dérivée spectrale) et de la mesurer :  $\Delta \omega$  étant connu en combinant les mesures du spectre et de la distance entre les deux fentes d'entrée (via respectivement les caméras CAM2 et CAM3 en Figure 2-10), une analyse de Fourier en deux dimensions (selon x et y) du signal de l'interférogramme permet d'évaluer la dérivée spectrale de la phase pour l'ensemble des pulsations du spectre de l'impulsion (ou de manière équivalente, l'ensemble des abscisses x où le signal est non nul). La phase est alors déduite par intégration à une constante près qui peut être prise égale à zéro.

Au-delà de la mesure de la phase spectrale, le SPIRITED offre également comme nous l'avons vu une visualisation simple de cette dernière ce qui constitue un atout pour l'opérateur afin de régler la compression temporelle de l'impulsion. Pour comprendre en quoi la lecture de tout interférogramme tel que présenté en Figure 2-11 est utile à ce réglage, il est instructif d'effectuer un développement en série de Taylor de la phase spectrale autour de la pulsation centrale  $\omega_0$  (équation 2-7). La condition à respecter pour qu'un tel développement soit valable est  $\omega - \omega_0 \ll \omega_0$  ce qui est le cas pour DERIC : en raisonnant à partir des longueurs d'onde, nous constatons d'après la mesure du spectre montrée en Figure 2-3 un éloignement maximal de 8 nm par rapport à la longueur d'onde centrale 1054 nm (1046 nm est la composante spectrale non nulle la plus éloignée de la composante centrale) soit moins de 1% de variation.

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \varphi^{(1)}(\omega_0) \times (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \times \varphi^{(2)}(\omega_0) \times (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6} \times \varphi^{(3)}(\omega_0) \times (\omega - \omega_0)^3 + o^{(3)}(\omega - \omega_0)$$

Équation 2-7 : Développement en série de Taylor de la phase spectrale.

avec

$$\varphi^{(i)}(\omega_0) = \left. \frac{\partial^i \varphi}{\partial \omega^i} \right|_{\omega_0} : \text{dérivée d'ordre } i \text{ évaluée en } \omega_0 \text{ de la phase spectrale } \varphi(\omega) \text{ (en s}^{-i}\text{)}$$

$o^{(3)}(\omega - \omega_0)$  : le reste (ici d'ordre trois)

Cette décomposition en série de Taylor exprime ainsi la phase comme la somme de différents termes spectraux d'ordre de plus en plus élevés dont les contributions propres dépendent notamment des coefficients  $\varphi^{(1)}(\omega_0)$ ,  $\varphi^{(2)}(\omega_0)$  et  $\varphi^{(3)}(\omega_0)$  (pour un développement s'arrêtant à l'ordre trois). Ces coefficients sont généralement notés  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  respectivement. En dérivant l'équation 2-7 par rapport à  $\omega$ , on obtient ainsi le gradient spectral de la phase comme somme d'une constante, d'un terme linéaire de pente  $T_2$  et un terme du second ordre pondéré par  $T_3$ . Ainsi, la représentation graphique du gradient de phase selon la pulsation présentera une pente d'autant plus forte que  $T_2$  sera grand et une forme parabolique d'autant plus marquée que  $T_3$  sera grand. Ce sont exactement ces aspects géométriques qui peuvent être repérés sur tout interférogramme fourni par le SPIRITED puisque son intensité est reliée au gradient de phase (équation 2-6) : les franges d'interférence seront d'autant plus inclinées et de forme parabolique que la phase spectrale contiendra des résidus de phase d'ordre deux et trois importants. L'optimum de compression temporelle de l'impulsion (correspondant à sa durée minimale) étant atteint lorsque tous les résidus de phase d'ordre supérieur ou égal à deux sont nuls, le réglage de la meilleure compression se fait donc visuellement grâce à l'interférogramme lorsque les franges sont rectilignes et horizontales. Ces effets se retrouvent de manière équivalente au niveau du profil temporel de l'impulsion ; la composante quadratique de la phase entraîne un élargissement du profil tandis que la composante cubique provoque des rebonds d'un côté ou de l'autre du pic d'intensité principal (selon le signe de cette composante, voir Figures 2-14 et 2-15).

Le dispositif SPIRITED donne ainsi accès à la phase et l'amplitude spectrales de l'impulsion (cette dernière étant mesurée grâce à la caméra CAM2, voir Figure 2-10). Cela permet, via l'équation 2-5, de remonter au profil temporel de l'impulsion. La Figure 2-12 montre un exemple de reconstruction du profil temporel à la durée d'impulsion minimale de DERIC :

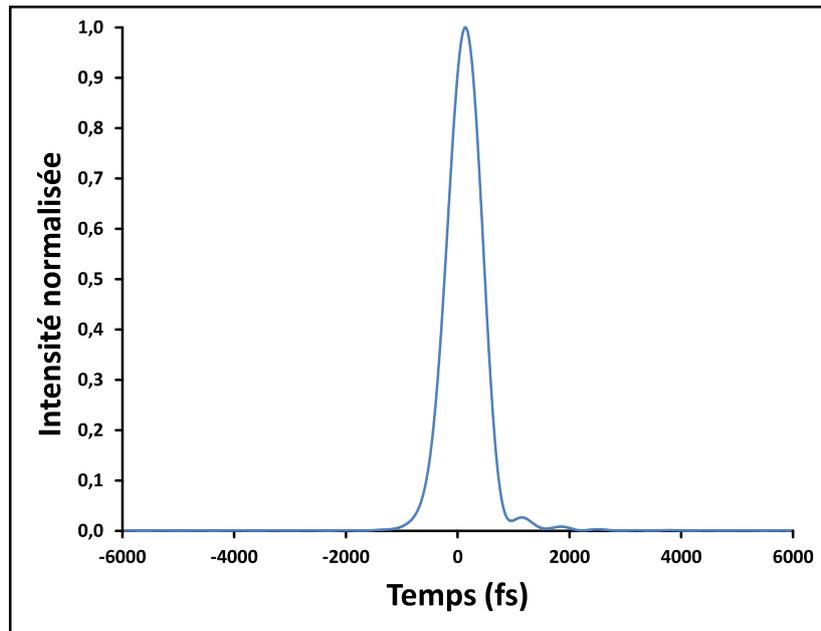


Figure 2-12 : Mesure grâce au diagnostic SPIRITED du profil temporel à la durée minimale d'impulsion de DERIC qui est ici de 726 fs (largeur à mi-hauteur).

**Remarque :** le diagnostic SPIRITED ne permet pas de connaître le sens de lecture des profils temporels reconstruits. Ce sens de lecture sera déterminé au troisième chapitre.

La durée minimale d'impulsion sur DERIC est ainsi de  $726 \pm 10$  fs d'après le diagnostic SPIRITED. La plus proche mesure fournie par l'autocorrélateur de cette valeur est celle obtenue lorsqu'est prise l'hypothèse d'une forme sécante hyperbolique carrée pour le profil temporel ( $797 \pm 20$  fs, voir tableau 2-2). Ceci indique tout d'abord que cette forme idéale de profil temporel est la meilleure approximation possible pour l'autocorrélateur caractérisant les impulsions de DERIC (l'approximation étant d'autant plus juste que l'on est proche du minimum de durée d'impulsion). Par la suite, toutes les durées d'impulsion données correspondront ainsi à celles mesurées par l'autocorrélateur en faisant l'hypothèse d'une sécante hyperbolique carrée pour le profil temporel (le minimum de durée d'impulsion sera également arrondi à 0,8 ps). Enfin, le recours au diagnostic SPIRITED permet d'expliquer qualitativement les écarts visibles dans le tableau 2-2 entre la durée minimale d'impulsion limitée par Fourier et celle mesurée par autocorrélation. Tout d'abord, les impulsions ne présentent pas de profils temporels idéaux (voir Figure 2-14 où sont rapportés d'autres exemples de profils temporels mesurés au SPIRITED). Ensuite et surtout, la condition nécessaire pour atteindre le minimum théorique de durée d'impulsion est que toutes les composantes spectrales de ladite impulsion soient en phase ou autrement dit, lorsque le gradient spectral de la phase est égal à une constante. Comme expliqué précédemment, cela se traduirait alors par des franges rectilignes et horizontales sur l'interférogramme du SPIRITED donné en Figure 2-11. Or nous voyons que ce n'est pas tout à fait le cas car les franges forment un léger « S », signe qu'il subsiste un résidu de phase spectrale d'ordre trois non compensé (la forme en « S » est celle d'un polynôme du troisième degré).

Maintenant que nous avons décrit le diagnostic permettant de mesurer les profils temporels d'impulsions courtes, nous allons décrire plus en détail le fonctionnement de la compression sur DERIC et les différents profils temporels qui y ont été mesurés par le diagnostic SPIRITED.

### II.A.1.d.iv Plages temporelles

La section de compression de la source laser de DERIC est équipée d'un réseau fixe et d'un dièdre mobile qui peut se déplacer le long d'un axe horizontal (platine motorisée contrôlée par l'opérateur). Selon sa position, le dièdre déphase plus ou moins les composantes spectrales les unes par rapport aux autres ce qui permet d'ajuster la durée d'impulsion. La course totale de ce dièdre est d'environ 1 cm ; le minimum d'impulsion (environ 0,8 ps) est atteint à mi-course tandis que le maximum de durée d'impulsion (environ 3,5 ps) est atteint pour les deux butées (voir Figure 2-13).

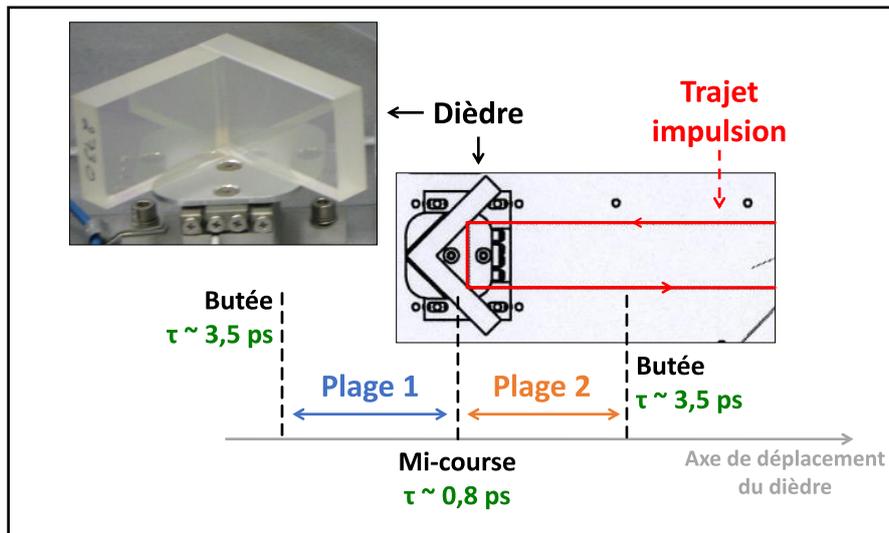


Figure 2-13 : Illustration du fonctionnement de la section de compression au sein de la source laser de DERIC. Un dièdre mobile permet de modifier la durée d'impulsion.

Ainsi, DERIC dispose de deux plages temporelles quasi-identiques en termes de durées d'impulsion mesurées par autocorrélation. Néanmoins, comme illustré en Figure 2-14, ces deux plages comportent des profils temporels très différents. Pour cette raison, nous les nommerons pages 1 et 2 par la suite. La Figure 2-14 rapporte quelques exemples de profils temporels mesurés au diagnostic SPIRITED sur les pages 1 et 2 (un plus grand panel de profils est fourni en annexe 2) ; les profils sont rassemblés par paires où se trouve pour chacune d'elles un profil de la page 1 (en bleu) et un autre de la page 2 (en orange) ayant la même largeur à mi-hauteur sur la trace d'autocorrélation.

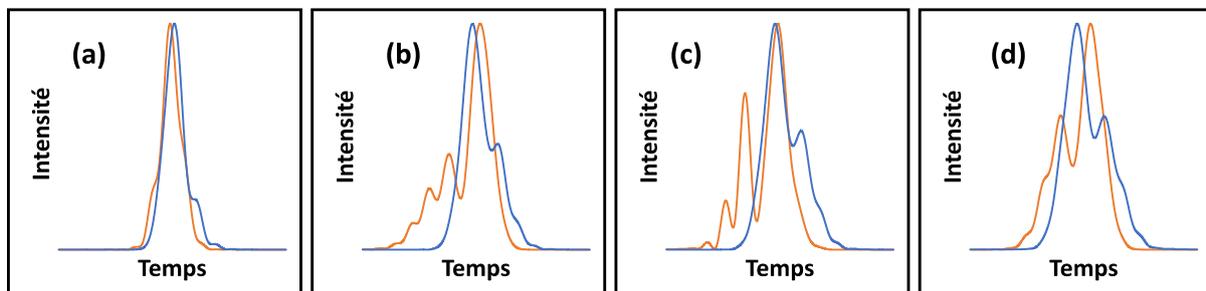


Figure 2-14 : Exemples de profils temporels mesurés au diagnostic SPIRITED le long des pages 1 et 2 de DERIC. Chaque paire de profils (bleu pour la page 1, orange pour la page 2) est caractérisée par une même largeur à mi-hauteur (FWHM) sur la trace d'autocorrélation. (a) FWHM = 1,2 ps ; (b) FWHM = 1,8 ps ; (c) FWHM = 2,1 ps ; (d) FWHM = 2,4 ps. Tous les profils sont normalisés et contenus dans une fenêtre temporelle d'environ 12 ps.

Ces mesures se sont également montrées répétables toujours à l'aide du diagnostic SPIRITED. Nous distinguons une tendance au sein de chaque plage ; en lisant les profils de gauche à droite, la plage 1 peut être caractérisée par un profil moyen constitué d'un pic principal suivi d'un pic secondaire. La plage 2 présente une plus grande diversité de profils mais suit globalement une tendance inversée par rapport à la plage 1 (pic secondaire suivi par le pic principal). Le sens de lecture des profils temporels sera déterminé au troisième chapitre.

Ces variations de profils temporels (pour les deux plages) se manifestent essentiellement par des rebonds autour du pic d'intensité principal. Comme expliqué précédemment, ce type d'aberrations temporelles est caractéristique de la composante cubique dans l'équation 2-7 qui introduit des effets d'ordre trois sur la phase. Dans le cas de réseaux parallèles, ce qui est le cas pour la source de DERIC tant au niveau du compresseur que de l'étireur, ce terme cubique est donné par [69] :

$$T_3 = \left. \frac{\partial^3 \varphi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} = 3G \times \frac{N^2 \times \lambda_0^4 \times [1 + \sin(i) \times \sin(\alpha_0)]}{4\pi^2 \times c^3 \times \cos^5(\alpha_0)}$$

Équation 2-8 : Expression du terme d'ordre trois de la phase (en s<sup>3</sup>) pour des réseaux parallèles.

avec

N : densité de traits du réseau (m<sup>-1</sup>)

i : angle d'incidence (rad)

$\alpha_0$  : angle de diffraction au premier ordre de la longueur d'onde centrale (rad)

G : distance normale entre les deux réseaux (m)

L'étireur et le compresseur apportent donc chacun une contribution d'ordre trois sur la phase. On peut montrer qu'ils ont tout autant des contributions sur les autres ordres [69]. Idéalement, la meilleure compression est obtenue lorsque le compresseur est réglé de manière à compenser totalement les différents termes de phases introduits par l'étireur (on a alors par exemple  $T_{3,\text{compresseur}} + T_{3,\text{étireur}} = 0$ ). Plus on s'éloigne de cette position idéale, plus l'impulsion est étirée temporellement principalement à cause du terme d'ordre deux qui n'est plus compensé ; un résidu d'ordre trois est également à l'œuvre mais son effet est négligeable. Dans notre cas, alors que le dièdre s'éloigne de la position de compression idéale, nous sommes parvenus à montrer via des simulations numériques (détaillées en annexe 3) qu'en plus de ces deux résidus forcément non compensés, les aberrations temporelles mesurées par le diagnostic SPIRITED sont très bien expliquées en faisant l'hypothèse qu'un résidu de phase supplémentaire d'ordre trois est en jeu. Ce résidu, noté  $\delta T_3$ , devient de plus en plus grand au fur et à mesure que le dièdre s'éloigne de l'optimum de compression. La Figure 2-15 rassemble plusieurs de ces simulations ainsi que les profils SPIRITED correspondants.

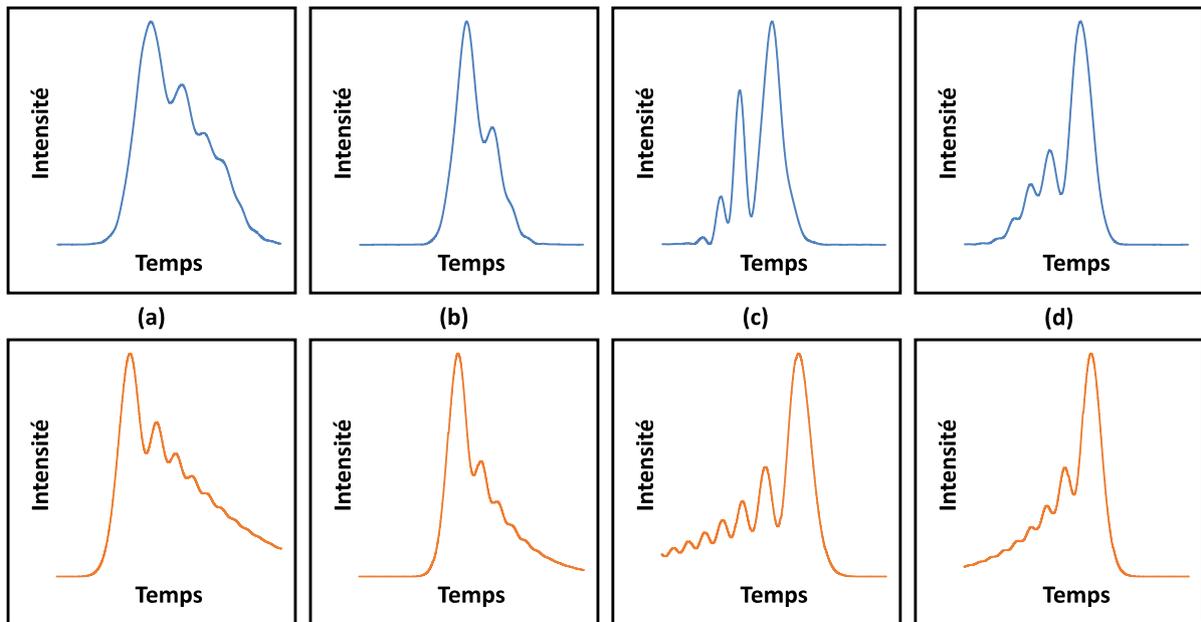


Figure 2-15 : Profils temporels mesurés par le diagnostic SPIRITED (courbes bleues) et leurs profils correspondant numériquement reconstitués (courbes oranges) en faisant l'hypothèse d'une quantité résiduelle supplémentaire  $\delta T_3$  en plus des résidus inévitables d'ordre deux et trois lorsqu'on s'éloigne de l'optimum de compression. (a) et (b) sont des exemples de la plage 1 ; (c) et (d) sont des exemples de la plage 2. Toutes les intensités sont normalisées et tous les profils sont contenus dans la même fenêtre temporelle (environ 12 ps).

Nous avons également déterminé que la cause probable de cette quantité  $\delta T_3$  serait un léger désalignement  $\Delta i$  entre l'étireur et le compresseur. En effet, dans ce cas de désalignement, nous avons la relation suivante [69] :

$$\delta T_3 = 3L \times \frac{N^3 \times \lambda_0^5 \times \cos(i) \times [1 + \sin^2(\alpha)]}{4\pi^2 \times c^3 \times \cos^6(\alpha)} \times \Delta i$$

Équation 2-9 : Lien entre le désalignement  $\Delta i$  (rad) entre tout étireur et compresseur à réseaux parallèles et la quantité de phase cubique engendrée  $\delta T_3$  ( $s^{-3}$ ).  $L$  est ici la distance parcourue par la lumière entre les réseaux (m). Tous les autres termes correspondent à ceux de l'équation 2-10.

L'équation 2-9 permet d'évaluer un désalignement croissant (à partir de la position de compression idéale) de  $0,2^\circ$  à  $2^\circ$  pour la plage 1 et de  $0,2^\circ$  à  $-3^\circ$  pour la plage 2 (changement de signe aux alentours de l'optimum de compression faisant changer de côté les aberrations temporelles autour du pic principal d'intensité). Compte tenu de la course totale du dièdre (environ 1 cm), ces valeurs semblent légèrement trop élevées mais leurs ordres de grandeur restent très plausibles. Parmi les hypothèses retenues lors de la reconstruction numérique des profils, nous avons notamment supposé que le profil spectral était gaussien bien que le véritable profil ne le soit pas (Figure 2-3) et également négligé tout effet du quatrième ordre sur la phase ( $T_4$ ) bien que comme expliqué précédemment, une faible composante d'ordre quatre soit à l'œuvre sur DERIC comme cela est visible sur les mesures SPIRITED (Figure 2-11). Le bon accord entre les mesures du diagnostic SPIRITED et les simulations montrent ainsi à la fois que le pied spectral centré autour de 1049,5 nm (Figure 2-3) et que les effets du résidu de phase d'ordre quatre n'ont pas d'effets notables sur les formes du profil temporel (ces dernières étant plus le fait de résidus de phase non compensés d'ordre deux et trois).

## II.A.2 Voie gaussienne

La voie gaussienne a été la première voie développée sur le banc DERIC [22] (son synoptique est visible en Figure 2-1). Elle reprend le faisceau gaussien délivré par la source laser et permet la qualification de composants optiques à travers la détermination de leur seuil d'endommagement intrinsèque ainsi que de leur densité surfacique de dommages induits sur défauts. Cette voie est équipée d'une lentille de focalisation de focale 61 cm qui permet d'atteindre une fluence maximum d'environ  $8 \text{ J/cm}^2$  sur échantillon pour un faisceau d'environ  $170 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e$  (exemple en Figure 2-16).

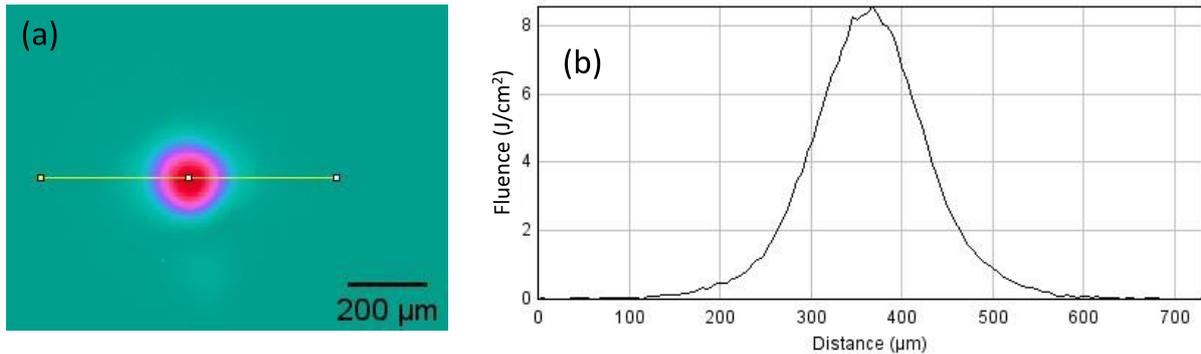


Figure 2-16 : (a) Exemple d'acquisition du faisceau gaussien de DERIC (à l'aide d'une caméra Basler modèle avA1600). (b) Coupe du faisceau représenté en (a) ; son diamètre est d'environ  $170 \mu\text{m}$  à  $1/e$  (diamètre obtenu au niveau d'intensité correspondant à l'intensité maximale divisée par  $e \approx 2,72$ ).

La quantité d'énergie est contrôlée à l'aide d'une demi-onde et de deux polariseurs (disposés en chicane pour ne pas dévier le faisceau, voir Figure 2-1). L'emploi de deux polariseurs permet de bien nettoyer le faisceau de toute polarisation parasite (coefficient d'extinction de 100:1). En sortie de ces deux polariseurs, le faisceau est polarisé dans un plan parallèle au marbre ce qui correspond à une polarisation P sur échantillon. Une demi-onde située juste avant la lentille permet de modifier au besoin la polarisation au niveau de l'échantillon.

La mesure de l'énergie arrivant sur échantillon se fait classiquement à l'aide de deux détecteurs pyro-électriques ; l'un situé en fuite d'un miroir et l'autre juste après la séparatrice (respectivement notés D3 et D4 en Figure 2-1). Avant mise en place de l'échantillon, un étalonnage en énergie est effectué avec les deux détecteurs afin d'établir le coefficient  $C_{\text{ét}} = E_{\text{D3}} / E_{\text{D4}} = E_{\text{fuite}} / E_{\text{éch}}$  (sur la gamme d'énergie souhaité par l'opérateur). Le détecteur D4 est ensuite retiré pour permettre au faisceau d'atteindre l'échantillon pendant l'expérience ; l'énergie de tout tir effectué est alors déduite à l'aide de la fuite mesurée sur D3 et du coefficient  $C_{\text{ét}}$  précédemment établi ( $E_{\text{éch}} = E_{\text{fuite}} / C_{\text{ét}}$ ).

La mesure de la surface du faisceau est quant à elle effectuée sur une voie de prélèvement dans un plan dit optiquement équivalent à celui de l'échantillon (même chemin optique depuis la lentille de focalisation). Le calcul de la surface dite équivalente se fait à partir de toute acquisition similaire à celle présentée en Figure 2-16(a) grâce à l'équation suivante :

$$S_{eq} = \frac{T - B - T_0}{M - b - M_0} \times S_{pixel}$$

Équation 2-10 : Calcul de la surface équivalente d'un faisceau.

avec

$S_{eq}$  : surface équivalente du faisceau ( $\text{cm}^2$ )

T : intégrale totale (somme de toutes les intensités des pixels)

M : maximum d'intensité

b : bruit sur un pixel (moyenne calculée sur quatre bandes de pixels en bordure d'image)

B : bruit total avec  $B = b \times P_x \times P_y$  où  $P_x$  et  $P_y$  désignent respectivement le nombre de pixels selon l'horizontale x et la verticale y de la portion de capteur utilisée (pour des raisons de gestion du bruit sur le capteur, explicitées en annexe 4, seule une partie des  $1600 \times 1200 \text{ px}^2$  disponibles est utilisée)

$T_0$  : intégrale à l'origine (pour compenser un éventuel offset de la caméra [70])

$M_0$  : maximum à l'origine (idem que pour  $T_0$  [70])

$S_{pixel}$  : surface élémentaire d'un pixel ( $5,5 \times 5,5 \mu\text{m}^2 = 30,25 \times 10^{-8} \text{ cm}^2$ , donnée constructeur)

Pour un faisceau gaussien, la surface équivalente correspond à la surface à  $1/e$ . Nous reviendrons dans la section suivante sur cette relation 2-10 qui est fondamentale car elle s'applique aussi aux faisceaux qui ne sont pas spatialement gaussiens.

En plaçant la caméra à différentes positions sur l'axe optique dans la zone de focalisation et en appliquant l'équation 2-10 pour plusieurs acquisitions réalisées pour chacune de ses positions, il est possible de retracer l'évolution de la surface équivalente du faisceau le long de son axe de propagation ce qui revient à déterminer la caustique du faisceau. Les caustiques des voies échantillon et prélèvement sont visibles en Figure 2-17.

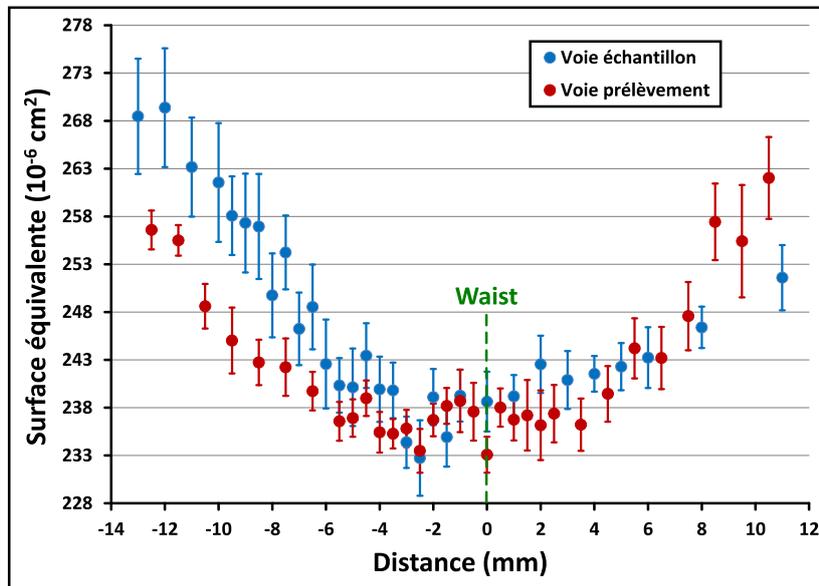


Figure 2-17 : Caustiques des voies échantillon et prélèvement sur la voie gaussienne de DERIC. Pour chaque point, la surface équivalente résulte d'une moyenne faite sur une série de plusieurs dizaines d'acquisitions et les barres d'erreur correspondent à l'écart-type obtenue sur cette série.

Les caustiques obtenues confirment tout d'abord l'équivalence entre les deux voies. Elles permettent également de localiser l'endroit où la surface équivalente atteint son minimum, position couramment appelée « waist » (ce terme désigne également le rayon du faisceau à

cette position). Dans notre cas, nous avons  $S_{eq,min} = S_{waist} = (2,36 \pm 0,05) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$  (la détermination de l'incertitude sur la surface équivalente est expliquée ci-après). C'est à cette position qu'est placée la surface incidente de chaque échantillon afin de maximiser la fluence d'irradiation, cette dernière étant définie comme suit :

$$F = \frac{E_{éch}}{S_{eq}}$$

Équation 2-11 : Définition de la fluence d'irradiation  $F$  ( $\text{J}/\text{cm}^2$ ).  $E_{éch}$  (J) désigne l'énergie du faisceau arrivant sur l'échantillon et  $S_{eq}$  ( $\text{cm}^2$ ) sa surface équivalente.

**Remarque :** la fluence telle que calculée selon l'équation 2-11 correspond à la fluence dite en section droite. On peut toujours en déduire la fluence sur échantillon lorsque ce dernier est tourné d'un certain angle en la multipliant par le cosinus de cet angle.

Enfin, les caustiques aident à quantifier la zone de Rayleigh « utile ». Formellement, la zone de Rayleigh se définit comme la distance sur laquelle le rayon du faisceau est inférieur à  $\sqrt{2}$  fois le waist [22] ce qui correspond de manière équivalente à la distance sur laquelle la surface du faisceau reste inférieure au double de son minimum. Dans le cadre de l'endommagement laser où toutes les études impliquant un faisceau gaussien se font avec celui de surface minimale (pour maximiser la fluence), il convient de connaître la distance sur laquelle le faisceau voit sa surface très peu varier par rapport à sa valeur minimale de manière à garantir le plus possible le calcul de la fluence d'irradiation et donc la cohérence des études d'endommagement. Dans notre cas, nous considérons qu'une variation d'au maximum 2% est acceptable ce qui définit une zone de Rayleigh « utile » d'environ 8 mm et une surface équivalente minimale du faisceau gaussien d'ainsi  $(2,36 \pm 0,05) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$  (valeurs prises par la surface équivalente dans cette zone utile, voir Figure 2-17). Nous ajouterons enfin que ces caustiques ont été établies à basse énergie (quelques dizaines de nanojoules pour ne pas endommager le capteur de la caméra en utilisant un couple demi-onde/polariseur sur la voie prélèvement). La question se pose alors de savoir à quel point ces mesures sont représentatives des conditions expérimentales où les énergies et intensités sont plus élevées ce qui peut entraîner des phénomènes non-linéaires comme la focalisation du faisceau sur lui-même, phénomène couramment désigné par autofocalisation ou encore lentille de Kerr (présenté plus en détail en section II.B.3.c). L'intégrale B (pour Breakdown) est une grandeur permettant d'estimer l'accumulation de phase non-linéaire d'un faisceau au cours de sa propagation et peut à ce titre être employée comme indicateur du risque d'autofocalisation [71]. Parmi les différentes valeurs limites répertoriées dans la littérature [71-72], nous considérons ici la plus contraignante d'entre elles, à savoir  $B = 1 \text{ rad}$ . Néauport et al. [71] ont établi une expression simplifiée de l'intégrale B (équation 2-12 ci-dessous) dans le cas d'un faisceau gaussien focalisé en ne considérant d'une part que la zone de Rayleigh pour estimer cette intégrale (là où l'intensité du faisceau prend ses valeurs les plus élevées et donc là où les effets non-linéaires sont le plus susceptibles de se manifester) et en considérant d'autre part que l'intensité du faisceau reste constante dans cette zone (hypothèse entièrement valable dans notre cas en considérant la zone de Rayleigh « utile » définie plus haut) :

$$B = \frac{4\pi \times n_2 \times E}{\lambda_0^2 \times \tau}$$

Équation 2-12 : Expression simplifiée de l'intégrale B (rad) [71].  $n_2$  est l'indice non-linéaire du matériau traversé par l'impulsion ( $\text{m}^2/\text{W}$ ) et E l'énergie de l'impulsion (J).

Dans le cas de la voie gaussienne de DERIC, le matériau traversé est l'air dont l'indice non-linéaire vaut  $n_2 = 3,0 \times 10^{-23} \text{ m}^2/\text{W}$  [71]. Avec  $\lambda_0 = 1054 \text{ nm}$  et en considérant la situation la plus à risque à savoir  $\tau = 0,8 \text{ ps}$  (minimum de durée d'impulsion) et  $E = 1,9 \text{ mJ}$  (énergie maximale disponible sur échantillon), nous obtenons  $B = 0,8 \text{ rad}$  ce qui reste inférieur à la plus petite valeur limite de 1 radian que nous avons choisi de considérer. Nous pouvons donc raisonnablement supposer que les impulsions de DERIC ne subissent pas le phénomène d'autofocalisation et que les caustiques établies (Figure 2-17) restent valables en conditions régulières d'expériences. Nous aurons l'occasion de revenir sur cette problématique de l'autofocalisation en section II.B.3.c.

Nous avons par ailleurs remarqué que la surface équivalente diminue systématiquement lorsque la durée d'impulsion augmente (avec les plages 1 et 2, voir Figure 2-18).

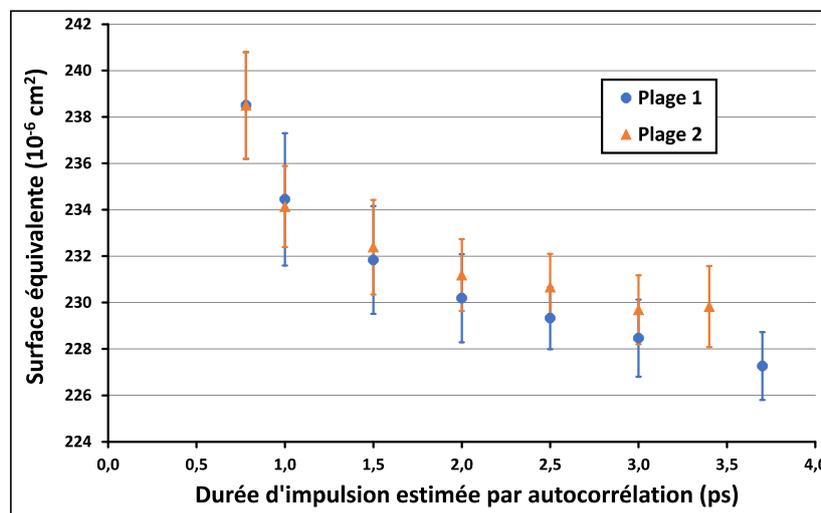


Figure 2-18 : Évolution de la surface équivalente avec la durée d'impulsion sur les plages 1 et 2 (chaque point correspond à 300 acquisitions).

Nous supposons que ce phénomène est lié au probable désalignement entre l'étireur et le compresseur de la source (précédemment discuté). En effet, nous observons que tout comme ce désalignement qui augmente progressivement au fur et à mesure que l'on s'éloigne du minimum d'impulsion, la surface diminue progressivement elle aussi (pour les deux plages). Le plus important est de savoir que ce phénomène se produit, l'emploi d'une voie de prélèvement apparaît ainsi d'autant plus justifié pour garantir une bonne mesure de la surface du faisceau en toutes circonstances.

Enfin, la voie gaussienne est équipée d'un système de détection des dommages par diffusion lumineuse. Nous reviendrons sur le fonctionnement de ce système en section II.B.1.e.

### II.A.3 Voie top-hat

En parallèle de la voie gaussienne, une voie dite top-hat a été récemment développée sur DERIC (synoptique visible en Figure 2-1) pour l'étude de la croissance des dommages (abordée au quatrième chapitre) et de l'endommagement sur défauts (développement à venir dans le cadre d'une prochaine thèse). Tout comme la voie gaussienne, cette voie permet également la détermination du seuil d'endommagement intrinsèque de composants optiques. L'élément central de la voie top-hat est sa lame de phase qui consiste en une lame de silice sur laquelle a été gravé un certain motif (représenté en Figure 2-19).

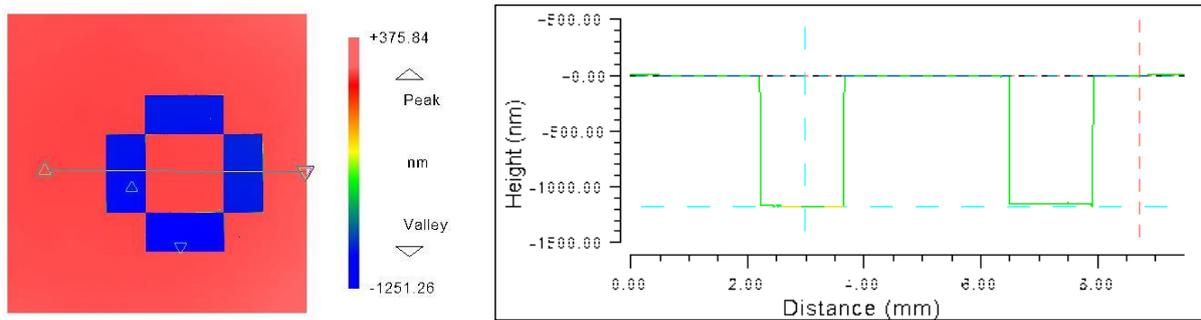


Figure 2-19 : Mesures au rugosimètre du motif de gravure de la lame de phase permettant la formation d'un faisceau top-hat sur DERIC (profondeur de gravure de 1182 nm).

Associée à la lentille de focalisation (focale de 20 cm ici), cette gravure diffracte le faisceau verticalement et horizontalement (en prenant comme orientation de référence celle de l'image à gauche dans la Figure 2-19). Après passage dans la lentille de focalisation, l'évolution du front d'onde du faisceau au cours de sa propagation est alors telle que son profil spatial change continuellement en nature et en taille (Figure 2-21 et annexe 5) contrairement au cas d'un faisceau gaussien dont seule la taille évolue après traversée de la lentille. Parmi les différents profils spatiaux ainsi formés se trouve celui dit top-hat qui est de forme carrée et à répartition homogène de densité surfacique d'énergie (illustration en Figure 2-20). Un tel profil se forme même par deux fois ; l'un se situe au plan focal et l'autre, moins intense mais plus grand et un peu plus homogène, environ 25 mm en amont vers la lentille. C'est ce dernier que nous utilisons principalement pour sa plus grande taille (qui permet une plus grande plage d'étude de la croissance des dommages, abordée au quatrième chapitre) et pour sa meilleure homogénéité (son intensité reste suffisante dans le cadre de nos travaux). Le principal avantage d'une telle répartition de densité d'énergie est de faciliter l'interprétation des expériences menées car l'ensemble de la surface d'échantillon vue par le faisceau est irradiée à fluence constante contrairement par exemple à un faisceau spatialement gaussien. La géométrie carrée du faisceau top-hat est quant à elle un avantage du point de vue de l'étude de l'endommagement sur défauts et de la procédure rasterscan (détaillée en section II.B.1.e). La grande diversité de profils spatiaux disponibles sur la voie top-hat constitue autant une difficulté qu'une opportunité sur lesquelles nous reviendrons au moment d'aborder les caustiques. Dans tous les cas, chaque faisceau constitue en réalité une figure de diffraction : la tache centrale est considérée comme le faisceau mais elle s'accompagne nécessairement de « pieds » dans les directions horizontale et verticale (voir Figures 2-20 et 2-21) contenant une part non négligeable de l'énergie totale (discuté en détail plus en aval).

Le faisceau top-hat ainsi formé mesure environ 150  $\mu\text{m}$  de côté et présente une fluence moyenne maximale de  $3,0 \pm 0,3 \text{ J/cm}^2$  (nous reviendrons plus loin sur l'incertitude de mesure de la fluence du faisceau top-hat). Un tel faisceau peut en effet se caractériser par sa fluence moyenne (dont une méthode de calcul est détaillée dans la légende de la Figure 2-20, d'autres méthodes équivalentes étant données plus loin).

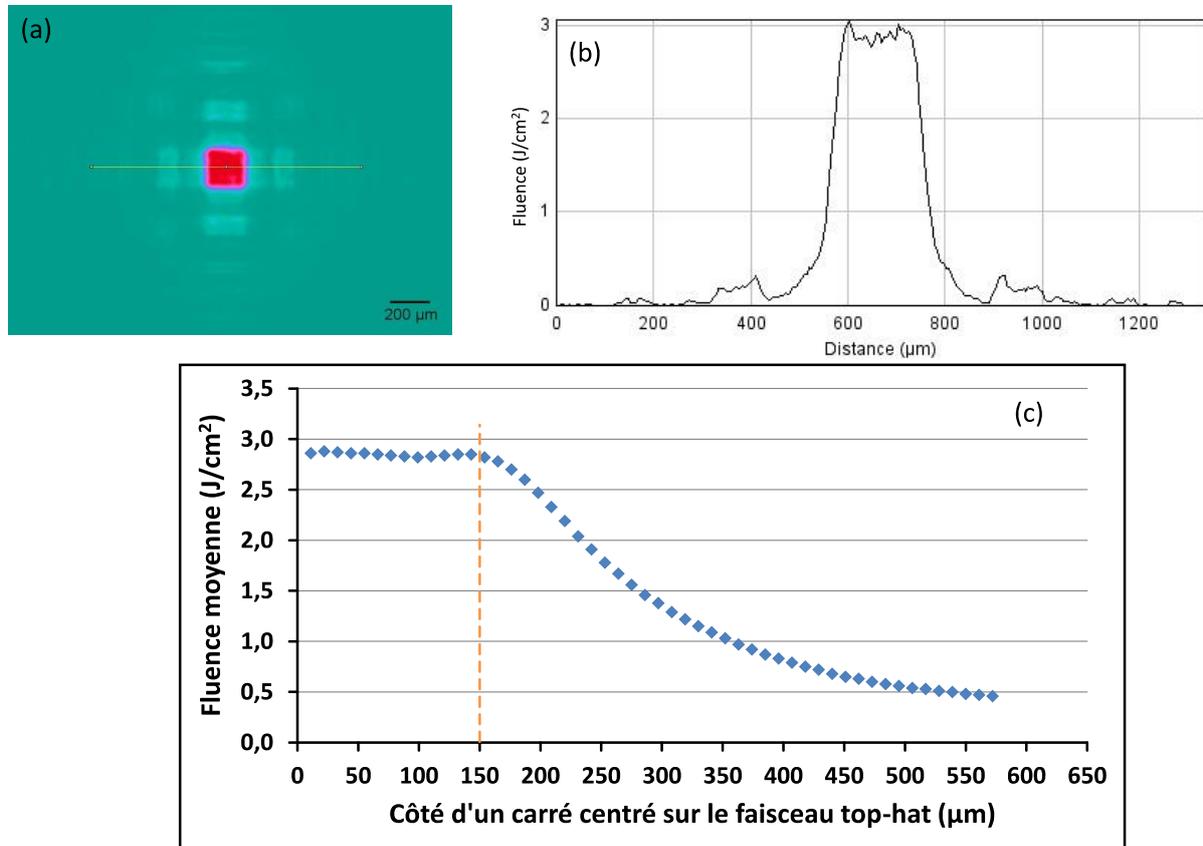


Figure 2-20 : (a) Exemple d'acquisition du profil spatial du faisceau top-hat de DERIC (à l'aide d'une caméra Basler modèle avA1600). (b) Coupe horizontale du faisceau représenté en (a). (c) Évolution de la fluence moyenne dans un carré centré sur le faisceau top-hat présenté en (a) et dont la taille augmente pas à pas (depuis le centre du faisceau). Pour chaque carré, la fluence moyenne se calcule comme la moyenne des fluences de chaque pixel contenu dans le carré : la fluence de chaque pixel est calculée à partir de sa surface élémentaire (carré de côté 5,5  $\mu\text{m}$  pour le modèle de caméra utilisé ; donnée constructeur) et de son énergie (fraction de l'énergie totale suivant la même relation de proportionnalité que l'intensité du pixel par rapport à l'intensité totale contenue dans le profil spatial, le bruit ayant été soustrait). Cette courbe permet à la fois de mesurer à 150  $\mu\text{m}$  le côté du carré principal constituant le faisceau top-hat et d'en déterminer la fluence moyenne. Pour le faisceau représenté en (a), cette dernière est au mieux d'environ 2,9  $\text{J/cm}^2$  (lorsque le profil contient l'énergie maximale accessible sur échantillon, environ 1,9 mJ).

Tout comme pour la voie gaussienne, la mesure de l'énergie arrivant sur échantillon se fait à l'aide de deux détecteurs pyro-électriques (D5 et D6 sur la Figure 2-1) à la seule différence que le détecteur dit de prélèvement (D5) se base sur une mesure d'énergie faite en réflexion (en transmission sur la voie gaussienne).

Comme la voie gaussienne, la voie top-hat est équipée d'une voie de prélèvement dont l'équivalence avec la voie échantillon se vérifie à partir de leurs caustiques respectives. Cette vérification peut se faire visuellement dans le cas de la voie top-hat étant donnée les différentes formes que prend le profil spatial sur cette voie. Les caustiques respectives des voies échantillon et prélèvement de la voie top-hat sont données en Figure 2-21.

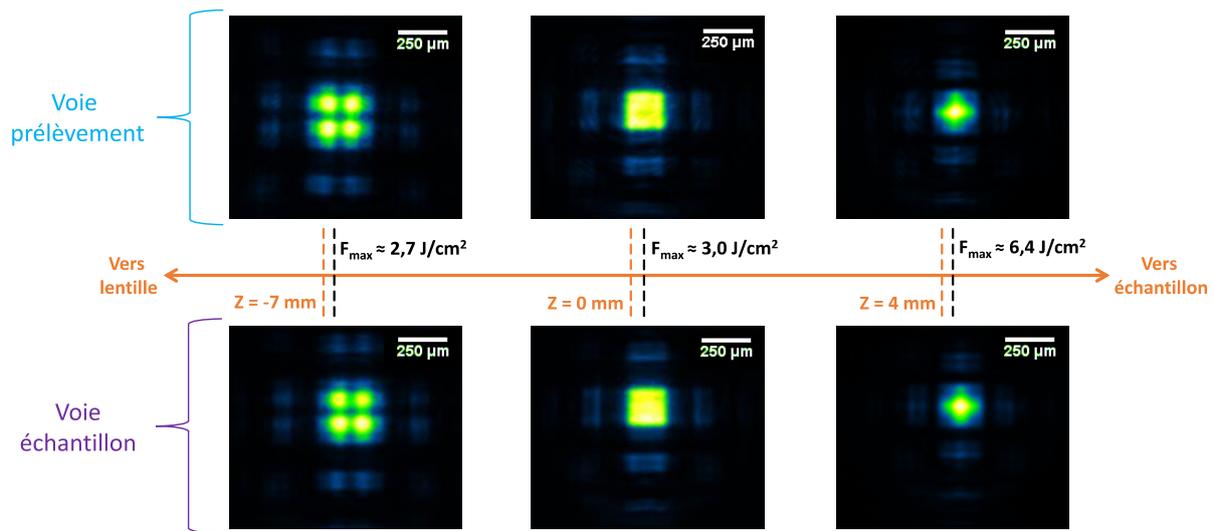


Figure 2-21 : Caustiques sur les voies prélèvement et échantillon de la voie top-hat. Le profil top-hat est placé à  $z = 0$  mm pour les deux voies. Un déplacement négatif (resp. positif) en  $z$  signifie un rapprochement (resp. éloignement) par rapport à la lentille de focalisation. Chaque image dispose de sa propre échelle de couleurs afin de bien rendre visible chaque profil car les niveaux de fluences varient d'une paire de profils à l'autre ; à ce titre sont données les fluences locales maximales de chaque paire de profils (en considérant que le profil contient l'énergie maximale disponible sur échantillon à savoir environ 1,9 mJ).

Nous retrouvons bien une équivalence entre les deux voies. Le faisceau top-hat fait la transition entre une zone dite « matrice » où l'énergie est répartie sur plusieurs points chauds équidistants et peu intenses et une zone dite « étoile » où l'énergie se concentre sur un point chaud très intense au centre du faisceau. Les caustiques représentées en Figure 2-21 sont simplifiées dans le sens où seuls des profils représentatifs des zones « matrice » et « étoile » ont été reportés. Ces deux zones comportent en réalité de nombreux autres profils aux niveaux de fluences très variés ; un panel plus élargi de ces profils ainsi qu'une comparaison entre leurs niveaux de fluences sont donnés en annexe 5. Cette diversité de profils est un avantage comme nous le montrerons en section II.B.2 et au quatrième chapitre mais une contrainte notable qui vient en parallèle est la très courte distance sur laquelle le faisceau peut être considéré comme top-hat. Comme nous allons l'expliquer en suivant, la « zone utile top-hat » ne dépasse pas ainsi 1,5 mm de longueur (là où la voie gaussienne présente une zone utile d'environ 8 mm de long, voir section précédente). Cela requiert un placement très précis de l'échantillon et de la caméra de la voie prélèvement.

#### Caractérisation en surface du faisceau top-hat

La représentation de la caustique de la voie top-hat en Figure 2-21 tire parti des différentes formes que prend le profil spatial sur cette voie, ces dernières étant suffisamment variées pour permettre une représentation visuelle. Cependant, une autre représentation est possible telle que nous l'avons présentée en section précédente à travers la Figure 2-17 avec la caustique de la voie gaussienne qui représente l'évolution de la surface équivalente du faisceau gaussien au cours de sa propagation après traversée de la lentille de focalisation. Une telle représentation est rendue possible par l'application de l'équation 2-10 qui permet de calculer la surface équivalente de tout faisceau. Nous avons ainsi fait de même pour la voie top-hat. Le résultat est donné en Figure 2-22 (où les barres d'erreur ne sont pas visibles pour la majorité des mesures du fait de l'amplitude des valeurs atteintes sur toute la caustique).

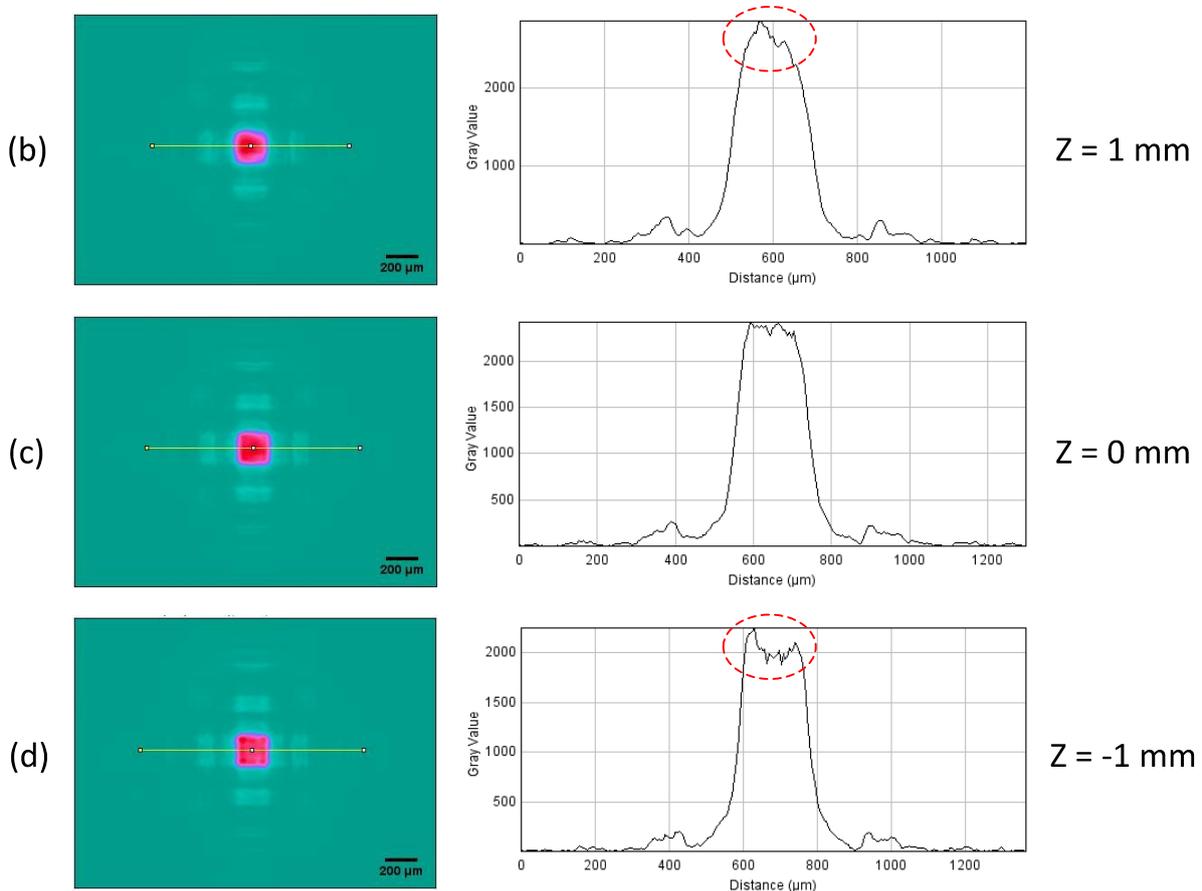
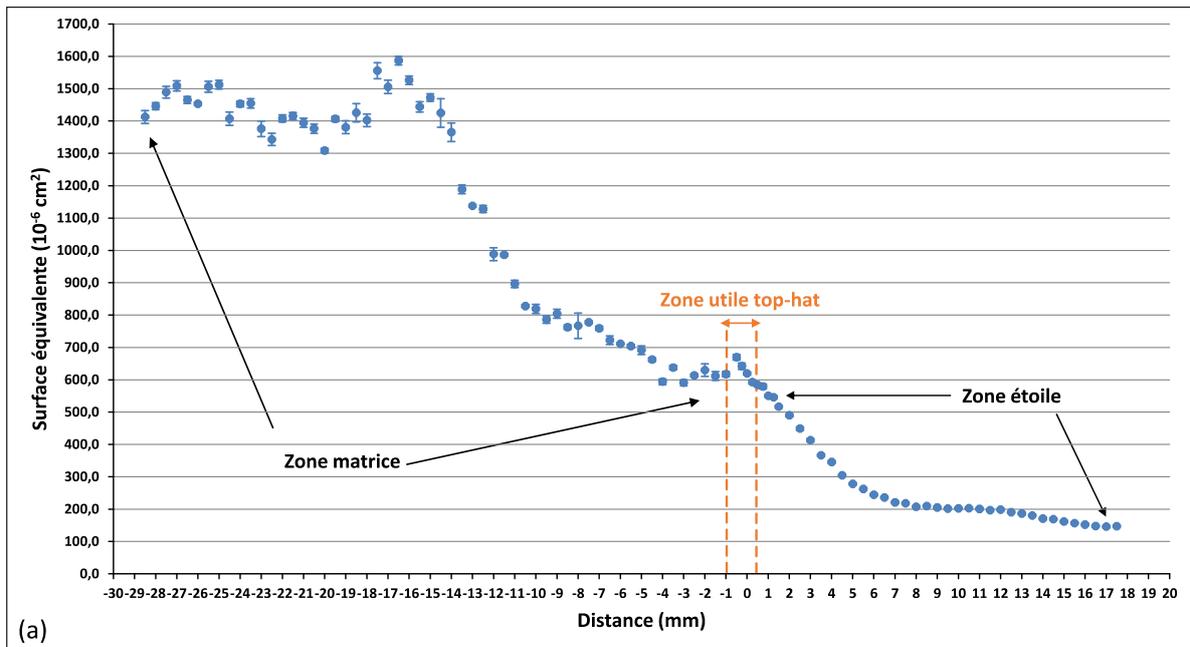


Figure 2-22 : (a) Caustique de la voie top-hat représentée à partir de l'évolution de la surface équivalente du faisceau (à partir d'acquisitions réalisées sur la voie prélèvement, cette dernière étant équivalente à la voie échantillon comme montré en Figure 2-21). La convention de signe pour le déplacement sur l'axe optique est la même que dans la Figure 2-21 (un déplacement négatif signifie un rapprochement vers la lentille de focalisation). Cette représentation de la caustique fait apparaître clairement les deux grands groupes de faisceaux « matrice » et « étoile » entre lesquels se situe une zone très restreinte où le faisceau est top-hat. En effet, par rapport à (c) la position de référence top-hat (définie à  $z = 0$ ,  $z$  étant le déplacement sur l'axe optique), le faisceau présente d'emblée un caractère (d) « matrice » ou (b) « étoile » dès que l'on s'écarte de 1 mm de cette position de référence.

Un premier constat est que la surface équivalente n'évolue pas du tout de la même façon sur la voie top-hat que sur la voie gaussienne. Également, la surface équivalente atteint des valeurs significativement plus élevées sur la voie top-hat par rapport au meilleur faisceau obtenu sur la voie gaussienne dont la surface équivalente est d'environ  $240 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$  (seuls quelques-uns des faisceaux de type « étoile » présentent une surface équivalente plus petite). Ce résultat préfigure déjà le fait qu'il est généralement plus difficile d'endommager sur la voie top-hat que sur la voie gaussienne. En effet, pour un matériau présentant une certaine fluence seuil d'endommagement, l'énergie à apporter pour endommager devra être doublée si la surface équivalente du faisceau utilisé est doublée. Ainsi, seule une partie des faisceaux de type « étoile » est capable d'endommager plus facilement que le meilleur faisceau gaussien (tous ceux dont la surface équivalente est plus petite qu'environ  $240 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$ ). De manière corrélée, l'évolution de la surface équivalente sur la voie top-hat est d'ailleurs inverse à celle de la fluence maximale disponible (dont l'évolution est donnée en annexe 5).

Surtout, la Figure 2-22 fait apparaître trois informations très importantes :

- Elle illustre l'étroitesse de la zone utile top-hat que nous avons estimé à 1,5 mm au grand maximum (voir les Figures 2-22(b) à 2-22(d) qui illustrent cette contrainte). Cette zone est délimitée de part et d'autre par les positions où le faisceau ne peut plus être considéré comme top-hat. Par rapport au meilleur faisceau top-hat (Figure 2-22(c)), l'apparition du caractère « étoile » se fait un peu plus vite (Figure 2-22(b)) que celle du caractère « matrice » (Figure 2-22(d)), c'est pourquoi la zone utile top-hat est légèrement décentrée par rapport à la position du meilleur top-hat (Figure 2-22(a)).
- Ensuite et surtout, la Figure 2-22(a) montre qu'en plus d'être très courte, la zone utile top-hat est caractérisée par une variation très significative de la surface équivalente en son sein à tel point qu'il est impossible de garantir une variation maximale de 2% de cette surface dans cette zone utile comme cela est possible sur la voie gaussienne. En effet, cela nécessiterait une précision de positionnement sur l'axe optique inférieure à la centaine de micromètres ce qui n'est actuellement pas possible sur DERIC (cette précision est au mieux du demi-millimètre, largement suffisante pour la voie gaussienne où la surface équivalente au waist ne varie pas plus de 2% sur une plage de 8 mm). De plus, les positions des faisceaux ne restent en pratique jamais rigoureusement les mêmes. Sur la voie gaussienne comme sur la voie top-hat, nous avons en effet constaté qu'elles peuvent très légèrement bouger d'au plus un millimètre. Ces variations ne sont absolument pas problématiques sur la voie gaussienne mais le sont donc pour la voie top-hat.
- Le dernier point notable est qu'à position donnée dans la zone utile top-hat, la surface équivalente est très stable (variation d'au mieux 1%, c'est pourquoi les barres d'erreur ne sont pas visibles sur la Figure 2-22(a)). Cette stabilité est même identique à celle constatée pour chaque position dans la zone utile de la voie gaussienne (Figure 2-17) ce qui est cohérent car il s'agit seulement de la traduction des fluctuations de la source laser, commune aux deux voies. La forte variation de la surface équivalente observée le long de la zone utile top-hat traduit donc bien directement l'évolution du profil spatial du faisceau.

Au vu de l'ensemble de des contraintes spécifiques à la voie top-hat, nous avons ainsi déterminé (à l'aide des mesures visibles en Figure 2-22(a)) que la surface équivalente du faisceau top-hat sur DERIC est de  $(6,3 \pm 0,5) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$  soit une incertitude de mesure de 8% pour une zone utile de 1,5 mm. Pour rappel et à titre de comparaison, la zone utile sur la voie gaussienne est de 8 mm et l'incertitude de mesure sur la surface équivalente y est de 2% (la surface équivalente étant égale à  $(2,36 \pm 0,05) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ , voir Figure 2-17).

D'autre part, comme mentionné précédemment, il fait aussi sens de caractériser un faisceau top-hat par sa plus grande surface où la densité d'énergie reste homogène. Comme illustré en Figure 2-20(c), cette dernière est un carré d'environ 150  $\mu\text{m}$  de côté. Cela correspond à une surface d'environ  $2,25 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ , une valeur donc différente de la surface équivalente précédemment déterminée (qui correspondrait à un carré d'environ 250  $\mu\text{m}$  de côté). Nous allons voir ci-dessous comment ces deux descriptions alternatives de la surface du faisceau top-hat permettent toujours de le caractériser de manière équivalente en fluence.

### Caractérisation en fluence du faisceau top-hat

Méthode 1 : dans la communauté laser, l'approche largement majoritaire pour caractériser tout faisceau en fluence est celle s'appuyant sur l'équation 2-11 (donnée précédemment) qui définit la fluence d'un faisceau comme le rapport de son énergie sur sa surface équivalente. Le faisceau top-hat de DERIC peut donc être caractérisé en fluence de cette façon. Étant donné que l'énergie maximale sur échantillon est d'environ 1,9 mJ, la fluence maximale pouvant être délivrée par le faisceau top-hat de DERIC est d'environ  $3,0 \pm 0,3 \text{ J/cm}^2$  (en tenant seulement compte de l'incertitude de mesure de la surface équivalente dans la zone utile top-hat).

Méthode 2 : une autre caractérisation en fluence, équivalente à la précédente tout en étant plus locale et surtout spécifique au faisceau top-hat de DERIC, est possible. À partir de la surface carrée caractéristique définie précédemment (carré de 150  $\mu\text{m}$  de côté centré sur le profil), la fluence du faisceau peut se calculer en considérant l'énergie effectivement contenue dans ce carré qui est nécessairement une fraction de l'énergie totale. Nous rappelons en effet que le profil spatial top-hat, comme tous les autres profils spatiaux de la voie top-hat, est une figure de diffraction. À partir de plusieurs acquisitions de profils spatiaux de la zone utile top-hat (telles que celle en Figure 2-20(a)), nous avons estimé à  $36 \pm 3 \%$  la part de l'énergie totale effectivement contenue dans la surface carrée caractéristique de 150  $\mu\text{m}$  de côté (en analysant, après avoir traité le bruit, le rapport entre l'intensité totale des pixels contenus dans cette zone carrée et l'intensité totale de la fenêtre d'acquisition qui contient par définition, une fois le bruit traité, toute l'énergie du faisceau). En considérant de nouveau une énergie maximale de 1,9 mJ, nous retrouvons bien par cette méthode une même fluence maximale pour le faisceau top-hat de  $3,0 \pm 0,3 \text{ J/cm}^2$  (l'incertitude de mesure sur la fluence provient toujours ici de la variabilité des faisceaux dans la zone utile top-hat qui se traduit par une incertitude sur la part d'énergie contenue dans la surface carrée de 150  $\mu\text{m}$  de côté comme indiqué plus haut). Nous avons par ailleurs estimé à environ 70% la part d'énergie contenue dans un carré de 300  $\mu\text{m}$  de côté englobant la tache centrale sans atteindre les quatre pieds principaux périphériques (voir Figure 2-20(a)), ces derniers contenant environ 15% de l'énergie totale et les 15% restant étant répartis dans le reste des axes horizontal et vertical de la figure de diffraction.

**Méthode 3 :** une dernière approche complètement locale (et équivalente aux deux précédentes) est possible en s'appuyant sur les fluences de chaque pixel du profil spatial top-hat enregistré sur la voie prélèvement. Cette approche a été décrite en légende de la Figure 2-20 (qui fait intervenir un profil top-hat de surface équivalente  $6,5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$  et une part d'énergie de 34% dans la zone carrée centrale de  $150 \mu\text{m}$  de côté d'où une fluence moyenne maximale d'environ  $2,9 \text{ J/cm}^2$  quand ce profil contient l'énergie maximale disponible à savoir environ  $1,9 \text{ mJ}$ ).

Insistons bien une dernière fois sur le fait que les trois méthodes sont équivalentes ; elles donnent le même résultat en fluence pour tout profil de la zone utile top-hat. Nous ferons aussi remarquer qu'à l'instar d'un faisceau gaussien, la fluence ainsi calculée du faisceau top-hat correspond à sa fluence maximale en section droite (de laquelle peut se déduire la fluence sur échantillon via multiplication par le cosinus de l'angle d'incidence).

Enfin, comme illustré en Figure 2-23, la voie top-hat est équipée d'un macroscopie (microscopie opérant à une plus grande distance de travail qu'un microscopie classique) pour l'observation *in situ* des dommages. Ce système est notamment composé d'un zoom motorisé (modèle Zoom 12X de chez Navitar) et d'un système d'éclairage à LED intégré (fonctionnant en réflexion). Au zoom maximum, le champ observé est de  $550 \mu\text{m} \times 415 \mu\text{m}$  avec une résolution d'environ  $4 \mu\text{m}$ .

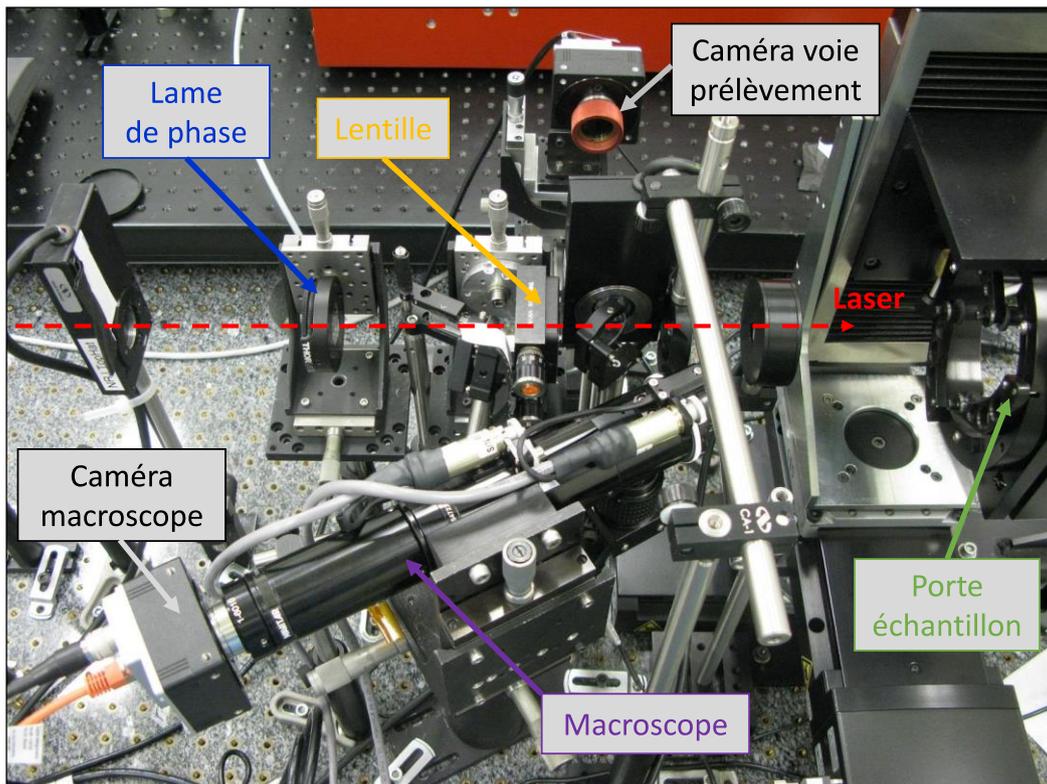


Figure 2-23 : Photographie de la voie top-hat de DERIC. Le macroscopie se situe au bas de l'image ; il est placé à la normale de la surface de l'échantillon pour assurer la netteté du site observé.

Le macroscopie permet notamment l'observation de la croissance d'un dommage c'est-à-dire lorsqu'il est soumis à plusieurs irradiations successives (la caméra Basler modèle avA1600 reliée au macroscopie est synchronisée sur le taux de répétition de la source laser). Nous décrivons ci-dessous dans ses grandes lignes la procédure mise en place pour l'étude de la

croissance des dommages lasers (le détail de cette procédure est donné au quatrième chapitre où sont abordées les expériences de croissance des dommages).

Procédure d'étude de la croissance des dommages sur la voie top-hat de DERIC : nous mettons à profit la diversité des profils spatiaux de cette voie pour étudier la croissance. Un profil « étoile » similaire à celui de la Figure 2-21 est d'abord utilisé pour créer une série d'amorces intrinsèques de tailles contrôlées à l'angle d'incidence prévu pour l'étude (ce profil étant très intense en son centre, il peut endommager très localement moyennant un contrôle fin de l'énergie). Ensuite, chaque amorce est irradiée avec un profil top-hat similaire à celui de la Figure 2-21 selon la fluence souhaitée avec le microscope enregistrant en direct toute la séquence d'irradiation. L'intérêt d'employer un profil top-hat pour étudier la croissance d'un dommage laser est de permettre une irradiation homogène sur le dommage et donc de découpler le phénomène de croissance de la fluence d'irradiation. Quel que soit l'angle d'incidence utilisé, le microscope est orienté de manière à ce que son axe soit normal au plan d'incidence de l'échantillon pendant chaque séquence de croissance. La grandeur retenue pour l'étude de la croissance d'un dommage est sa surface endommagée ; toutes les acquisitions au microscope permettent ainsi de reconstituer l'évolution tir à tir de l'évolution de la surface endommagée.

## **II.B Qualification du banc DERIC**

Avant de réaliser toute expérience sur un banc d'endommagement laser, ce dernier doit d'abord être qualifié : d'une part, le banc doit être capable de mettre en œuvre les méthodes de qualification existantes des composants optiques. D'autre part, tous les efforts doivent être faits pour que ce banc fournisse des mesures les plus justes possibles. Nous nous proposons ainsi de décrire l'ensemble des méthodes de qualification pouvant être mises en œuvre sur DERIC ainsi que les tests de qualification menés afin de garantir une bonne mesure sur la voie gaussienne comme sur la voie top-hat.

### **II.B.1 Méthodes de qualification de composants optiques**

Dans le cadre de l'endommagement laser, la qualification de composants optiques se fait à travers la mesure de plusieurs grandeurs qui prises dans leur ensemble ont pour objectif de quantifier au mieux la tenue au flux laser de toute optique. Cela nécessite ainsi différentes procédures de tests que nous nous proposons de décrire ici. Certaines de ces procédures font l'objet d'une définition au sein de la norme ISO 21-154 [24] dans une volonté de standardiser les procédures de tests dans la communauté de l'endommagement laser. Nous aurons l'occasion d'illustrer à la fin de ce chapitre ainsi que dans le troisième chapitre le rôle majeur de la méthode de qualification adoptée dans la mesure de grandeurs caractéristiques de la tenue au flux laser d'une optique.

#### **II.B.1.a 1-on-1**

La procédure 1-on-1 est probablement la plus utilisée au sein de la communauté de l'endommagement laser. Elle fait l'objet d'une définition dans la norme ISO 21-154. Son objectif est de déterminer le seuil d'endommagement intrinsèque d'un composant optique pour un tir unique, seuil couramment désigné par LIDT pour Laser Induced Damage Threshold. Une matrice de sites est générée où le nombre de colonnes correspond au nombre de fluences

tests essayés et le nombre de lignes au nombre de tirs effectués par fluence test. Par définition de la procédure, chaque site ne reçoit qu'un tir. Une approche dichotomique suffit amplement à limiter le nombre de fluences tests tout en assurant un bon encadrement de la fluence seuil. La norme ISO 21-154 définissant un dommage laser comme toute modification irréversible d'un matériau après irradiation laser et visible à l'aide d'un microscope DIC, toute matrice 1-on-1 est donc observée *post-mortem* au microscope DIC pour statuer sur l'état d'endommagement de chaque site (disposer d'un moyen de détection des dommages *in situ* peut aider à orienter le choix des premières fluences de tests pour optimiser encore plus la recherche dichotomique mais l'observation sous microscope DIC *post-mortem* reste nécessaire dans tous les cas). Cette norme demande également à traduire les résultats en termes de probabilité d'endommagement par fluence :

$$p_{\text{end},F} = \frac{n_{\text{dom},F}}{N}$$

Équation 2-13 : Définition de  $p_{\text{end},F}$  ; la probabilité d'endommagement à une fluence donnée.  $n_{\text{dom},F}$  désigne le nombre de sites endommagés à la fluence  $F$  et  $N$  le nombre total de sites irradiés à cette fluence.

L'ensemble du protocole 1-on-1 est illustré en Figure 2-24.

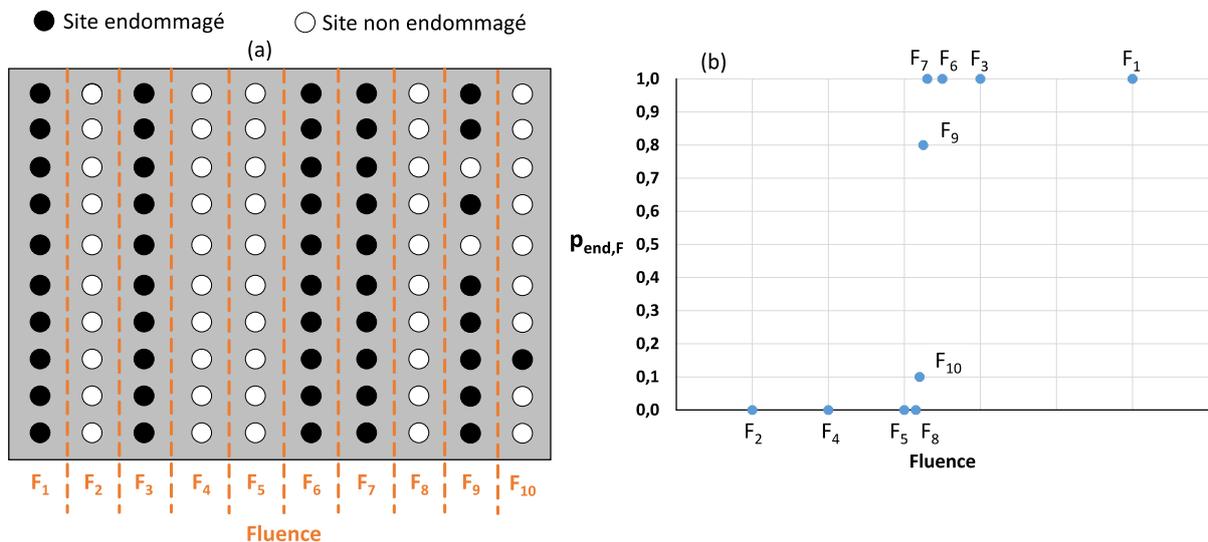


Figure 2-24 : (a) Exemple de matrice typique de la procédure 1-on-1 où la recherche du seuil se fait de manière dichotomique. (b) Courbe correspondante de probabilité d'endommagement par fluence.

Le LIDT est alors défini comme la moyenne entre la plus haute fluence pour laquelle la probabilité d'endommagement est nulle et la plus petite fluence pour laquelle la probabilité d'endommagement est non nulle ( $0,5 \times (F_8 + F_{10})$  dans la Figure 2-24). L'incertitude de mesure est quant à elle définie comme l'écart entre le LIDT et ces fluences limites ( $0,5 \times (F_{10} - F_8)$  en reprenant l'exemple de la Figure 2-24).

**Remarque :** nous emploierons indifféremment les termes d'incertitude, d'erreur et de précision de mesure tout au long du manuscrit pour désigner l'écart par rapport à la mesure principale (la méthode de calcul de cet écart sera systématiquement donnée).

Cette traduction des résultats en probabilité d'endommagement par fluence est parfaitement adaptée au cas du régime nanoseconde qui est par nature probabiliste (comme expliqué au premier chapitre en section I.B.2) car venant de défauts présents dans le matériau dont les localisations sont inconnues. Dans le cas des régimes picoseconde et femtoseconde,

l'endommagement laser est déterministe (voir de nouveau section I.B.2). Idéalement, pour une fluence de consigne donnée, on ne devrait observer soit aucun endommagement (fluence de consigne inférieure au LIDT) soit un endommagement systématique (fluence de consigne supérieure ou égale au LIDT) indépendamment du nombre de sites irradiés à cette fluence. Cependant, toute installation laser est sujette à des fluctuations d'énergie et de surface de son faisceau. Il est donc inévitable d'observer des fluctuations de la fluence au sein d'une colonne où une fluence de consigne a été fixée. Lorsque cette consigne est proche du seuil d'endommagement, il devient alors possible d'observer un endommagement pour seulement certains sites de cette colonne. Si l'installation a la capacité de mesurer l'énergie et la surface de chaque tir (le cas pour DERIC), alors elle peut aller au-delà de la notion de probabilité d'endommagement en attribuant une fluence et un état d'endommagement pour chaque tir. Cela permet d'affiner la mesure du LIDT (comme l'ont montré Laurence et al. [73]). La précision de mesure dépend aussi de la qualité d'échantillonnage des fluences de tests (ce à quoi une approche dichotomique suffit amplement). La Figure 2-25 donne un exemple de résultat 1-on-1 analysé tir à tir accompagné de quelques illustrations correspondantes des dommages observés sous microscope DIC lors de cette séquence (effectuée sur une monocouche de  $\text{HfO}_2$ ).

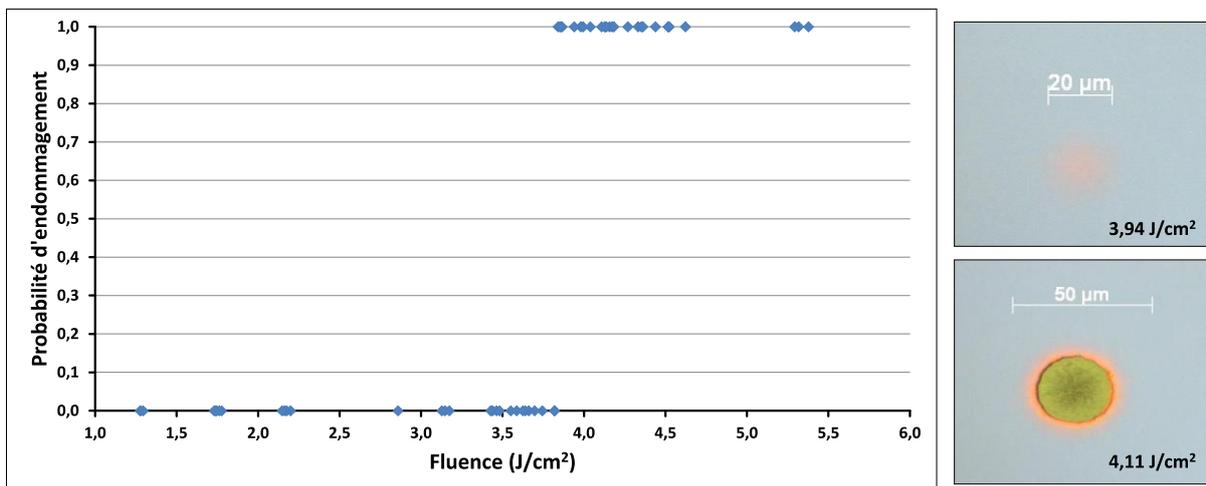


Figure 2-25 : Exemple de résultat 1-on-1 analysé tir à tir (fluence attribué à chaque tir) pour une monocouche d'oxyde d'hafnium  $\text{HfO}_2$  dont le seuil a été ici déterminé à  $3,85 \pm 0,01 \text{ J/cm}^2$  (test réalisé à  $45^\circ$  d'incidence et une durée d'impulsion de 0,8 ps). À droite sont reportées deux observations sous microscope DIC de dommages initiés sur cette monocouche.

L'inconvénient majeur de la procédure 1-on-1 est qu'elle nécessite plusieurs sites de tests même si leur nombre peut être optimisé en jouant sur le nombre de fluences tests et le nombre de sites par fluence. Cette procédure peut donc s'avérer gourmande en termes de surface d'échantillon consommée, limitant ainsi la surface disponible pour les expériences. Face à cette problématique, une procédure beaucoup plus économe en surface, plus rapide à mettre en œuvre et toute aussi précise a été développée. Cette procédure appelée Monoshot est décrite dans la prochaine section.

### II.B.1.b Monoshot

Récemment développée au CEA-CESTA par Sozet et al. [74], la procédure Monoshot a pour objectif de mesurer le LIDT d'une optique en un seul tir sur un seul site, se distinguant notamment de la procédure 1-on-1 qui nécessite plusieurs sites. Un tir à haute énergie est effectué pour volontairement endommager le matériau et bien imprimer le faisceau. L'idée est alors de faire correspondre le profil spatial de l'impulsion ayant servi à endommager (ce profil ayant été enregistré lors du tir) avec le contour du dommage créé (observé au microscope DIC), ce contour étant associé au début de l'endommagement et déterminé à partir d'un contour dit d'ablation (comme illustré en Figure 2-26). Les phénomènes d'ablation et d'endommagement sont en effet à distinguer, l'endommagement précédant nécessairement l'ablation. Le contour d'endommagement est alors reporté sur le profil spatial du faisceau pour lequel une fluence dite locale a été calculée pour chaque pixel (à partir de l'énergie du tir également enregistrée sur le moment). Le LIDT est alors calculé comme la moyenne de toutes les fluences locales se trouvant le long du contour d'endommagement, l'incertitude de mesure étant ici l'écart-type au sein de cette gamme de fluences.

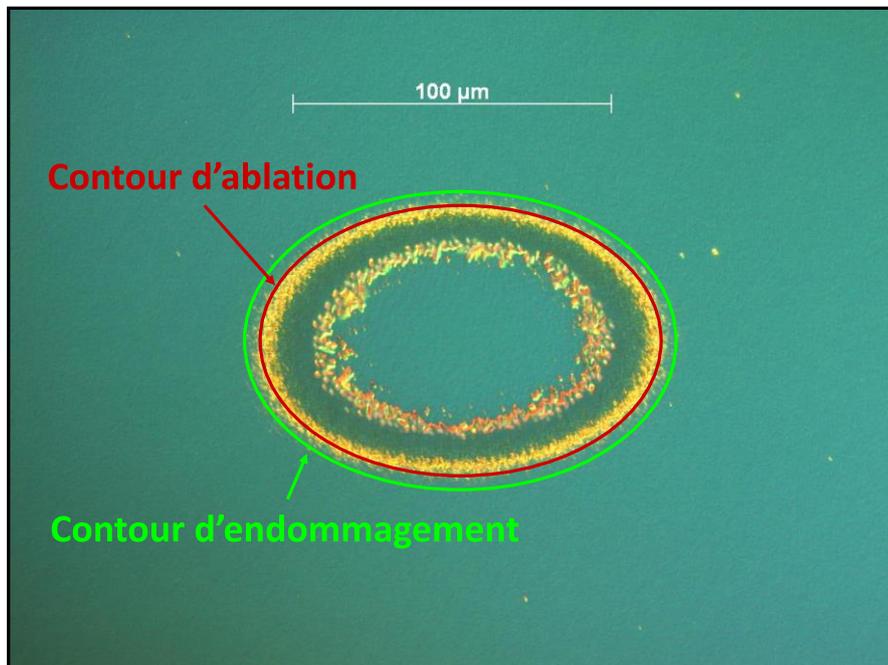


Figure 2-26 : Exemple de tir Monoshot effectué sur un miroir diélectrique à partir d'un faisceau gaussien (forme elliptique car l'angle d'incidence est de  $45^\circ$ ). Un contour d'endommagement (en vert) est déterminé à partir d'un contour d'ablation (en rouge). Le LIDT est calculé comme la moyenne des fluences se trouvant le long du contour d'endommagement (une fois celui-ci reporté sur le profil spatial correspondant à l'impulsion du tir).

La procédure de Monoshot se caractérise ainsi par une approche locale en attribuant une fluence pour chaque pixel du profil spatial là où la procédure 1-on-1 se caractérise par une approche globale en attribuant une seule fluence au faisceau. Sozet et al. ont démontré que l'approche Monoshot permet une mesure du LIDT tout aussi précise que l'approche 1-on-1 en régime sub-picoseconde [74]. Nous noterons que les deux procédures font intervenir la subjectivité de l'opérateur, lors de la détermination de l'état d'endommagement sous observation au microscope dans le cas du 1-on-1 et lors de la détermination du contour d'endommagement dans le cas du Monoshot. Nous reviendrons sur cette dernière dans le troisième chapitre où nous pousserons son utilisation jusque dans le régime picoseconde.

## II.B.1.c S-on-1

La procédure S-on-1 est une variante de la procédure 1-on-1, la seule différence étant que chaque site est ici irradié S fois à même fluence de consigne (S pour Same). Cette procédure met en lumière le phénomène de fatigue des matériaux et sert à évaluer la durée de vie des optiques qui sont soumises à plusieurs irradiations. Pour des matériaux diélectriques, on observe systématiquement une diminution du seuil d'endommagement au fur et à mesure que S augmente, le seuil finissant par varier de manière asymptotique avec S. Ce régime asymptotique est atteint plus ou moins rapidement selon la durée d'impulsion et le matériau en jeu [60-61] comme illustré en Figure 2-27.

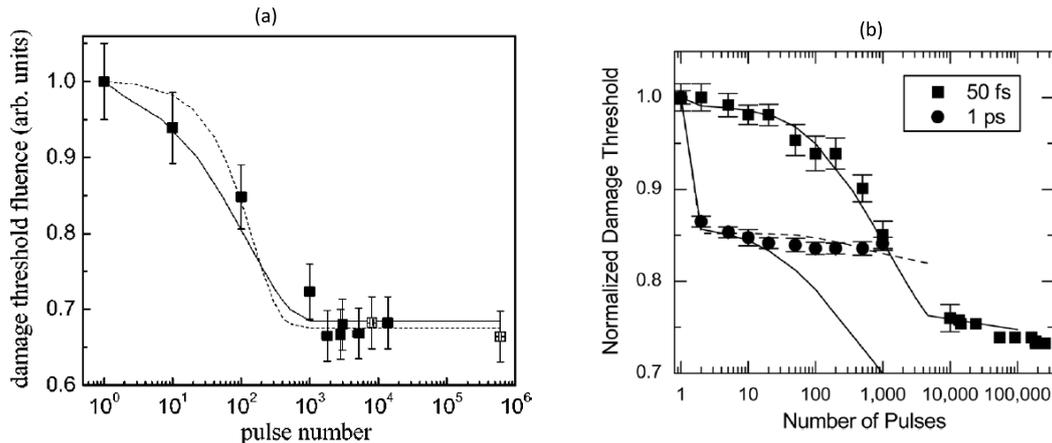


Figure 2-27 : Évolution du seuil d'endommagement intrinsèque en fonction du nombre d'irradiations. (a) Cas d'une monocouche de Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> irradiée avec des impulsions de 30 fs [60]. (b) Cas d'une monocouche de HfO<sub>2</sub> irradiée avec des impulsions de 50 fs et 1 ps [61]. Les lignes en trait plein ou pointillés correspondent aux différents modèles numériques développés au cours des deux études référencées.

Le cas d'irradiations multiples pose également la question de l'impact du taux de répétition. Mero et al. [60] n'ont constaté aucune influence de ce paramètre entre 1 Hz et 1 kHz pour une procédure 100-on-1 (voir Figure 2-28(a)). Ce résultat est en accord avec l'étude de Eaton et al. [75] qui montre que le taux de répétition a une influence seulement à partir de plusieurs centaines de kHz (effets d'accumulation thermique car la chaleur générée par une impulsion n'a plus le temps de se dissiper complètement par diffusion thermique avant l'arrivée de l'impulsion suivante, voir Figure 2-28(b)).

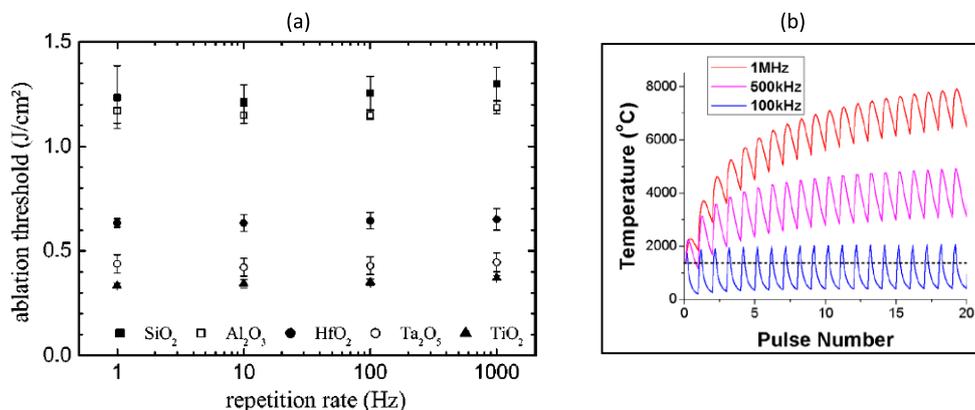


Figure 2-28 : (a) Évolution, à 800 nm et 30 fs, du seuil 100-on-1 pour cinq oxydes différents et un taux de répétition compris entre 1 Hz et 1 kHz ; ce dernier n'apparaît pas avoir d'impact sur le seuil [60]. (b) Influence du taux répétition sur la température au sein d'un verre borosilicate irradié par plusieurs impulsions centrées à 1045 nm et d'une durée de 375 fs [75].

### II.B.1.d R-on-1

Bien qu'elle ne soit pas référencée dans la norme ISO 21-154, la procédure R-on-1 est une variante de la procédure S-on-1. Lors de ce protocole de test, chaque site est exposé à plusieurs tirs de fluence croissante (généralement grâce à une lame demi-onde motorisée) avec en parallèle un système de détection de dommages par diffusion lumineuse qui enregistre tir à tir la quantité de lumière diffusée [76-77]. L'apparition d'un dommage est immédiatement repérée par la hausse du signal diffusé ; le seuil d'endommagement R-on-1 correspond alors à la fluence ayant provoqué cette hausse.

Une variante de cette procédure existe [63,78] dans le cas où les expériences sont menées sous vide et que l'état de l'échantillon ne peut donc pas être vérifié après chaque tir. Un site vierge est alors soumis à une première salve d'irradiations pour une fluence de consigne donnée. À l'issue de cette salve, le site est observé pour statuer sur son état d'endommagement. Si aucun dommage n'est constaté, la fluence de consigne est augmentée et l'échantillon est soumis à une nouvelle salve (comportant le même nombre d'irradiations). Si un endommagement est constaté à l'issue d'une certaine salve, le dommage est attribué à la plus haute fluence enregistrée lors de celle-ci (rappel : même si une fluence de consigne a été fixée, il y a toujours des variations autour de cette consigne). Cette variante impose donc également d'être capable de mesurer la fluence de chaque tir (à minima la valeur moyenne d'un ensemble de tirs faits à même fluence de consigne).

La procédure R-on-1 se veut plus généralement représentative du comportement des optiques soumises à plusieurs irradiations de fluences différentes où la tenue au flux résulte alors d'une compétition entre les phénomènes de conditionnement et de fatigue [60,63]. La procédure R-on-1 n'a pas été utilisée lors de cette thèse mais sera de nouveau évoquée au troisième chapitre lors de l'étude de l'endommagement sur défauts. Cette problématique fait appel à une procédure à part qui est décrite dans la prochaine section.

### II.B.1.e Rasterscan

Les procédures présentées précédemment ont en point commun d'irradier de faibles surfaces d'échantillon. Ceci est particulièrement vrai pour la procédure Monoshot, la minimisation de la surface irradiée (et donc consommée) étant justement un de ses principaux objectifs. Pour les trois procédures 1-on-1, S-on-1 et R-on-1, toutes font appel à des matrices de sites où la surface totale irradiée se résume donc seulement à celle de tous les sites irradiés (la surface consommée est par contre beaucoup plus grande puisqu'elle correspond à celle de la matrice). Dans tous les cas, ce faible ratio entre surface irradiée et surface totale de l'échantillon ne donne qu'un point de vue tronqué sur la tenue au flux de l'optique étudiée : ce ratio garantit seulement la mesure du seuil d'endommagement laser (1-on-1, 10-on-1, 100-on-1 etc...) caractéristique du ou des matériaux constitutif(s) de cette optique mais ne permet pas d'être représentatif de sa qualité globale. Il est en effet avéré que des particules parasites (défauts) sont introduites au sein de tout matériau durant son procédé de dépôt ; ces défauts fragilisent l'optique en diminuant sa résistance au flux laser [55]. La qualification de toute optique doit donc aussi passer par une quantification de la distribution de ces défauts au sein de l'optique afin de connaître la limitation en TFL qu'ils induisent et in fine d'améliorer les procédés de fabrication. Puisqu'à ce jour il n'existe toujours aucune technique non destructive pour y parvenir de manière satisfaisante [79], une procédure spéciale appelée rasterscan a été

développée par Lamaignère et al. [80] afin de quantifier la densité surfacique de défauts. Ce mesurande la démarque notamment des autres procédures précédemment décrites qui déterminent chacune un seuil d'endommagement.

La procédure rasterscan consiste à irradier ligne par ligne une importante surface d'échantillon en le déplaçant alors même que la source laser délivre des impulsions à son taux de répétition. Chaque nouveau tir irradie une nouvelle portion de surface juste à côté de celle irradiée par le tir précédent. La vitesse de déplacement de l'échantillon dépend de la fréquence de répétition de la source laser et, dans le cas d'un faisceau gaussien (forcément circulaire), du taux de recouvrement souhaité tir à tir pour ne pas laisser trop de surface non irradiée entre chaque tir. Ce taux est généralement d'au moins 80% signifiant que pour chaque impulsion, seule la portion de son profil spatial comprise entre 80 et 100% du maximum d'intensité n'est pas recouverte par les impulsions voisines. Travailler avec un faisceau top-hat carré (tel que décrit en section II.A.3) présente un triple avantage du point de vue de la procédure rasterscan : tout d'abord, la surface totale irradiée est bien mieux définie géométriquement (rectangulaire la plupart du temps). Ensuite, la question du recouvrement tir à tir devient beaucoup moins problématique ce qui permet aussi de s'affranchir encore mieux des phénomènes de fatigue et de conditionnement (rigoureusement, les pieds de deux tirs top-hat consécutifs se recouvrent mais comme mentionné plus haut, ces pieds sont très peu énergétiques). Enfin, la même fluence peut être attribuée à tout dommage induit sur défaut observé après irradiation.

Remarque : dans le cadre des travaux menés sur l'endommagement sur défauts à l'aide de la voie gaussienne (travaux présentés au troisième chapitre), nous ferons l'approximation que les dommages induits n'ont été irradiés qu'une seule fois.

La Figure 2-29 illustre la procédure rasterscan avec un faisceau circulaire gaussien ou un faisceau carré top-hat.

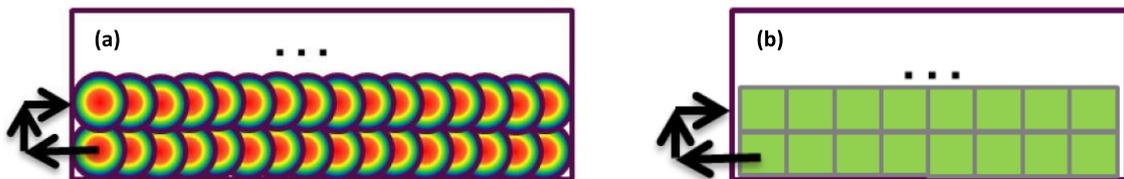


Figure 2-29 : Schéma représentatif de la procédure rasterscan [22]. La surface d'étude est irradiée ligne par ligne en déplaçant l'échantillon par rapport au laser (qui pointe toujours au même endroit au dépointage près). (a) Balayage rasterscan réalisé à l'aide d'un faisceau spatialement gaussien. (b) Balayage rasterscan réalisé à l'aide d'un faisceau spatialement top-hat. Seule le cas (a) est présentement possible sur DERIC avec la voie gaussienne (des travaux lors d'une future thèse implémenteront la procédure rasterscan sur la voie top-hat).

La surface balayée doit être suffisamment grande pour être le plus représentatif possible de la distribution des défauts dans le composant (plusieurs balayages peuvent être effectués à différents emplacements). La question de la représentativité se posera toujours tant que l'optique entière ne sera pas irradiée mais il faut aussi prendre en compte le temps de mise en œuvre (réalisation de la procédure puis traitement des données) et à quel point l'optique peut être irradiée pour ces tests de qualification (autres tests prévus ou si le composant est censé retourner sur chaîne). Actuellement, la procédure rasterscan constitue le meilleur compromis face à ces contraintes surtout au niveau de la représentativité. Comparée à toutes

les autres procédures précédemment décrites, elle permet en effet d'irradier des surfaces environ cent à mille fois plus grandes.

Un autre point fondamental est que tout balayage rasterscan se fait nécessairement à une fluence inférieure au LIDT de l'optique puisque cette procédure s'intéresse à ses défauts et non à ses propriétés intrinsèques (ce qui implique d'avoir préalablement déterminé le LIDT). La fluence peut même être réglée de manière à être par exemple inférieure au seuil 100-on-1 pour limiter le plus possible l'impact du phénomène de fatigue [22].

Enfin, la procédure rasterscan nécessite un système capable de détecter en direct la formation d'un dommage induit sur défaut car il serait beaucoup trop coûteux en temps d'observer sous microscope l'ensemble de la surface balayée sans compter qu'il faudrait avoir observé cette surface au préalable avant irradiation pour être certain de n'observer que des dommages issus de l'irradiation et non des défauts déjà présents en surface mais n'évoluant pas sous irradiation. La voie gaussienne de DERIC est équipée d'un tel dispositif ; il s'agit d'un système de détection de dommages par diffusion lumineuse. Son principe de fonctionnement est illustré en Figure 2-30.

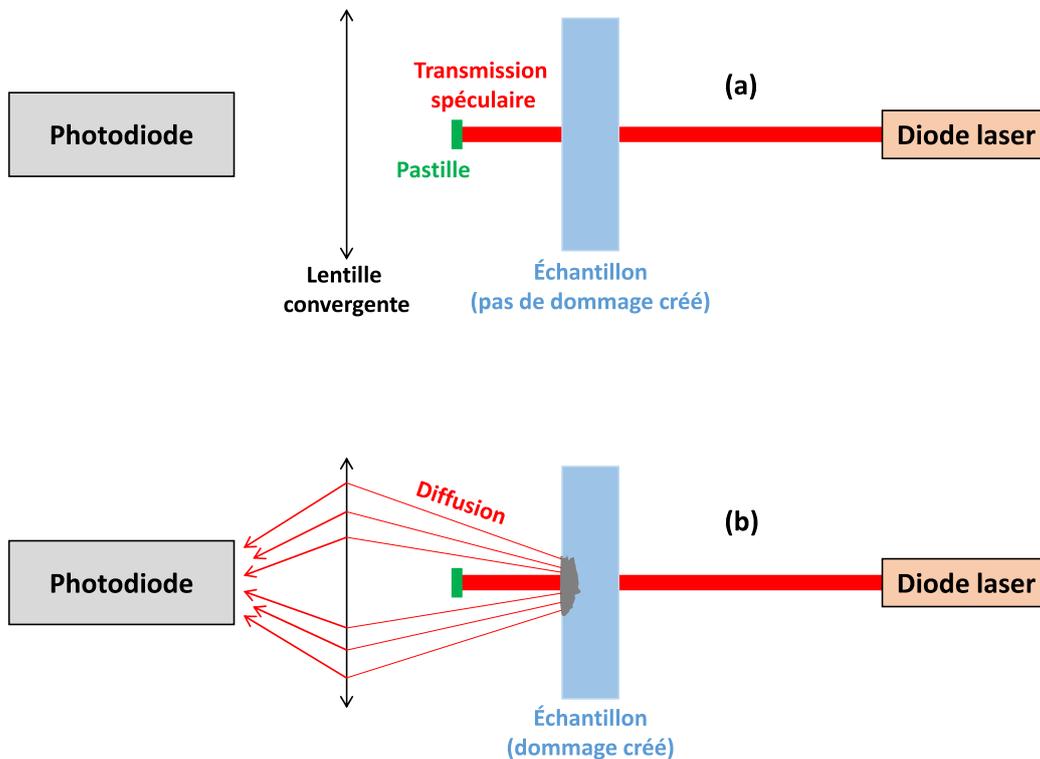


Figure 2-30 : Principe de fonctionnement du système de détection de dommages par diffusion lumineuse installé sur la voie gaussienne de DERIC. (a) En l'absence de dommage, aucun signal n'est reçu sur la photodiode. (b) La présence d'un dommage cause la diffusion d'un signal lumineux issu d'une diode laser ; ce signal diffusé est mesuré par une photodiode grâce à une lentille.

Un faisceau sonde délivré par diode laser (633 nm) illumine en continu le point situé sur la face avant de l'échantillon qui est irradié par l'impulsion laser de DERIC. Synchronisée sur un signal d'horloge (trigger) fourni par la source laser, une photodiode couplée à un oscilloscope enregistre sur une plage temporelle adéquate l'intensité du signal lumineux du faisceau sonde transmis à travers l'échantillon avant et après irradiation. Une pastille bloque la transmission spéculaire du faisceau sonde de sorte que seule la diffusion lumineuse provoquée par

l'apparition d'un dommage puisse parvenir à la photodiode (à l'aide d'une lentille qui collecte les rayons lumineux diffusés, voir Figure 2-30). C'est en comparant les niveaux d'intensités reçus avant et après irradiation que le système indique si un dommage a été formé ou non (une augmentation d'intensité signifiant l'apparition d'un dommage, voir Figure 2-31).

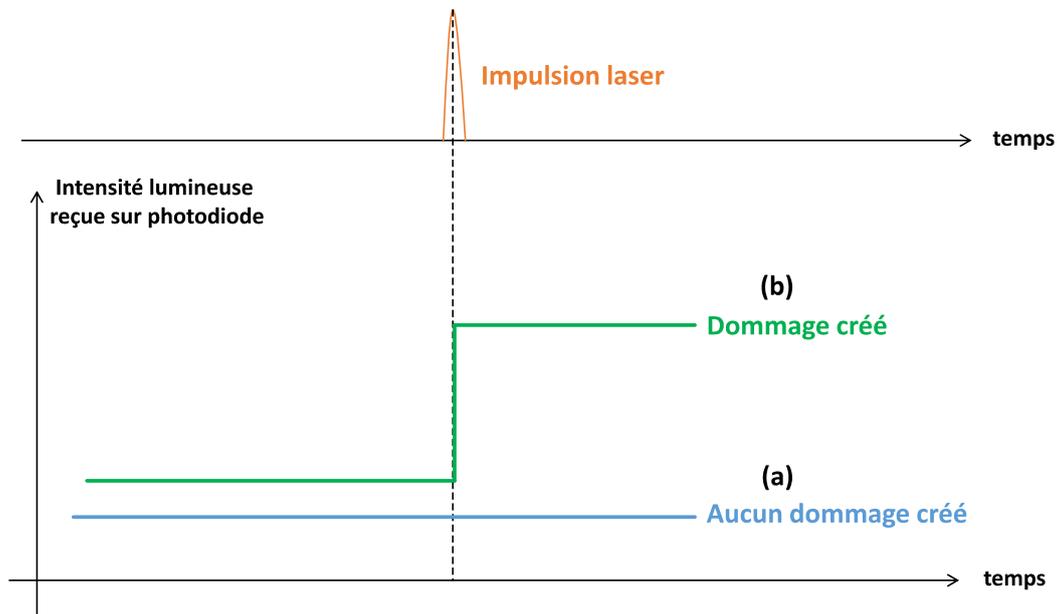


Figure 2-31 : Courbes (idéalisées) vues sur oscilloscope dans les cas où (a) aucun dommage n'est créé ou (b) lorsqu'un dommage est créé. Un signal d'horloge (trigger) fourni par la source laser permet de régler la fenêtre temporelle sur laquelle est reportée l'intensité lumineuse enregistrée par la photodiode.

En plus d'être une composante fondamentale pour l'étude de l'endommagement sur défauts, ce système de détection facilite également celle de l'endommagement intrinsèque lors d'une procédure 1-on-1 : ce type d'endommagement cause en effet une hausse de signal bien plus importante qu'un endommagement sur défauts, hausse généralement visible à l'œil nu qui permet ainsi à l'opérateur d'ajuster en direct le choix de la fluence test.

Nous allons à présent décrire en détail la méthodologie mise en place autour de ce système de détection des dommages essentiellement pour l'étude de l'endommagement sur défauts.

### II.B.1.e.i Méthodes d'analyse

Analyse des signaux du système de détection : les courbes d'intensité lumineuse fournies par la photodiode sont bruitées (voir Figure 2-32) ce qui nécessite un minimum d'analyse pour comparer les signaux reçus avant et après irradiation.

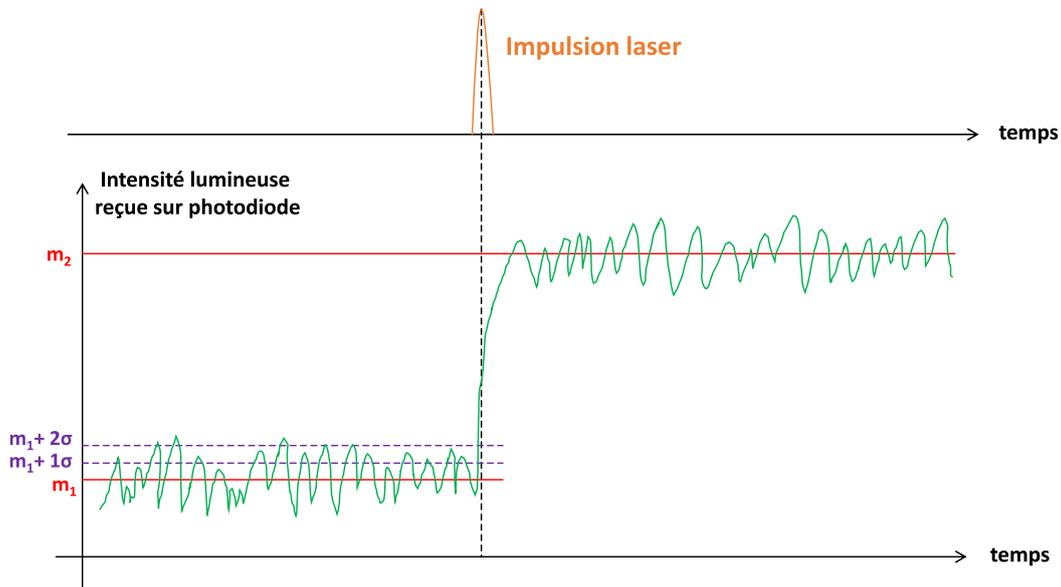


Figure 2-32 : Illustration de l'aspect bruité des signaux lumineux enregistrés par la photodiode.

Les intensités reçues avant irradiation sont caractérisées par une moyenne  $m_1$  et un écart-type  $\sigma$  tandis que les intensités reçues après irradiation sont caractérisées par une moyenne  $m_2$  (sur la Figure 2-32,  $m_2$  est volontairement très supérieure à  $m_1$  afin d'illustrer le propos). Un premier critère consiste alors à dire qu'un dommage s'est formé si  $m_2 > m_1 + \sigma$  (ou qu'aucun dommage n'a été formé sinon). On parle dans ce cas d'analyse à  $1\sigma$ . Le critère peut cependant être rendu plus contraignant en comparant  $m_2$  à  $m_1 + 2\sigma$ . Sur DERIC, l'analyse peut être menée de  $1\sigma$  à  $5\sigma$ . Il n'existe pas de règles précises quant à savoir à partir de quel niveau tel dommage devient visible, c'est pourquoi une analyse fine (détaillée ci-après) doit être menée. La seule « règle » générale est que plus le dommage formé est gros, plus il est susceptible d'être déclaré même aux critères les plus forts (typiquement à  $4\sigma$  et  $5\sigma$ ). Ce type d'analyse est particulièrement nécessaire lors de l'étude de l'endommagement sur défauts (un endommagement intrinsèque provoquant quasi systématiquement une hausse du signal directement visible à l'œil nu, similaire à la situation représentée en Figure 2-32).

Rasterscans à blanc : cette étape, réalisée systématiquement avant chaque mesure, consiste à effectuer un rasterscan mais sans irradier l'échantillon. Tout se déroule selon la séquence voulue (laser en marche, déplacement de l'échantillon et ouverture de l'obturateur de séquence) mais un obstacle (un détecteur pyro-électrique souvent) est placé sur le chemin du faisceau pour l'empêcher d'atteindre l'échantillon. Le système de détection par diffusion lumineuse est également actif (le laser doit être en marche pour que l'oscilloscope fonctionne correctement ce dernier étant synchronisé sur le trigger fourni par la source laser). En théorie, aucun dommage ne devrait être annoncé à l'issue d'un rasterscan à blanc puisque le laser n'atteint pas l'échantillon (vierge) et que l'analyse est différentielle (comparaison des intensités reçues avant et après irradiation). Pourtant en pratique, de nombreux

« évènements » sont toujours annoncés à  $1\sigma$ , quelques-uns à  $2\sigma$  et très rarement au-delà. Ces trois cas sont détaillés ci-dessous :

- Analyse à  $1\sigma$  d'un rasterscan à blanc : non seulement de nombreux « évènements » sont annoncés après analyse à  $1\sigma$  mais il a en plus été montré que deux rasterscans à blanc sur une même zone d'échantillon ne donnent pas les mêmes résultats (nombre d'évènements tout comme leurs localisations, voir Figure 2-33).

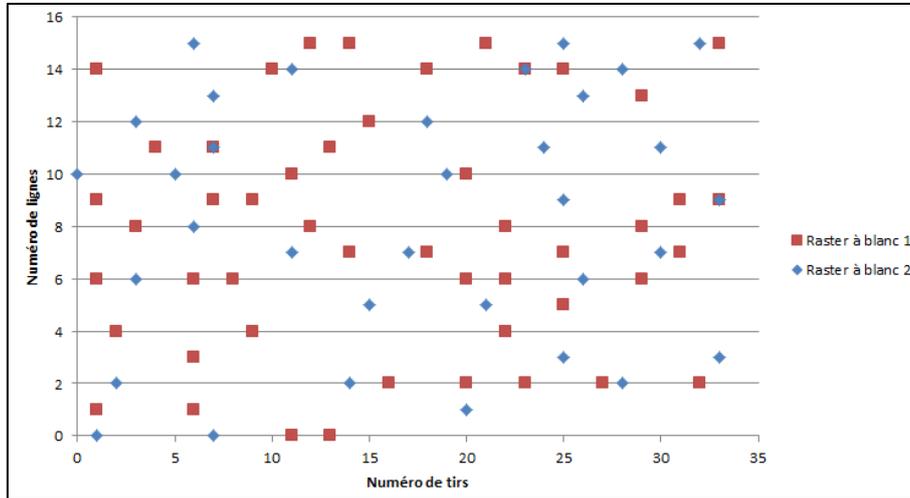


Figure 2-33 : Deux rasterscans à blanc sur une même zone ne donnent pas les mêmes résultats après analyse à  $1\sigma$ . Chaque point représente un « évènement » annoncé par le système de détection.

La présence même d'évènements à blanc et la forte non-répétabilité de leur nombre comme de leurs positions est en réalité la traduction directe du bruit lumineux caractéristique des courbes d'intensités lumineuses (comme illustré en Figure 2-32). L'analyse à  $1\sigma$  est donc loin d'être suffisante pour sortir de ce bruit ce qui empêche toute interprétation. Ce niveau d'analyse n'est donc pas à considérer lors de l'analyse d'un rasterscan même s'il contient les annonces correspondant aux dommages effectivement formés par irradiation (ces dernières seront toujours noyées parmi toutes celles générées à cause du bruit lumineux). Comme nous allons montrer ensuite, les niveaux d'analyse supérieurs permettent de remonter aux informations souhaitées beaucoup plus facilement.

- Analyse à  $2\sigma$  d'un rasterscan à blanc : ce niveau d'analyse permet déjà de sortir totalement du bruit lumineux précédemment mis en évidence. À titre d'exemple, un rasterscan à blanc sur une surface de  $25 \text{ mm}^2$  annoncera typiquement plus de mille « évènements » après analyse à  $1\sigma$  mais pas plus de dix après analyse à  $2\sigma$ . Une plus grande attention doit donc être portée sur ces annonces à blanc à  $2\sigma$  : elles peuvent traduire la présence de quelques défauts de surface suffisamment particuliers pour être détectés même à blanc (rayure, éclat...) et serviront de filtre lors de l'analyse à  $2\sigma$  du véritable rasterscan (toute annonce à blanc à  $2\sigma$  revenant encore à  $2\sigma$  à l'issue du vrai rasterscan ne sera pas comptée). En effet, soit il s'agira d'un défaut particulier qui n'évolue pas au passage du laser mais dont la nature est telle que le système le détecte quand-même (à blanc comme en vrai) soit il s'agira d'un défaut détecté à blanc qui a évolué lors de l'irradiation mais qui ne pourra toujours pas être pris en compte faute de visuel avant passage du laser (qui empêche de juger).

- Analyse à  $3\sigma$  ou plus d'un rasterscan à blanc : pour ces niveaux d'analyse à blanc (de  $3\sigma$  à  $5\sigma$ ), aucun dommage ne doit être annoncé. Si le contraire se produit, soit une ou deux annonces sont typiquement présentes seulement à  $3\sigma$  ce qui traduit généralement la présence d'un défaut de surface conséquent (il revient alors à l'opérateur de décider s'il est pertinent ou non de l'irradier au regard de son étude) soit plusieurs annonces sont présentes à  $3\sigma$  voire même au-delà et cela indique alors que le système de détection n'est pas bien réglé (alignement entre diode et pastille notamment) ou que l'échantillon est particulièrement sale (auquel cas la mesure rasterscan n'est pas pertinente).

Incertitudes appliquées aux annonces du système de détection : qu'il s'agisse d'annonces à blanc ou non, il convient d'appliquer un intervalle de confiance sur chaque annonce (et ce pour tous les niveaux d'analyse). Toutes sont constituées d'une abscisse  $x$  (numéro de tir) et d'une ordonnée  $y$  (numéro de ligne) mais ces coordonnées définissent en réalité une case de côté « 1 » (allant de  $x$  à  $x+1$  horizontalement et de  $y$  à  $y+1$  verticalement) où se trouve le dommage déclaré. Afin de prendre en compte la taille et la position du dommage (inconnues sur le moment) et une légère désynchronisation entre l'obturateur de séquence et les platines du porte-échantillon (ouverture de l'obturateur légèrement en retard lors du démarrage d'une nouvelle ligne de scan, décalage persistant jusqu'à sa fermeture), le choix a été fait de considérer les intervalles  $[x-3 ; x+4]$  en abscisse et  $[y-1 ; y+2]$  en ordonnée (pour considérer une zone symétrique autour de la case initiale comme illustré en Figure 2-34). À contrario, lors de l'observation sous microscope, aucune incertitude n'aura à être appliquée puisque la position précise sera directement mesurée (deux coordonnées  $x$  et  $y$ ).

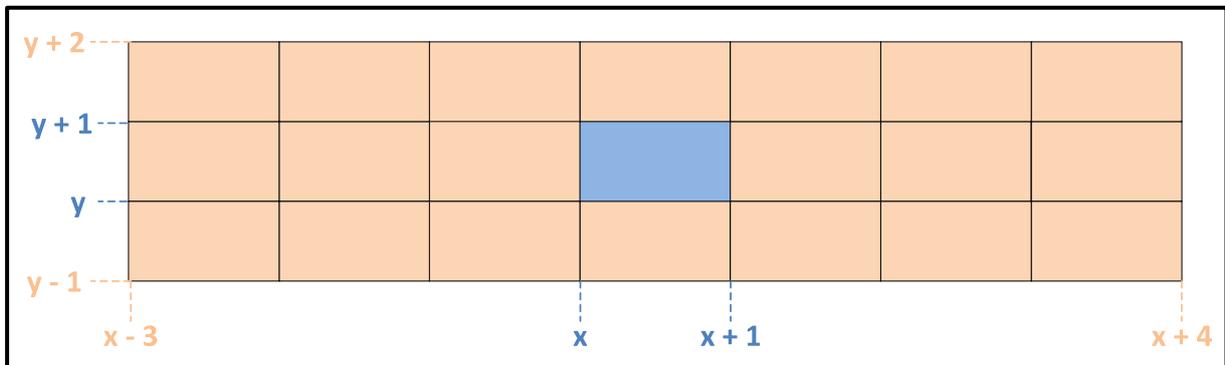


Figure 2-34 : Illustration des incertitudes appliquées aux annonces rasterscan (en beige autour de l'annonce initiale en bleu). Les cases sont rectangulaires car le pas en  $x$  est traditionnellement plus grand que celui en  $y$  (les rasterscans étant opérés à  $45^\circ$  d'incidence le plus souvent).

Observations au microscope et comptabilisation des dommages : l'objectif étant de remonter au nombre de dommages induits sur défauts à l'issue d'un rasterscan, il est impossible de se contenter d'une unique observation sous microscope à posteriori car l'état de l'échantillon avant expérience est alors inconnu (même si une observation était faite au préalable, ce qui serait déjà très laborieux, le risque de pollution resterait toujours présent). Le système de détection par diffusion étant justement différentiel, il prend le mieux en compte l'état initial de l'échantillon juste avant irradiation. Pour autant, l'expérience a montré que l'on ne peut pas non plus complètement se fier aux annonces faites par ce système à l'issue d'un rasterscan car il subsiste trop souvent des dommages annoncés non observés ensuite au microscope. C'est en combinant les informations issues du rasterscan à blanc, du véritable rasterscan et

les observations sous microscope qu'il est possible de remonter au mieux aux nombres de dommages induits sur défauts par laser. L'arbre présenté en Figure 2-35 récapitule l'ensemble des catégories possibles pour tout objet observé au microscope dans une zone balayée par rasterscan. Il a été décidé de ne pas considérer les objets de taille inférieure à  $2\ \mu\text{m}$  pour rester suffisamment au-dessus de la résolution du microscope (environ  $0,5\ \mu\text{m}$  au meilleur objectif x100 d'ouverture numérique 0,90). Il est important de garder à l'esprit que cet arbre découle des hypothèses et choix d'analyses présentés plus haut (notamment qu'un rasterscan à blanc ne doit générer aucune annonce à partir de  $3\sigma$  et qu'aucune annonce à  $1\sigma$  n'est prise en compte).

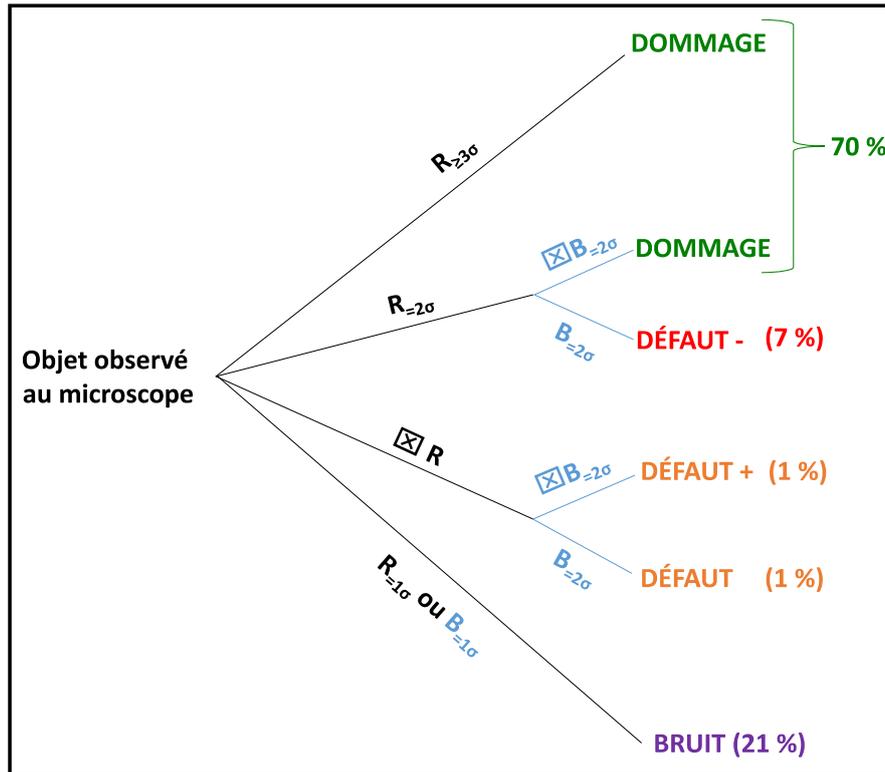


Figure 2-35 : Catégories possibles pour les objets observés au microscope après balayage par rasterscan (les pourcentages précisent la répartition moyenne constatée de ces objets au sein de ces catégories).

Ci-dessous se trouvent les significations des différentes branches :

$R_{\geq 3\sigma}$  : il existe une annonce à  $3\sigma$  ou plus du rasterscan qui correspond à l'objet observé

$R_{=2\sigma}$  : il existe une annonce à  $2\sigma$  (et pas au-dessus) du rasterscan qui correspond à l'objet observé

$R_{=1\sigma}$  : il existe une annonce à  $1\sigma$  (et pas au-dessus) du rasterscan qui correspond à l'objet observé

☒ R : il n'existe aucune annonce parmi celles du rasterscan qui correspond à l'objet observé

$B_{=2\sigma}$  : il existe une annonce à  $2\sigma$  du rasterscan à blanc qui correspond à l'objet observé

$B_{=1\sigma}$  : il existe une annonce à  $1\sigma$  (et pas au-dessus) du rasterscan à blanc qui correspond à l'objet observé

☒  $B_{=2\sigma}$  : il n'existe pas d'annonce à  $2\sigma$  du rasterscan à blanc qui correspond à l'objet observé

Voici en exemple comment lire le deuxième chemin en partant du haut : l'objet observé au microscope correspond à une annonce du système de détection faite à  $2\sigma$  à l'issue du rasterscan et cette annonce n'apparaît pas à  $2\sigma$  à l'issue du rasterscan à blanc. Il s'agit donc d'un dommage induit sur défaut par irradiation laser.

Ci-dessous se trouvent les descriptions détaillées des différentes catégories :

« **DOMMAGE** » correspond à un objet observé sous microscope qui a été déclaré soit directement à partir de  $3\sigma$  soit seulement à  $2\sigma$  lors du rasterscan sans apparaître à blanc. Dans les deux cas, l'objet est comptabilisé en tant que dommage. Cette catégorie est de loin la plus courante.

« **DÉFAUT +** » correspond à un objet observé sous microscope que le système de détection n'a jamais déclaré (à blanc comme en vrai). Dans ce cas, il est considéré comme un défaut (éclat, rayure...) n'ayant pas évolué sous irradiation et qui ne sera donc pas comptabilisé. Dans l'idéal, c'est ainsi que cela doit se passer pour tout défaut qui n'induit pas de dommage. Ce cas de figure demeure extrêmement rare (dans la limite de défauts de taille au moins égale à  $2\ \mu\text{m}$ ).

« **DÉFAUT** » correspond à un objet observé sous microscope dont la nature est telle qu'il a été déclaré à blanc seulement. Comme pour la catégorie précédente, cet objet sera considéré comme un défaut (de nature particulière) et ne sera pas comptabilisé. Ce cas de figure est très rare.

« **DÉFAUT -** » correspond à un objet observé sous microscope ayant été déclaré à  $2\sigma$  à blanc et en vrai. Sur le papier, ce cas est problématique car ambiguë : soit il s'agit une nouvelle fois d'un défaut qui n'a pas évolué au passage du laser (malgré une double annonce à blanc et en vrai) soit il s'agit d'un défaut déclaré à blanc mais qui a évolué après irradiation. Pour ce dernier cas, l'absence de visuel avant expérience empêche de conclure qu'il y a bien eu une évolution du défaut. En pratique, ce cas de figure reste assez rare. Le choix a donc été fait de considérer qu'il s'agit systématiquement d'un défaut qui ne sera alors pas comptabilisé.

« **BRUIT** » correspond à un objet observé sous microscope dont seule une correspondance avec une annonce à  $1\sigma$  a pu être trouvée (à blanc ou en vrai). Comme il a été montré précédemment, ce niveau d'analyse empêche toute conclusion car il ne permet pas de s'affranchir du bruit lumineux. L'objet ne sera donc pas comptabilisé par précaution (l'impact de ce choix est discuté plus en détail dans la prochaine section au vu de la part non négligeable de cette catégorie).

#### II.B.1.e.ii Résolution du système de détection par diffusion lumineuse

À l'aide du système de détection par diffusion lumineuse, l'objectif est d'identifier les dommages induits sur défauts parmi les objets observés au microscope après balayage par rasterscan (dont la taille est d'au moins  $2\ \mu\text{m}$ ). Comme expliqué précédemment (et illustré en Figure 2-35), ces objets se répartissent en cinq catégories et seuls ceux classés dans celle nommée « DOMMAGE » seront comptabilisés comme dommages lasers induits sur défauts. Une dernière étape consiste alors à déterminer la résolution du système de détection au vu des méthodes décrites précédemment.

Nous définissons deux groupes d'objets (observés au microscope) selon leur taille (notée T) :

- Groupe 1 :  $2 \mu\text{m} \leq T \leq 5 \mu\text{m}$
- Groupe 2 :  $T > 5 \mu\text{m}$

Nous avons constaté que 63% des objets du groupe 1 ont été identifiés comme dommages induits sur défauts, cette proportion passant à 94% pour le groupe 2. Il convient ici de discuter ce qui constitue dans chaque cas la part restante d'objets non classés comme dommages.

Pour le groupe 2, les observations sous microscope ont montré que tous les objets de ce groupe non classés en tant que dommages sont essentiellement des éclats en surface (voir Figure 2-36). Il est donc certain que le système de détection a été capable de détecter la totalité des dommages induits sur défauts dont la taille dépasse  $5 \mu\text{m}$ .

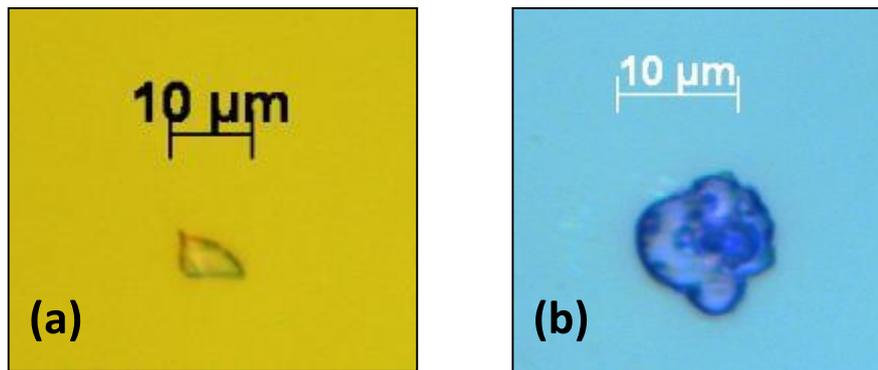


Figure 2-36 : Éclat de surface (a) et dommage induit sur défaut (b) appartenant au groupe 2.

Pour le groupe 1, la quasi-totalité des objets non retenus comme dommages ont été classés en catégorie « BRUIT ». Bien qu'écartés par précaution (cette catégorie correspond à un niveau d'annonce  $1\sigma$ , soumis au bruit), ces objets ont en moyenne une taille de  $2,8 \mu\text{m}$  alors que ceux classés en tant que dommages ont en moyenne une taille de  $3,1 \mu\text{m}$ . Cette similitude se retrouve dans les observations sous microscope (voir Figure 2-37).

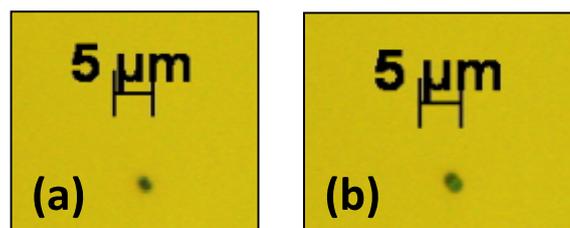


Figure 2-37 : Deux objets du groupe 1, l'un classé en tant que dommage (b) et l'autre non (a).

Dans le cas du groupe 1, un minimum de prudence est donc de mise quant à affirmer que les objets classés en « DOMMAGE » correspondent bien à des dommages induits sur défauts. Il se peut que certains dommages aient été déclarés en « BRUIT » et que certains défauts l'aient été en « DOMMAGE ». Une caractérisation au microscope DIC reste insuffisante pour trancher (l'emploi d'un microscope à balayage électronique est peut-être à envisager si une précision plus grande est souhaitée pour cette gamme de dommages).

Avant de conclure, nous ferons deux remarques :

- La technique du rasterscan à blanc a significativement amélioré l'identification des dommages induits sur défauts. Cette technique représente une très bonne alternative en l'absence d'observation visuelle avant rasterscan de toute zone vierge d'échantillon.
- Comme évoqué précédemment, il a toujours subsisté des annonces rasterscans pour lesquelles rien n'a été observé sous microscope. Ces annonces « fantômes » n'empêchent pas de mener les analyses voulues mais il est à noter qu'en globalité (tous niveaux d'analyse confondus de  $2\sigma$  à  $5\sigma$ ), leur proportion n'est pas négligeable. Parmi les pistes d'explications possibles, nous envisageons la présence de poussières passant devant le système de détection au cours du rasterscan, le phénomène de nettoyage laser (poussière présente en surface d'échantillon éjectée par le laser), des dommages induits sur défauts sub-micrométriques non détectables en microscopie.

Au final, le système de détection de dommages par diffusion lumineuse installé sur DERIC permet de détecter avec une excellente probabilité tout dommage induit sur défaut dont la taille est supérieure à  $5\ \mu\text{m}$ . Ce système permet aussi, notamment grâce à la technique du rasterscan à blanc, de détecter avec une précision satisfaisante les dommages induits dont la taille est comprise entre  $2\ \mu\text{m}$  et  $5\ \mu\text{m}$ . Les éventuels dommages induits de taille inférieure à  $2\ \mu\text{m}$  ne peuvent pas être raisonnablement détectés à cause de la limite de résolution d'un microscope DIC (de l'ordre du micromètre).

## **II.B.2 Comparaison entre les voies gaussienne et top-hat**

La qualification du banc DERIC passe par celle de ses deux voies ; la voie gaussienne ayant déjà été qualifiée par Martin Sozet lors de sa thèse (également réalisée sur DERIC [22]), elle servira de référence pour la qualification du banc dans son ensemble.

Nous avons ainsi souhaité comparer les seuils d'endommagement intrinsèques obtenus sur deux monocouches de dioxyde d'hafnium ( $\text{HfO}_2$ ) provenant d'un même lot de fabrication, l'une étant testée sur la voie gaussienne et l'autre sur la voie top-hat. Nous avons eu recours aux deux méthodes de qualification appropriées que sont les procédures 1-on-1 et Monoshot (rappel, Sozet et al. [74] ont démontré l'équivalence de ces procédures en régime sub-picoseconde). La voie top-hat proposant une certaine diversité de profils spatiaux, nous avons choisi d'en tirer parti et donc d'y appliquer la méthode Monoshot tandis que la méthode 1-on-1 a été appliquée sur la voie gaussienne. La Figure 2-38 donne des exemples de dommages observés sur les deux voies.

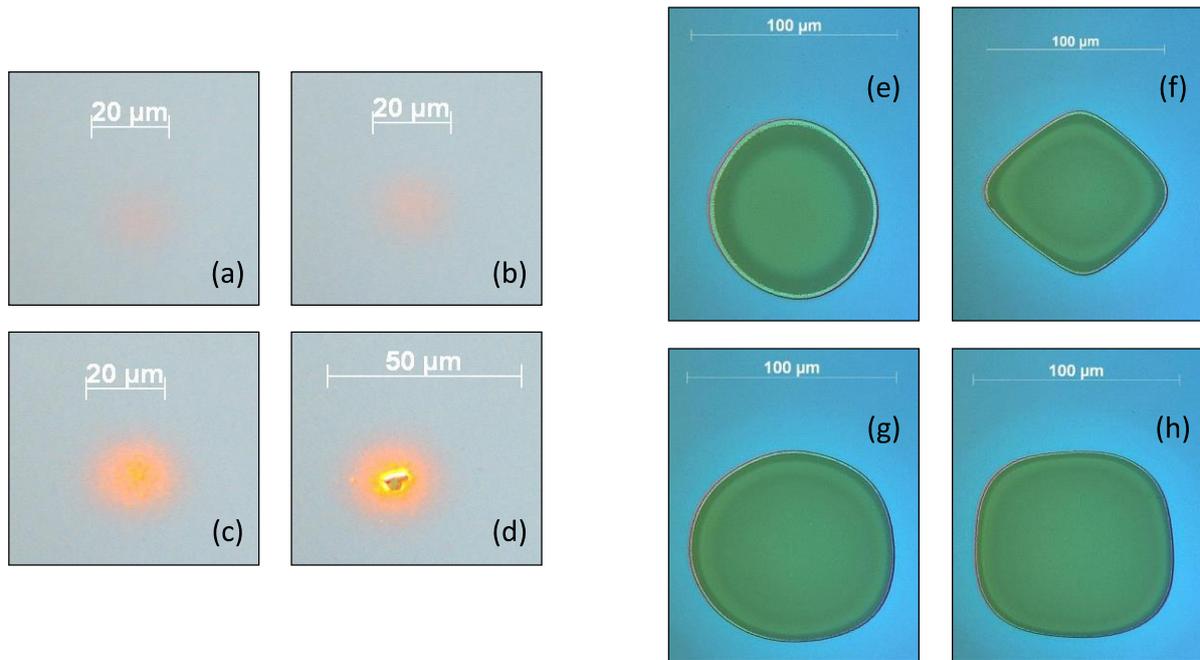


Figure 2-38 : Exemples d'observations sous microscope DIC de dommages intrinsèques à 0,8 ps sur deux monocouches identiques de  $\text{HfO}_2$ . (a)-(d) Cas de dommages amorcés en procédure 1-on-1 sur la voie gaussienne (faisceau gaussien ; fluences légèrement supérieures au seuil d'endommagement). (e)-(h) Cas de dommages amorcés via la procédure Monoshot sur la voie top-hat (différents profils spatiaux ; fluences nettement supérieures au seuil d'endommagement de sorte que le dommage reflète le profil spatial).

Les résultats sont donnés dans le tableau 2-3. Ils portent sur la fluence seuil intrinsèque  $F_{\text{int}}$  de ces monocouches. Nous rappelons que cette grandeur (présentée au premier chapitre) est une caractéristique du matériau irradié et est indépendante de la configuration expérimentale utilisée (polarisation, angle d'incidence etc...) ce qui en fait un mesurande idéal.

Voie laser	$F_{\text{int}} \pm \sigma$ (J/cm <sup>2</sup> )
Gaussienne	$2,11 \pm 0,06$
Top-hat	$2,16 \pm 0,01$

Tableau 2-3 : Résultats de mesure de la fluence seuil intrinsèque  $F_{\text{int}}$  à 0,8 ps de deux monocouches identiques de  $\text{HfO}_2$  sur les voies gaussienne et top-hat de DERIC. Cinq mesures indépendantes ont été réalisées sur la voie gaussienne en variant polarisation et d'angle d'incidence (profil spatial gaussien). Vingt-et-une mesures indépendantes ont été réalisées sur la voie top-hat à partir de vingt-et-un faisceaux de profils spatiaux différents (incidence nulle).

Ayant affaire à plusieurs mesures indépendantes d'une même grandeur, nous avons dans chaque cas la fluence seuil intrinsèque  $F_{\text{int}}$  qui correspond à la moyenne de toutes les mesures considérées et l'incertitude  $\sigma$  qui correspond à l'écart-type divisé par la racine carrée du nombre de mesures (cinq pour la voie gaussienne, vingt-et-un pour la voie top-hat). Il s'agit donc ici d'incertitudes relatives (aux procédures employées). Nous n'intégrons pas les autres sources d'incertitudes présentes sur le banc qui, prises toutes ensemble, permettent d'établir l'incertitude absolue de mesure sur la fluence (par exemple les incertitudes de mesure en énergie et surface). Cette dernière est en effet caractéristique du banc (et donc commune aux deux voies) et a déjà été évaluée par Sozet et al. à 10% [55]. Les deux seuils obtenus diffèrent ainsi de 2% et se recoupent rien qu'en prenant en compte les incertitudes de mesures relatives aux procédures utilisées. Ceci démontre bien l'équivalence entre les voies gaussienne et top-hat de DERIC.

## II.B.3 Inter-comparaison avec des laboratoires nationaux et internationaux

La métrologie de l'endommagement laser fait fondamentalement face à l'impossibilité de pouvoir démontrer l'exactitude d'une mesure. Par ailleurs, il n'existe pas non plus d'étalon officiel permettant une mesure de référence de seuil de tenue au flux. Dès lors, l'objectif est de tout mettre en œuvre pour assurer la plus grande justesse possible des mesures. Il en découle un processus permanent de remise en question. Dans le cas de la métrologie de l'endommagement laser sur DERIC, la précédente démonstration de l'équivalence entre voie gaussienne et top-hat est une étape importante dans le sens où elle renforce la métrologie propre au banc à partir d'une comparaison entre deux voies lasers indépendantes de ce banc. Néanmoins, cette étape ne garantit pas pour autant qu'une erreur systématique de métrologie soit commise puisqu'il s'agit de la même installation. C'est dans cet esprit que nous avons proposé et supervisé une inter-comparaison entre laboratoires disposant également de bancs d'endommagements lasers opérant dans les régimes sub-picoseconde et/ou picoseconde (et dans le proche infrarouge). En plus du CEA-CESTA, les partenaires de cette inter-comparaison ont été l'Institut Fresnel de Marseille (UMR 7249), le Laboratory for Laser Energetics (LLE) de l'Université de Rochester aux États-Unis, le Laser Research Center (LRC) de l'Université de Vilnius en Lituanie et le centre de recherche HiLASE en République Tchèque.

### II.B.3.a Principe de l'étude comparative

Chaque partenaire de l'étude s'est vu attribué deux monocouches, une de  $\text{SiO}_2$  et une de  $\text{HfO}_2$ , toutes les monocouches d'un même matériau provenant d'un même lot de fabrication (et toutes étant fournies par le fabricant Okamoto, basé à Yokohama au Japon). Le substrat (BK7) et le procédé de dépôt (e-beam + IAD [58]) sont communs à tous les composants.

Les caractéristiques des deux types de monocouches sont données dans le tableau 2-4 :

Matériau (couche mince)	Épaisseur (nm)	Indice optique à 1053 nm
$\text{SiO}_2$	194,3	1,448
$\text{HfO}_2$	149,9	1,930

Tableau 2-4 : Caractéristiques des monocouches utilisées lors de l'inter-comparaison.

L'objectif pour chaque participant est de mesurer la fluence seuil intrinsèque de chaque matériau à partir de quatre configurations expérimentales alternant angle d'incidence ( $0^\circ$  ou  $45^\circ$ ) et polarisation (P ou S). Nous rappelons que cette grandeur (présentée au premier chapitre) est indépendante de la configuration expérimentale employée. Les quatre configurations demandées ici ( $0^\circ/\text{P}$  ;  $0^\circ/\text{S}$  ;  $45^\circ/\text{P}$  ;  $45^\circ/\text{S}$ ) doivent donc permettre d'en obtenir quatre mesures indépendantes (en théorie identiques).

Enfin, dans le but de garder constant un maximum de paramètres, il a été demandé à ce que chaque participant suive la procédure 1-on-1, que les tests soient effectués sous air ambiant pour une longueur d'onde centrale de 1053 nm et une durée d'impulsion de 0,8 ps.

### II.B.3.b Résultats expérimentaux

Les résultats de l'inter-comparaison et les conditions de tests de chaque participant sont donnés dans le tableau 2-5. Le laboratoire LLE a effectué des mesures sous vide en plus des mesures sous air ambiant. L'Institut Fresnel et le centre HiLASE les ont réalisés à 0,7 ps et 1,8 ps respectivement ce que nous avons traduit à 0,8 ps en appliquant une loi d'échelle temporelle standard en  $\tau^{0,33}$  [38]. Ces deux participants ont également travaillé à 1030 nm mais ce faible écart en longueur d'onde par rapport à la consigne de 1053 nm peut être négligé [41]. Concernant les incertitudes de mesure, nous sommes dans un cas similaire à la comparaison des voies gaussienne et top-hat de DERIC (section II.B.2) où il s'agit de déterminer une grandeur à partir de plusieurs mesures indépendantes. Ne sont donc pas considérées les incertitudes (absolues ou même relatives) de chaque mesure mais l'incertitude basée sur la dispersion de ces mesures (voir tableau 2-6). En toute rigueur, il faudrait ensuite intégrer les incertitudes absolues de chaque mesure pour permettre une comparaison complète, surtout dans cette situation d'inter-comparaison mais hormis pour le CEA-CESTA, ces dernières sont toujours inconnues pour les autres participants. Nous nous contenterons donc des incertitudes liées à la dispersion des mesures (comme nous le verrons, cela ne change pas le propos de cette étude comparative).

Participant	$F_{int}$ (J/cm <sup>2</sup> )								Env.	$\lambda_0$ (nm)	$\tau$ (ps)	$\phi$ à 1/e ( $\mu$ m)
	Monocouche SiO <sub>2</sub>				Monocouche HfO <sub>2</sub>							
	Polarisation P		Polarisation S		Polarisation P		Polarisation S					
	AOI 0°	AOI 45°	AOI 0°	AOI 45°	AOI 0°	AOI 45°	AOI 0°	AOI 45°				
<b>EFI<sub>max</sub></b>	0,699	0,565	0,699	0,549	0,546	0,422	0,546	0,372				
<b>HiLASE</b>	0,83	0,86	0,43	0,71	0,25	1,55	0,33	1,65	Amb.	1030	1,8	177
<b>Institut Fresnel</b>	3,03	2,99		2,93	1,94	2,06		2,04	Amb.	1030	0,7	100
<b>LLE (air)</b>	2,00	2,15	2,01	2,05	1,54	1,37	1,41	1,36	Amb.	1053	0,8	160
<b>LLE (vide)</b>	2,41	2,37	2,17	2,63	1,72	1,59	1,54	1,59	Vide	1053	0,8	160
<b>CEA-CESTA</b>	2,96	/	3,09	/	2,10	1,87	2,17	/	Amb.	1054	0,8	170
<b>LRC</b>	2,03	2,18		2,15	1,63	1,39		1,60	Amb.	1030	0,8	98

Tableau 2-5 : Résultats de l'inter-comparaison.  $F_{int}$  désigne la fluence intrinsèque du matériau (J/cm<sup>2</sup>), AOI l'angle d'incidence (°), Env. l'environnement (Amb. pour air ambiant),  $\lambda_0$  la longueur d'onde centrale (nm),  $\tau$  la durée d'impulsion mesurée par autocorrélation (ps) et  $\phi$  à 1/e le diamètre du faisceau (gaussien) à 1/e. Une case blanche signifie que la mesure n'a pas été réalisée. Dans notre cas, le symbole / signifie que nous ne sommes pas parvenus à endommager le composant. Les valeurs des  $EFI_{max}$  sont données à titre indicatif (les valeurs de LIDT peuvent être retrouvées à partir des valeurs de  $F_{int}$  en appliquant l'équation 1-8).

**Remarque :** les résultats du CEA-CESTA sont ceux obtenus sur la voie gaussienne de DERIC car c'est sur cette voie que la méthode 1-on-1 (celle demandée pour l'inter-comparaison) a été appliquée lors de la qualification interne du banc présentée en section II.B.2. Les résultats obtenus pour HfO<sub>2</sub> dans le tableau 2-5 proviennent également de la même monocouche utilisée lors de la qualification interne dont les résultats sont présentés dans le tableau 2-3 (les trois mesures du tableau 2-5 font partie des cinq mesures dont résulte la moyenne du tableau 2-3 pour la voie gaussienne).

Le tableau 2-6 présente une synthèse du tableau 2-5 où sont reportées les moyennes et incertitudes par participant et par matériau. Ces résultats sont aussi reportés graphiquement dans la Figure 2-39.

Participant	Monocouche SiO <sub>2</sub>		Monocouche HfO <sub>2</sub>	
	F <sub>int</sub> (J/cm <sup>2</sup> )	σ (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int</sub> (J/cm <sup>2</sup> )	σ (J/cm <sup>2</sup> )
HiLASE	0,71	0,10	0,95	0,38
Institut Fresnel	2,99	0,03	2,01	0,04
LLE (air)	2,05	0,04	1,42	0,04
LLE (vide)	2,40	0,10	1,61	0,04
CEA-CESTA	3,02	0,07	2,05	0,09
LRC	2,12	0,05	1,54	0,07
Moyenne	2,21	0,35	1,60	0,17

Tableau 2-6 : Synthèse des mesures de l'inter-comparaison. Moyennes et écart-types sont calculés pour chaque participant à partir des données du tableau 2-5. Une moyenne d'ensemble pour chaque matériau ainsi que son incertitude sont données à titre indicatif (à partir des moyennes de chaque participant sur chaque matériau).

Les valeurs sont données à 0,8 ps et pour des matériaux déposés en e-beam + IAD.

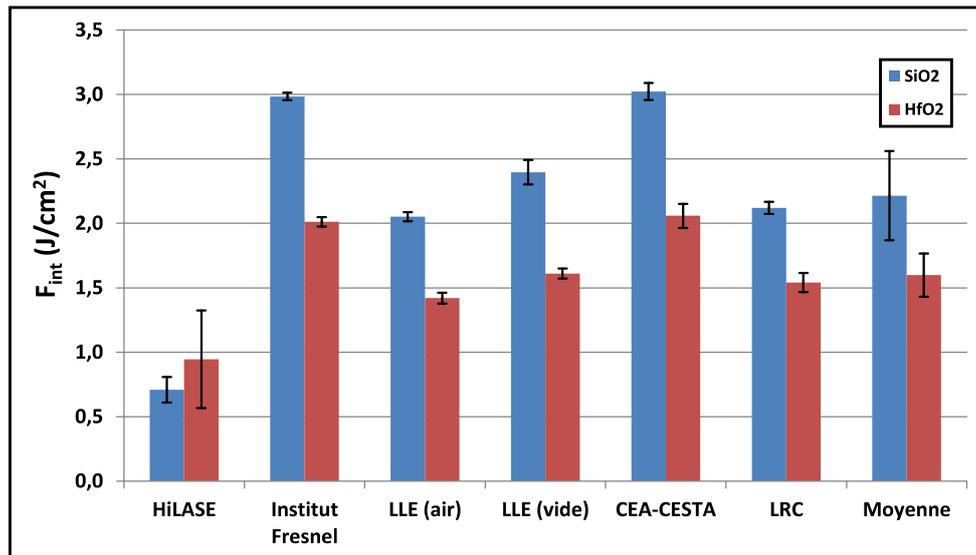


Figure 2-39 : Représentation graphique des données du tableau 2-6.

Remarque : à partir de deux mesures de fluences seuils intrinsèques  $F_{int,1}$  et  $F_{int,2}$  nous calculons l'écart  $\Delta F_{int,1-2}$  comme la valeur absolue de la différence divisée par la moyenne soit

$$\Delta F_{int,1-2} = 2 \frac{|F_{int,1} - F_{int,2}|}{F_{int,1} + F_{int,2}}$$

En dépit d'échantillons identiques et de conditions de tests quasi-identiques, nous observons une nette disparité des résultats. Nous mettons à part les mesures effectuées par le centre d'HiLASE qui interpellent en particulier (valeurs les plus faibles pour les deux matériaux et seul participant trouvant un seuil intrinsèque moyen plus élevé pour HfO<sub>2</sub> que pour SiO<sub>2</sub>). Il faut savoir en effet que ce participant a réalisé les tests avec une installation très récente (nous nous y sommes rendus dans le cadre d'une mission ; ces tests d'inter-comparaison ont été les premiers réalisés sur cette installation) au contraire de tous les autres participants qui ont utilisé des installations en place depuis plusieurs années. Pourtant, une disparité toujours

significative est visible entre ces derniers. En partant des valeurs du tableau 2-6, nous constatons par exemple un écart de 38% entre le CEA-CESTA et le LLE en air ambiant dans le cas du matériau SiO<sub>2</sub> et de 26% entre l'Institut Fresnel et le LRC pour le matériau HfO<sub>2</sub>.

L'endommagement laser étant déterministe dans le régime sub-picoseconde, cette disparité a de quoi interpeller au premier abord. Nous voyons ici l'intérêt d'avoir imposé la même procédure de test pour tous (1-on-1) car cela élimine d'emblée ce paramètre très influent et permet ainsi de questionner directement d'autres aspects des métrologies propres à chaque participant. Dans la prochaine section, nous présentons plusieurs mesures complémentaires effectuées sur DERIC afin de questionner la validité des mesures du CEA-CESTA et de dégager des pistes pour expliquer les écarts de cette inter-comparaison.

### II.B.3.c Mesures complémentaires

Les premières discussions pour tenter d'expliquer les différences de valeurs des fluences intrinsèques entre participants se sont naturellement portées sur la métrologie concernant la mesure de l'énergie et surtout de la surface du faisceau (souvent plus délicate à mesurer). Cette étape nous a été bénéfique puisqu'elle nous a permis de nous rendre compte que nous faisons une erreur de mesure sur la surface (corrigée depuis et intégrée dans les résultats présentés précédemment). Une fois vérifiée la métrologie de ces deux paramètres fondamentaux, nous avons considéré d'autres paramètres plus fins dont nous présentons ci-après les expériences et études associées.

Influence de l'environnement – Air sec & air ambiant – Indice linéaire : l'environnement est essentiellement caractérisé par le degré d'hygrométrie (ou humidité relative) qui dépend de la température. Ce paramètre a notamment une influence sur les indices optiques linéaire et non-linéaire des matériaux, généralement notés  $n_0$  et  $n_2$  respectivement. L'indice  $n_0$  a quant à lui un impact sur l'EFI (grandeur présentée au premier chapitre, voir équation 1-7). L'EFI est à son tour un paramètre fondamental pour le calcul du seuil d'endommagement d'un matériau (voir équation 1-8). Nous avons alors mené des expériences comparatives de tenue au flux sous air ambiant (degré d'hygrométrie de 45%) et sous air sec (degré d'hygrométrie de 4%). Les tests ont été menés sur les mêmes échantillons que ceux utilisés pour l'inter-comparaison avec la procédure 1-on-1, un angle d'incidence nul et une polarisation P. Les indices des matériaux en air sec ont également été mesurés à l'aide d'un spectrophotomètre placé dans les conditions idoines ( $n_{\text{sec,SiO}_2} = 1,446$  et  $n_{\text{sec,HfO}_2} = 1,960$ ). Les résultats sont donnés dans le tableau 2-7.

Matériau	$F_{int} \pm \sigma$ (J/cm <sup>2</sup> )	
	Air sec	Air ambiant
SiO <sub>2</sub>	2,86 ± 0,18	3,03 ± 0,04
HfO <sub>2</sub>	2,06 ± 0,02	2,11 ± 0,06

Tableau 2-7 : Comparatif air sec / air ambiant pour la fluence intrinsèque de SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub>. Les valeurs de seuil et leurs incertitudes de mesures découlent de la définition de la norme ISO 21-154 pour le 1-on-1 (voir section II.B.1.a de ce chapitre). Les incertitudes sont plus faibles pour HfO<sub>2</sub> car ce matériau (indice d'environ 1,95) assure un meilleur contraste d'indice avec le substrat (indice d'environ 1,5) que ne le permet SiO<sub>2</sub> (indice d'environ 1,45) ce qui facilite l'observation sous microscope. Les valeurs en air ambiant sont légèrement différentes que celles dans le tableau 2-6 car des mesures supplémentaires ont été prises en compte (provenant de configurations expérimentales non incluses dans l'inter-comparaison).

Nous constatons que le passage en air sec diminue la résistance des deux monocouches mais très faiblement (à titre indicatif, nous donnons en annexe 6 les résultats obtenus lors de cette même étude comparative sur un miroir diélectrique pour lequel le seuil diminue plus nettement). Même si les conditions d'humidité relative n'ont probablement pas été rigoureusement les mêmes pour tous les participants ayant déclaré avoir opéré en air ambiant (les degrés d'hygrométrie n'ont pas été communiqués), il semble tout de même raisonnable de supposer que l'influence de l'environnement sur l'indice linéaire, bien qu'elle existe, est loin d'être la raison principale des différences de tenues au flux constatées lors de l'inter-comparaison (tableaux 2-5 et 2-6).

Une remarque nécessaire à ce stade concerne le LLE qui a effectué des mesures sous air ambiant et sous vide : les valeurs sous vide ont été obtenues en faisant l'hypothèse que les indices linéaires sont dans ce cas égaux à ceux mesurés sous air sec (la détermination des indices sous vide n'a pas été faite faute de disposer de spectromètre fonctionnant sous vide, un appareil peu répandu). Cette hypothèse se base sur la proximité apparente de ces deux milieux en termes de degré d'hygrométrie (4 à 5% pour l'air sec, quasiment 0% pour le vide). Néanmoins, nous constatons bien que les valeurs obtenues sous vide sont significativement supérieures à celles obtenues sous air ambiant (tableau 2-6) ce qui est en contradiction avec les résultats présentés dans le tableau 2-7 où un passage en air sec n'augmente pas la fluence seuil intrinsèque. Cela ne valide pas l'hypothèse d'assimiler l'air sec au vide mais cela ne l'invalide pas non plus. En effet, il se peut qu'elle soit valable et que le problème vienne en réalité de la contamination du milieu (poussières, dégazage des matériaux constituant l'enceinte etc...) qui est une problématique majeure lors du passage sous vide. Les écarts air ambiant / vide restent à ce jour inexpliqués dans le cas du LLE et la problématique de la contamination reste une piste à explorer au regard des écarts entre tous les participants.

Influence de l'environnement – Air ambiant – Indice non-linéaire : dans le cas de la propagation de faisceaux intenses dans des milieux diélectriques, on peut faire l'approximation [68] que l'indice optique global  $n$  du matériau vu par l'impulsion vaut  $n_0 + n_2 I$  où  $I$  désigne l'intensité du faisceau et  $n_0$  et  $n_2$  les indices linéaire et non-linéaire du matériau respectivement. Dans le cas d'un faisceau gaussien, l'indice vu par son centre est alors plus grand que celui vu par ses bords : il se produit le phénomène d'autofocalisation (le faisceau se focalise sur lui-même). La fluence du faisceau se retrouve considérablement modifiée sans aucun moyen de pouvoir la mesurer ce qui est rédhibitoire dans le cadre de mesures d'endommagement laser. Cependant, l'autofocalisation est en compétition permanente avec

le phénomène de diffraction qui tend à élargir le faisceau au cours de sa propagation. L'autofocalisation ne devient prépondérante que si la puissance du faisceau dépasse une certaine puissance critique  $P_{\text{cri}}$ . Cette dernière est notamment inversement proportionnelle à  $n_2$  [66,72]. Dans le cas des impulsions de DERIC se propageant dans l'air, on montre que  $P_{\text{cri}}$  vaut environ 5,5 GW [22] alors que les impulsions n'excèdent pas une puissance crête de 2,4 GW (durée minimale d'impulsion de 0,8 ps et énergie maximale de 1,9 mJ sur échantillon). À priori, les impulsions de DERIC ne subissent donc pas le phénomène d'autofocalisation (tout comme le suggère déjà le calcul d'intégrale B en section II.A.2). L'inter-comparaison nous a incité à nous en assurer expérimentalement. Nous avons alors entrepris de mesurer sous air ambiant la fluence seuil intrinsèque d'une monocouche de  $\text{HfO}_2$  (identique aux monocouches de ce matériau testées précédemment) en la testant sous des angles d'incidence croissants ce qui demande une énergie croissante pour endommager et donc des impulsions de plus en plus intenses. Toute trace d'autofocalisation se traduirait alors par une dispersion des mesures de plus en plus grande au fur et à mesure que l'angle d'incidence augmente. Également, travailler sous air ambiant maximise les chances de voir apparaître le phénomène d'autofocalisation puisque l'indice non-linéaire  $n_2$  de l'air augmente avec le degré d'hygrométrie ( $P_{\text{cri}}$  plus petite et donc plus facile à atteindre). Les résultats sont donnés dans le tableau 2-8.

AOI (°)	0	10	20	30	35	40	45
LIDT $\pm \sigma$ (J/cm <sup>2</sup> )	3,66 $\pm$ 0,07	3,64 $\pm$ 0,01	4,02 $\pm$ 0,08	4,37 $\pm$ 0,06	4,55 $\pm$ 0,10	4,93 $\pm$ 0,02	5,50 $\pm$ 0,03
EFL <sub>max</sub>	0,546	0,538	0,514	0,472	0,443	0,410	0,372
F <sub>int</sub> $\pm \sigma$ (J/cm <sup>2</sup> )	2,00 $\pm$ 0,04	1,96 $\pm$ 0,01	2,07 $\pm$ 0,04	2,06 $\pm$ 0,03	2,02 $\pm$ 0,04	2,02 $\pm$ 0,01	2,05 $\pm$ 0,01

Tableau 2-8 : Mesures de la fluence seuil intrinsèque d'une monocouche de  $\text{HfO}_2$  pour des angles d'incidence croissants (désignés par AOI pour Angle Of Incidence). Les tests ont été menés sous air ambiant sur la voie gaussienne de DERIC en polarisation S avec la procédure 1-on-1 (l'incertitude sur la mesure du LIDT correspond à celle définie pour cette procédure).

Même sous air ambiant, nous ne constatons aucune dispersion notable des résultats en augmentant l'angle d'incidence ce qui montre que les impulsions de DERIC ne sont pas déformées par autofocalisation. Des mesures similaires aboutissant à la même conclusion ont été réalisées sous air ambiant pour le LLE (validant également de ce fait les mesures que ce participant a effectué sous vide, l'indice non-linéaire y étant nettement plus faible). Même en l'absence d'expériences similaires chez les deux participants restant, nous supposons qu'il en est de même pour eux. En effet, les résultats mêmes de l'inter-comparaison (obtenus à 0° et 45° d'incidence, voir tableau 2-5) montrent une faible dispersion des résultats par participant. L'influence de l'environnement sur l'indice non-linéaire n'explique donc probablement pas non plus la disparité des résultats de l'inter-comparaison.

Influence des caractéristiques temporelles des impulsions : la plupart des tests ont été effectués avec une durée d'impulsion de 0,8 ps (consigne). Cependant, cette grandeur ne contient pas toute l'information temporelle nécessaire pour interpréter le phénomène d'endommagement laser. Il faut en réalité prendre en compte le profil temporel tout entier de chaque impulsion (nous reviendrons en détail sur ce point durant le troisième chapitre). Disposant des profils temporels des impulsions de DERIC (mesurés à l'aide du diagnostic

SPIRITED, voir section II.A.1.d.iii de ce chapitre) et également de ceux du LLE (mesurés à l'aide d'un dispositif FROG [81]), nous avons évalué l'influence relative de ces profils sur le seuil d'endommagement intrinsèque à partir d'un code de calcul que nous avons développé et validé [82] (le modèle est décrit dans le troisième chapitre). L'étude montre que les variations de profils temporels peuvent causer une variation du seuil jusqu'à 9% dans le cas du CEA-CESTA et jusqu'à 20% pour le LLE (le cas du CEA-CESTA est détaillé en annexe 6). Ces chiffres restent à affiner (répétabilité des mesures de profils, mesures plus récentes) mais cette première étude suggère fortement que le profil temporel est en partie responsable des écarts constatés. Les profils temporels des autres participants n'ont quant à eux pas été communiqués, il serait intéressant d'en étudier l'impact également. Enfin, un autre aspect temporel des impulsions qui joue également un rôle primordial dans l'endommagement des matériaux diélectriques est leur contraste temporel (éventuelle présence de pré-impulsions et/ou post-impulsions autour de l'impulsion principale, en particulier les pré-impulsions). Comme montré en section II.A.1.d.i de ce chapitre, le contraste temporel n'est pas problématique dans le cas de DERIC. Il serait sans nul doute bénéfique de le mesurer pour les autres participants.

### II.B.3.d Bilan de l'inter-comparaison

Partant d'échantillons identiques et de consignes de test identiques, les cinq participants de cette étude originale n'ont pas déterminé les mêmes fluences seuils intrinsèques pour les deux matériaux étudiés ( $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$ ) bien que l'endommagement laser en régime sub-picoseconde soit un phénomène déterministe.

Un premier constat est que ces différences ne proviennent pas d'un manque de respect des consignes de tests : tous les participants ont bien employé la procédure 1-on1. La consigne en longueur d'onde de 1053 nm a aussi été suffisamment respectée, l'écart à 1030 nm (cas de trois participants) n'étant pas problématique [41]. La consigne d'un environnement de test sous air ambiant a bien été respectée aussi tout comme celle d'une durée d'impulsion de 0,8 ps (deux participants ont réalisé leurs tests à respectivement 0,7 et 1,9 ps mais les résultats peuvent être ramenés à 0,8 ps à partir d'une loi d'échelle temporelle [38]).

Dans un second temps, des études complémentaires menées au CEA-CESTA ont exploré plus en détail l'impact de l'environnement de test et de la nature temporelle de l'impulsion ce qui a montré la nécessité de préciser davantage ces paramètres par rapport à ce qui a été demandé pour cette inter-comparaison. Tout d'abord, des mesures comparatives de tenue au flux sous air sec et sous air ambiant ont montré une très faible influence de l'environnement, insuffisante pour ainsi expliquer à elle seule les écarts entre participants. Le risque d'autofocalisation en air ambiant (degré hygrométrique d'environ 45%) a également été exclu pour DERIC. Plus que de demander des mesures en air ambiant, il apparaît ainsi nécessaire de demander également le degré d'hygrométrie de chaque participant surtout au regard du risque d'autofocalisation (ce qui implique de demander des tests à plusieurs angles d'incidence, par exemple  $0^\circ$ - $15^\circ$ - $30^\circ$ - $45^\circ$ ). Une autre problématique restant à investiguer au sujet de l'environnement de test est la contamination (au vu des écarts, toujours inexplicables, obtenus par le laboratoire LLE sous air ambiant et sous vide). Enfin, des études numériques ont mis en avant le rôle potentiel du profil temporel d'intensité dans les écarts observés : il est certain que le profil temporel conditionne la tenue au flux comme nous le verrons en détail

au troisième chapitre, ce qui est moins certain est la validité des profils temporels utilisés lors de cette étude numérique (ce qui empêche de chiffrer précisément les écarts propres aux différences de profils temporels entre participants). Ainsi, concernant la nature temporelle des impulsions, nous voyons la nécessité de ne pas seulement préciser la durée d'impulsion à laquelle les tests doivent être effectués mais également de demander à chaque participant de mesurer le profil temporel employé. Sur ce dernier point, nous avons fait l'acquisition d'un diagnostic de type FROG qui sera prochainement installé sur DERIC afin d'y mesurer de manière permanente le profil temporel des impulsions. Également, il serait bénéfique de demander à chaque participant une mesure du contraste temporel des impulsions. En effet, la présence de pré-impulsions peut pré-endommager l'échantillon cible et diminuer la valeur du seuil mesurée après coup (le contraste temporel a été mesuré pour DERIC et n'est pas problématique).

Une autre piste non explorée est les possibles écarts en nature entre échantillons mêmes. En effet, tous les participants n'ont pas reçu les échantillons en même temps ni effectué les tests au même moment. Ces délais, qui ont été facilement de plusieurs mois, peuvent entraîner un changement de l'état de surface de l'échantillon (le traitement couche mince peut être abîmé au cours du transport même si les échantillons ont été envoyés en étant très bien conditionnés) ou même provoquer une modification de l'indice optique (changement d'environnement). Les tests de comparaison air sec / air ambiant ont été menés uniquement au CEA-CESTA et les mêmes valeurs d' $EFI_{max}$  ont été appliquées à tous les participants, ce qui suppose que l'indice optique est resté constant pour tous les échantillons. Il aurait été bénéfique de mesurer de nouveau l'indice optique pour chaque échantillon une fois arrivé sur son lieu de test (au mieux juste avant le test).

Enfin, il faudrait évaluer les incertitudes absolues pour l'ensemble des participants afin de compléter la comparaison ce qui consiste à au moins évaluer les incertitudes de mesure de l'énergie et de la surface du faisceau (sur DERIC, l'incertitude absolue est de 10% [55]).

À défaut de fournir toutes les explications, cette étude comparative a au moins le mérite de mettre en lumière la difficulté de réaliser des mesures de seuils d'endommagements même en régime déterministe. Un effort conséquent doit être fait pour assurer la métrologie tant au niveau de l'impulsion (énergie, surface, profil temporel, contraste temporel) que du matériau (indice optique) ou de l'environnement (degré d'hygrométrie, contamination particulaire). Pour le bénéfice des métrologies de chacun, il serait bon de renouveler régulièrement ce type d'inter-comparaison en affinant les consignes de tests comme expliqué ci-dessus.

## Conclusion du Chapitre II

Ce chapitre a permis de présenter l'ensemble de la métrologie mise en place sur DERIC pour garantir au mieux la qualité des mesures réalisées sur ce banc dans le cadre de l'étude de l'endommagement laser de matériaux diélectriques irradiés par des impulsions courtes. Ces dernières ont été complètement caractérisées, en particulier leurs propriétés temporelles grâce aux diagnostics CROSSCO et SPIRITED qui parviennent à respectivement mesurer le contraste temporel et le profil temporel d'impulsions sub-picoseconde ou picoseconde. Ces mesures ont notamment révélé que les impulsions lasers de DERIC présentent des profils temporels variés, ce que nous exploiterons au prochain chapitre. Nous avons également décrit la large palette possible de procédures de tests pouvant être employées sur le banc afin d'étudier les différentes formes d'endommagement laser ; deux d'entre elles (1-on-1 et Monoshot) ont été utilisées pour qualifier indépendamment la voie gaussienne principale et la voie top-hat plus récemment développée qui constituent DERIC. Les tests ont permis d'établir l'équivalence entre ces deux voies. Enfin, dans l'optique de renforcer encore plus la métrologie en place sur DERIC, nous avons initié une inter-comparaison entre ce banc et d'autres bancs d'endommagement laser de plusieurs laboratoires situés en France et à l'étranger (États-Unis et Lituanie). Cette étude comparative a porté ses fruits car bien qu'effectués sur des échantillons identiques (monocouches  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$ ) et dans des conditions quasi-identiques (notamment la même durée d'impulsion 0,8 ps), les résultats de mesures du seuil intrinsèque entre les participants sont marqués par une nette disparité. Sachant que l'endommagement laser en régime sub-picoseconde est déterministe, ce constat remet directement en question les métrologies de chaque participant. Plusieurs expériences complémentaires menées à ce sujet sur DERIC n'ont pas permis de remettre en cause les mesures obtenues sur ce banc sans toutefois parvenir à expliquer les écarts avec les participants (ces expériences complémentaires n'ont notamment pas encore été réalisées par les autres participants). Néanmoins, des pistes ont été dégagées comme celle du rôle probable du profil temporel et/ou du contraste temporel ainsi que celui de la contamination. Ces pistes restent à approfondir, éventuellement lors d'une nouvelle inter-comparaison. Cette première étude comparative entre différents laboratoires aura cependant permis d'illustrer la difficulté d'assurer une bonne métrologie même dans un régime d'endommagement laser déterministe. Poursuivre ces collaborations constitue sûrement le meilleur moyen de renforcer les métrologies de chacun et de parvenir à des mesures de plus en plus justes.

---

## Chapitre III

# Dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque et sur défauts

Les installations laser de puissance pouvant travailler à différentes durées d'impulsion et étant confrontées au phénomène d'endommagement laser, une problématique récurrente pour ces installations est de savoir à quel point un changement de la durée d'impulsion impacte la résistance au flux des composants optiques les constituant. Dans ce chapitre, nous traiterons du cas des miroirs diélectriques et commencerons par présenter l'étude de la dépendance temporelle de leur seuil d'endommagement intrinsèque dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde. Il sera montré, notamment grâce au diagnostic SPIRITED développé au CEA-CESTA [67], que le phénomène d'endommagement intrinsèque ne dépend pas seulement de la durée d'impulsion comme il est souvent rapporté [38,41,43,62] mais bien de tout le profil temporel d'intensité. Ce constat, en plus de clarifier la métrologie nécessaire à l'étude de l'endommagement intrinsèque, a de fortes répercussions sur le concept de lois d'échelles temporelles du seuil intrinsèque de matériaux diélectriques. Dans un second temps, nous aborderons la problématique de l'endommagement sur défauts qui, à l'instar de l'endommagement intrinsèque, fait partie intégrante de la qualification de la tenue au flux de composants optiques. Nous verrons que cette forme d'endommagement est quant à elle très peu affectée par les caractéristiques temporelles de l'impulsion.

## **Tables des matières du Chapitre III**

<b>III.A</b> Définition et caractérisation des miroirs étudiés.....	121
<b>III.B</b> Dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque.....	123
<b>III.B.1</b> Étude expérimentale.....	123
<b>III.B.1.a</b> Validation de la procédure Monoshot dans les régimes sub-pico-seconde et pico-seconde.....	123
<b>III.B.1.b</b> Lois d'échelles temporelles expérimentales.....	125
<b>III.B.2</b> Étude numérique.....	127
<b>III.B.2.a</b> Description du modèle.....	127
<b>III.B.2.b</b> Lois d'échelles temporelles numériques.....	131
<b>III.B.3</b> Discussion autour de la dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque.....	132
<b>III.C</b> Dépendance temporelle de l'endommagement laser sur défauts.....	136
<b>III.C.1</b> Résultats expérimentaux.....	136
<b>III.C.1.a</b> Densités surfaciques de dommages induits sur défauts.....	136
<b>III.C.1.b</b> Morphologies des dommages induits sur défauts.....	138
<b>III.C.2</b> Discussion autour de la dépendance temporelle de l'endommagement laser sur Défauts.....	142
<b>Conclusion du Chapitre III</b> .....	<b>147</b>

### III.A Définition et caractérisation des miroirs étudiés

Hormis la section III.B.1.a où un miroir légèrement différent a été utilisé (et qui sera décrit à cet endroit), toutes les études de ce chapitre ont été menées sur un même lot de miroirs diélectriques dont sont données ici les caractéristiques.

Chaque miroir est constitué d'un empilement de couches minces alternativement faites de SiO<sub>2</sub> et de HfO<sub>2</sub> (matériaux diélectriques de largeur de bande interdite d'environ 7,5 eV pour SiO<sub>2</sub> et 5,5 eV pour HfO<sub>2</sub> [25,83]). Ces matériaux ont été déposés par procédé e-beam. Les indices optiques sont respectivement de 1,468 pour SiO<sub>2</sub> et 1,920 pour HfO<sub>2</sub> à 1054 nm (données fabricant). Chaque miroir est de type quart d'onde à 1054 nm et 45° d'incidence possédant ainsi une réflectivité supérieure à 99 % en polarisation S et P (l'aspect quart d'onde d'un miroir ainsi que l'impact de la polarisation et de l'angle d'incidence sur sa réflectivité sont présentés en annexe 7). Pour toute la suite de ce chapitre, nous noterons SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub> respectivement matériaux B et H (pour matériaux à bas et haut indice). Ainsi, la structure complète des miroirs utilisés s'écrit comme suit :

$$[\text{UVFS} / (\text{HB})^{17} \text{H} 2\text{B} / \text{Air}]$$

où UVFS désigne le substrat fait de silice fondue et (HB)<sup>17</sup> les dix-sept premières paires de couches déposées sur le substrat. La dernière couche déposée (et donc la première irradiée par une impulsion laser) est notée 2B car il s'agit d'une couche demi-onde. Étant optiquement neutre, son rôle est de protéger l'avant dernière couche H déposée, mécaniquement plus fragile. Ce type de miroir avec une couche protectrice 2B est typique des structures utilisées en régime nanoseconde et qui ont inspiré les premiers miroirs mis en place pour le régime picoseconde. Cependant, plusieurs études ont permis une optimisation des structures utilisées pour ce régime qui ne nécessitent plus l'emploi de cette couche 2B [51,84].

Enfin, nous donnons en Figure 3-1 la répartition de l'EFI (grandeur définie au premier chapitre par l'équation 1-7) au sein de ces miroirs lorsqu'ils sont irradiés à 45° d'incidence (angle utilisé pour les expériences présentées dans ce chapitre).

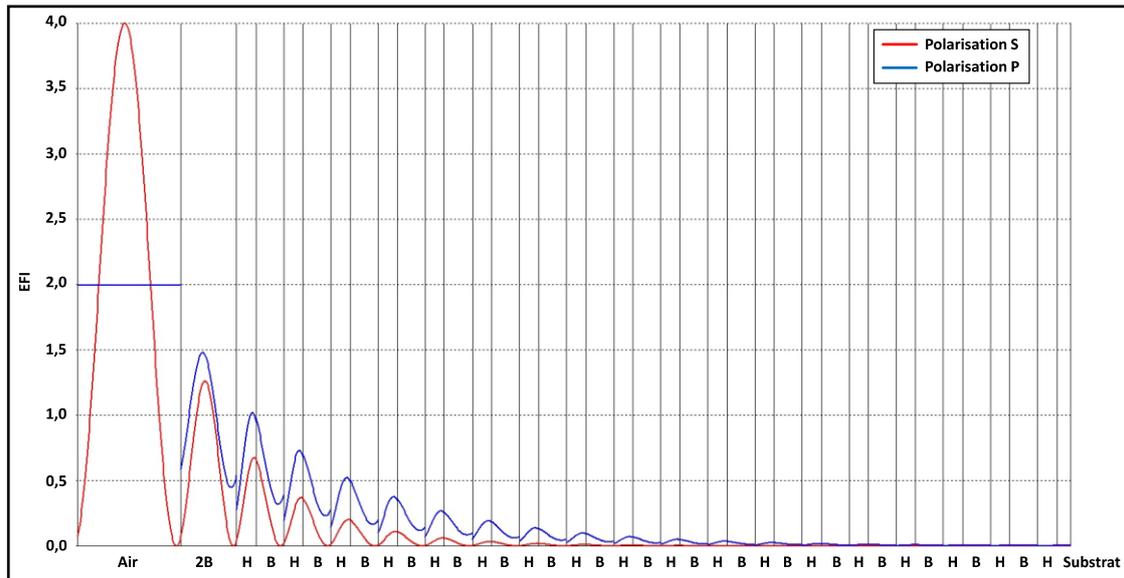


Figure 3-1 : Répartition de l'EFI au sein des miroirs diélectriques employés dans le cadre des études de ce chapitre pour une incidence de  $45^\circ$  et une longueur d'onde centrale de 1054 nm. Le cas de la polarisation P (en bleu) se distingue notamment par la discontinuité de l'EFI à chaque interface (causée par la discontinuité de la composante normale du champ électrique au passage d'un dioptré). Les calculs ont été effectués à partir du logiciel TFCalc [50].

Dans le cas d'un miroir comportant plusieurs couches et donc plusieurs pics de surintensifications (Figure 3-1), son LIDT correspond à celui de sa couche la moins résistante. Les miroirs décrits ici ont été irradiés à  $45^\circ$  d'incidence par des impulsions polarisées P. Dans ces conditions, comme montré dans la Figure 3-1, les valeurs maximales d'EFI sont de 1,48 pour  $\text{SiO}_2$  (couche 2B) et de 1,02 pour  $\text{HfO}_2$  (couche H sous la couche 2B). Ne disposant pas des monocouches  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  associées à ces miroirs, nous nous sommes appuyés sur les valeurs de fluences intrinsèques données pour ces deux matériaux déposés en EBD à 0,5 ps et 1030 nm par L. Gallais & M. Commandré [25] :  $3,15 \pm 0,35 \text{ J/cm}^2$  pour  $\text{SiO}_2$  (seule valeur référencée) et de  $1,71 \pm 0,07 \text{ J/cm}^2$  à  $2,02 \pm 0,08 \text{ J/cm}^2$  pour  $\text{HfO}_2$ . L'application de l'équation 1-8 donne un LIDT théorique du miroir à 0,5 ps de  $2,13 \pm 0,24 \text{ J/cm}^2$  en considérant  $\text{SiO}_2$  et variant entre  $1,68 \pm 0,07 \text{ J/cm}^2$  et  $1,98 \pm 0,08 \text{ J/cm}^2$  en considérant  $\text{HfO}_2$ . Ces estimations se recoupent ce qui signifie qu'il n'est pas possible de départager clairement  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  quant à savoir lequel des deux constitue le matériau limitant pour ces miroirs utilisés dans cette configuration ( $45^\circ$  d'incidence et polarisation P). Autrement dit, l'un ou l'autre de ces matériaux peut être considéré comme limitant. Comme il sera montré par la suite, ces prédictions seront confirmées à la fois expérimentalement et numériquement.

Toutes les expériences présentées par la suite (endommagement intrinsèque et sur défauts) ont été menées sur le banc d'endommagement laser DERIC (décrit dans le deuxième chapitre).

## III.B Dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque

Comme présenté dans le premier chapitre, l'endommagement laser intrinsèque de matériaux diélectriques est caractéristique de l'endommagement laser en régime d'impulsions « courtes » et reste un des principaux obstacles à la montée en énergie des installations Petawatt. Cette partie présente les expériences et les simulations consacrées à l'étude de la dépendance temporelle de cette forme d'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde.

### III.B.1 Étude expérimentale

#### III.B.1.a Validation de la procédure Monoshot dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde

Au vu des avantages que présente la procédure Monoshot (décrite au deuxième chapitre) pour l'étude de l'endommagement intrinsèque, nous avons souhaité employer cette procédure pour les expériences présentées dans ce chapitre. Ces dernières ayant été réalisées entre 0,8 et 3,0 ps, une première étape a été de vérifier que la procédure Monoshot reste valide dans toute cette gamme temporelle, cette procédure ayant été à l'origine uniquement utilisée et validée à 0,7 ps [74]. Nous avons pour cela comparé, pour l'ensemble des durées d'impulsions envisagées pour l'expérience principale présentée en prochaine section, les valeurs de LIDT obtenues sur un miroir diélectrique à partir des procédures 1-on-1 et Monoshot (la procédure 1-on-1 est décrite au deuxième chapitre).

Le miroir ici considéré est quart d'onde et possède la structure suivante :

$$[\text{BK7} / (\text{BH})^{15} / \text{Air}]$$

Les matériaux ont été déposés via la technique e-beam + IAD. Les indices optiques sont de 1,448 et 1,930 à 1053 nm pour  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  respectivement (mesurés au spectromètre). Les monocouches associées à ce miroir ont permis de déterminer des fluences intrinsèques de  $3,03 \pm 0,04 \text{ J/cm}^2$  pour  $\text{SiO}_2$  et  $2,11 \pm 0,06 \text{ J/cm}^2$  pour  $\text{HfO}_2$  (à 0,8 ps). Enfin, ayant opéré à  $45^\circ$  d'incidence et en polarisation P, la répartition de l'EFI dans ce miroir est telle que les valeurs maximales d'EFI sont respectivement de 0,92 et 0,93 pour  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  (dans les deux premières couches irradiées). Compte tenu des fluences intrinsèques obtenues sur monocouches, l'application de l'équation 1-8 permet de déduire des LIDTs théoriques du miroir de  $3,29 \pm 0,04 \text{ J/cm}^2$  à partir de  $\text{SiO}_2$  et de  $2,27 \pm 0,06 \text{ J/cm}^2$  à partir de  $\text{HfO}_2$  (à 0,8 ps). Le miroir ici considéré est donc limité en termes de tenue au flux par sa première couche de  $\text{HfO}_2$  irradiée. Les résultats sont graphiquement représentés en Figure 3-2 et rassemblés dans le tableau 3-1 (dans lequel nous reportons également pour information les fluences intrinsèques correspondantes du matériau limitant, ici  $\text{HfO}_2$ ).

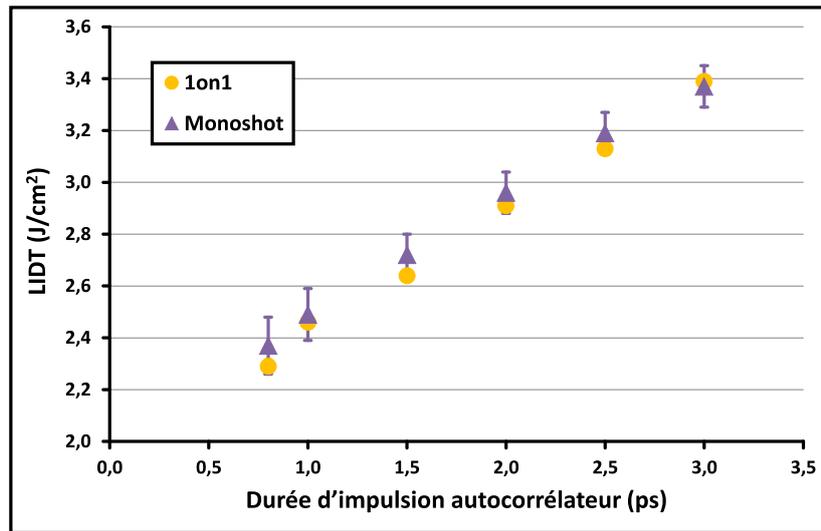


Figure 3-2 : Comparaison, pour plusieurs durées d'impulsions, des LIDTs obtenus sur un miroir diélectrique avec les procédures Monoshot et 1-on-1 (la première couche irradiée étant constituée de  $\text{HfO}_2$  est la couche limitante en termes de tenue au flux intrinsèque).

Durée d'impulsion (ps)	LIDT <sub>1-on-1</sub> (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,1-on1</sub> (J/cm <sup>2</sup> )	LIDT <sub>Monoshot</sub> (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,Monoshot</sub> (J/cm <sup>2</sup> )
0,8	2,29 ± 0,02	2,13 ± 0,02	2,37 ± 0,11	2,20 ± 0,10
1,0	2,46 ± 0,01	2,29 ± 0,01	2,49 ± 0,10	2,32 ± 0,09
1,5	2,64 ± 0,01	2,46 ± 0,01	2,72 ± 0,08	2,53 ± 0,07
2,0	2,91 ± 0,05	2,71 ± 0,05	2,96 ± 0,08	2,75 ± 0,07
2,5	3,13 ± 0,02	2,91 ± 0,02	3,19 ± 0,08	2,97 ± 0,07
3,0	3,39 ± 0,03	3,15 ± 0,03	3,37 ± 0,08	3,13 ± 0,07

Tableau 3-1 : Résultats de la Figure 3-2. Les valeurs de LIDT ont été déterminées à 45° d'incidence et pour une polarisation P. Les fluences intrinsèques F<sub>int</sub> sont celles du matériau limitant  $\text{HfO}_2$  déposé par procédé e-beam + IAD ; elles ont été calculées à partir de l'équation 1-8 en appliquant un EFI de 0,93. Les barres d'erreur sont celles relatives aux procédures employées (1-on-1 et Monoshot).

Conformément aux prédictions énoncées plus haut, un LIDT d'environ 2,3 J/cm<sup>2</sup> à 0,8 ps est déterminé par les deux procédures. Une erreur moyenne de 1% est faite en 1-on-1 (barres d'erreurs trop petites pour être visibles sur la Figure 3-2) tandis qu'une erreur de 3% est faite en Monoshot. Ces faibles erreurs s'expliquent en grande partie par le fait que  $\text{HfO}_2$  est un matériau à relativement haut indice ce qui facilite l'observation et la détection d'un dommage au microscope DIC (meilleur contraste d'indice avec le substrat que dans le cas de  $\text{SiO}_2$ , voir par exemple les incertitudes du tableau 2-6). Les erreurs sont plus grandes en Monoshot qu'en 1-on-1 car le Monoshot s'appuie sur toutes les fluences obtenues le long d'un contour d'endommagement (voir Figure 2-26) là où le 1-on-1 s'appuie uniquement sur deux fluences encadrant le LIDT (voir Figure 2-24). Surtout, les LIDTs obtenus via la procédure Monoshot ne diffèrent que de 2% en moyenne de ceux obtenus via la procédure 1-on-1 pour l'ensemble des durées d'impulsions étudiées ce qui valide l'utilisation du Monoshot dans la gamme temporelle visée. Enfin, nous voyons que cette qualification étendue de la procédure Monoshot fait apparaître une dépendance temporelle du LIDT avec la durée d'impulsion, dépendance qui peut se paramétrer selon ce qui est appelé une loi d'échelle temporelle. L'objet des prochaines sections est d'étudier en détail ce concept de loi d'échelle à partir de résultats expérimentaux et numériques sur un miroir tel que présenté en début de chapitre.

### III.B.1.b Lois d'échelles temporelles expérimentales

Comme présenté dans le deuxième chapitre, DERIC dispose de deux plages temporelles distinctes (appelées plage 1 et plage 2). Ces dernières sont caractérisées par une même gamme de durée d'impulsion mesurée par autocorrélation (entre 0,8 ps et 3,5 ps) mais par des profils temporels d'intensité différents (voir Figure 2-14). La tenue au flux intrinsèque des miroirs étudiés dans ce chapitre a été étudiée pour ces deux plages. Les résultats sont graphiquement représentés dans la Figure 3-3 et rassemblés dans le tableau 3-2 (où comme pour le tableau 3-1, nous reportons pour information les valeurs des fluences intrinsèques du matériau limitant qui peut être ici  $\text{HfO}_2$  comme  $\text{SiO}_2$  comme expliqué en début de chapitre).

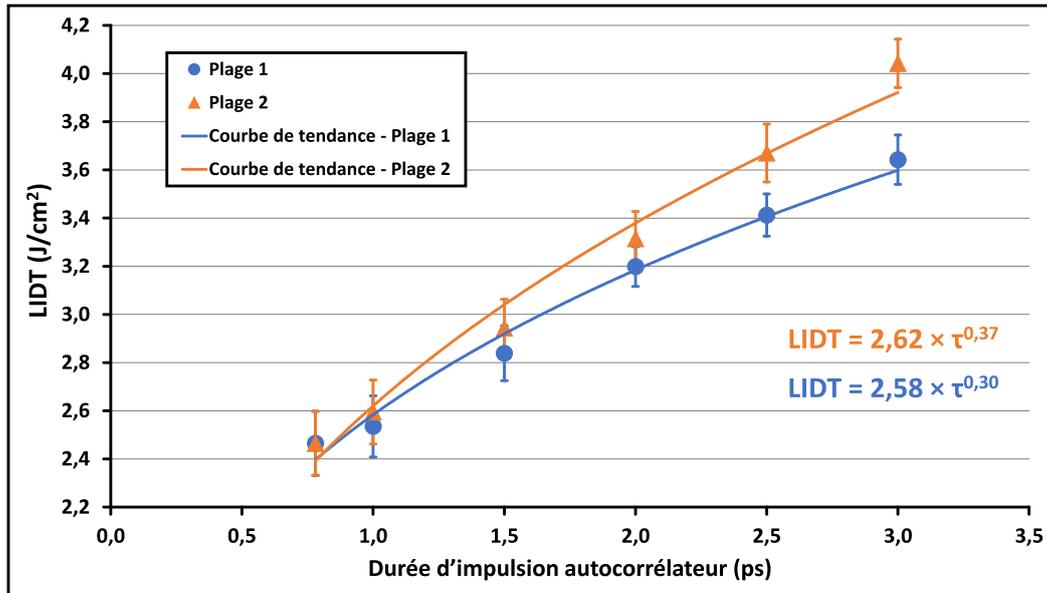


Figure 3-3 : Évolution du LIDT d'un miroir diélectrique irradié à 45° d'incidence en polarisation P pour deux plages temporelles (plage 1 et 2) ayant les mêmes durées d'impulsions mesurées par autocorrélation mais des profils temporels d'intensité différents. Deux lois d'échelles temporelles distinctes sont obtenues.

À titre indicatif, les résultats présentés en Figure 3-2 ont été obtenus à partir de la plage 1 et se traduisent par la loi d'échelle temporelle suivante :

$$\text{LIDT} = (2,45 \pm 0,03) \times \tau^{0,27 \pm 0,01} \text{ (avec LIDT en J/cm}^2 \text{ et } \tau \text{ en ps)}$$

Les erreurs sur le coefficient et l'exposant proviennent du fait que cette loi d'échelle temporelle résulte de la moyenne faite entre les deux lois d'échelles temporelles obtenues d'après les procédures 1-on-1 et Monoshot.

Course 1			
Durée d'impulsion (ps)	LIDT (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,SiO<sub>2</sub></sub> (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,HfO<sub>2</sub></sub> (J/cm <sup>2</sup> )
0,8	2,47 ± 0,13	3,66 ± 0,19	2,52 ± 0,13
1,0	2,54 ± 0,13	3,76 ± 0,19	2,59 ± 0,13
1,5	2,84 ± 0,11	4,20 ± 0,16	2,90 ± 0,11
2,0	3,20 ± 0,08	4,74 ± 0,12	3,26 ± 0,08
2,5	3,41 ± 0,09	5,05 ± 0,13	3,48 ± 0,09
3,0	3,64 ± 0,10	5,39 ± 0,15	3,71 ± 0,10
Course 2			
Durée d'impulsion (ps)	LIDT (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,SiO<sub>2</sub></sub> (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,HfO<sub>2</sub></sub> (J/cm <sup>2</sup> )
0,8	2,47 ± 0,13	3,66 ± 0,19	2,52 ± 0,13
1,0	2,60 ± 0,13	3,85 ± 0,19	2,65 ± 0,13
1,5	2,94 ± 0,12	4,35 ± 0,18	3,00 ± 0,12
2,0	3,32 ± 0,11	4,91 ± 0,16	3,39 ± 0,11
2,5	3,67 ± 0,12	5,43 ± 0,18	3,74 ± 0,12
3,0	4,04 ± 0,10	5,98 ± 0,15	4,12 ± 0,10

Tableau 3-2 : Résultats de la Figure 3-3. Les valeurs de LIDT ont été déterminées à 45° d'incidence et pour une polarisation P. Les fluences intrinsèques F<sub>int</sub> sont données ici pour SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub> (ces deux matériaux pouvant chacun être considéré comme le matériau limitant) déposés par procédé e-beam ; elles ont été calculées à partir de l'équation 1-8 en appliquant un EFI de 1,48 et 1,02 pour SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub> respectivement. Les barres d'erreur sont celles relatives à la procédure employée (Monoshot).

Pour les deux plages, le LIDT augmente avec la durée d'impulsion, cette dépendance temporelle pouvant être traduite par une loi d'échelle temporelle où le LIDT varie avec la durée d'impulsion selon une loi de puissance. Ce résultat obtenu sur miroir est très similaire avec ce qui a déjà été observé sur monocouches [38] ce qui tend à confirmer que la tenue au flux d'un miroir est bien conditionnée par sa couche limitante. En revanche, il apparaît que la loi d'échelle temporelle du LIDT d'un matériau diélectrique (déposé en monocouche ou au sein d'un empilement type miroir) n'est pas unique pour une plage temporelle donnée. La Figure 3-3 montre en effet que pour une même durée d'impulsion mesurée par autocorrélation, deux seuils différents sont systématiquement mesurés (en dehors du minimum d'impulsion qui est commun aux deux plages) ce qui aboutit à l'établissement de deux lois d'échelles temporelles différentes.

La durée d'impulsion estimée par autocorrélation n'apparaît donc pas comme étant le critère adéquat pour comprendre la dépendance temporelle du LIDT. Nous faisons l'hypothèse que ces différences de tenue au flux sont dues aux profils temporels d'intensité propres à chaque plage temporelle (voir Figure 2-14). Pour le confirmer, nous avons développé un modèle numérique, prenant en compte le profil temporel d'intensité d'une impulsion laser lors de son interaction avec un matériau diélectrique, avant de l'adapter aux expériences menées. Ce modèle et les résultats numériques obtenus sont présentés ci-après.

## III.B.2 Étude numérique

L'étude numérique présentée dans la suite a été menée sur Matlab [85].

### III.B.2.a Description du modèle

Comme présenté dans le premier chapitre, il est communément admis que le processus d'endommagement laser intrinsèque commence lorsqu'une densité critique d'électrons libres est atteinte lors de l'irradiation. Cette densité critique résulte de mécanismes électroniques décrits dans le premier chapitre et illustrés pour la plupart en Figure 1-13. Le modèle numérique développé pour cette étude reprend la quasi-totalité de ces mécanismes qui se scindent en deux catégories ; ceux d'excitation électronique (tous sont repris par le modèle) et ceux de relaxation électronique (trois parmi cinq sont repris).

Pour les mécanismes d'excitation électronique sont ainsi considérés :

- La photoionisation (absorption multi-photonique et/ou effet tunnel).
- Le processus « inverse Bremsstrahlung ».
- L'ionisation par impact.

Pour les mécanismes de relaxation électronique sont considérés :

- La relaxation électron-électron (caractérisée par un temps  $\tau_{e-e}$ ).
- La relaxation électron-ion ( $\tau_{e-i}$ ).
- La recombinaison indirecte ( $\tau_r$ ).

#### Remarques :

- Les relaxations électron-électron et électron-ion (toutes deux intervenant dans la bande de conduction) sont regroupées en étant caractérisées par un temps moyen  $\tau_m$  de relaxation dans cette bande avec  $\frac{1}{\tau_m} = \frac{1}{\tau_{e-e}} + \frac{1}{\tau_{e-i}}$  [32-33].
- La relaxation par recombinaison indirecte concerne ici la formation d'états STE (Self Trapped Exciton, voir premier chapitre). De manière identique à l'étude de Mero et al. [38] (voir équation 1-3), le temps caractéristique  $\tau_r$  est un temps dit effectif car il comprend à la fois la possibilité de relaxation d'un électron de la BC vers l'état STE et la possibilité qu'il soit de nouveau excité vers la BC depuis cet état STE. Rethfeld et al. [39] ont par exemple choisi quant à eux de distinguer ces deux possibilités en leur associant des termes propres.
- La relaxation radiative par recombinaison directe n'est pas prise en compte puisque ce processus intervient sur des échelles de temps beaucoup plus longues (de l'ordre de la nanoseconde [27]) que les durées d'impulsions ici en jeu (de l'ordre de la picoseconde). La relaxation électron-phonon est également négligée pour deux raisons : tout d'abord à cause de son temps caractéristique qui varie entre quelques picosecondes et plusieurs dizaines de picosecondes [37] ce qui la rend au mieux négligeable pour des impulsions ne dépassant pas 3 ps (notre cas), ensuite parce que les densités électroniques en jeu sont telles que cette relaxation a moins de probabilité de se produire que la relaxation électron-ion [28].

En première approche, l'apport de tous ces mécanismes est formalisé par l'équation de taux 1-2 présentée dans le premier chapitre et appelée SRE pour Simple Rate Equation. Cependant, cette approche n'est valable que pour des temps d'irradiation de l'ordre de la picoseconde ou plus. Une approche plus complète, toujours basée sur des équations de taux, a ainsi été développée (notamment par B. Rethfeld [39,86]) pour rendre compte de l'évolution de la densité d'électrons libres même pour des temps d'irradiation très courts de l'ordre de la femtoseconde. Cette approche est appelée MRE pour Multiple Rate Equation. Contrairement à l'approche SRE qui ne s'applique qu'en globalité à toute la population électronique excitée, l'approche MRE se base essentiellement sur le suivi de plusieurs populations électroniques au sein de la bande de conduction. Ce faisant, elle rend compte de l'ensemble de la dynamique électronique en décrivant les électrons libres de faibles, moyennes et hautes énergies cinétiques au sein de cette bande : pour des durées d'impulsion courtes (dizaines à centaines de femtosecondes), la photoionisation prédomine en tant que mécanisme générant les premiers porteurs libres, ceux de basses énergies. Pour des durées d'impulsion longues (au moins quelques picosecondes), l'avalanche électronique domine car suffisamment de temps s'écoule pour permettre aux porteurs libres de basses énergies d'être accélérés par processus « inverse Bremsstrahlung » pour former des porteurs libres de hautes énergies nécessaires à l'instauration de l'ionisation par impact. Le cas de durées d'impulsion autour de la picoseconde est intermédiaire (DERIC se situe dans ce domaine temporel) ; il s'agit d'un régime transitoire où ni photoionisation ni avalanche électronique ne prédominent clairement l'un sur l'autre.

Pour effectivement suivre la dynamique de plusieurs populations électroniques, l'approche MRE s'appuie sur la discrétisation de la bande de conduction en termes de niveaux d'énergies disponibles : cette bande est supposée contenir un nombre fini de niveaux d'énergies et ces énergies sont supposées être elles-mêmes finies (pas de continuum). L'écart énergétique entre deux niveaux consécutifs correspond à l'énergie d'un photon incident (quantification du processus « inverse Bremsstrahlung »). Le nombre de niveaux d'énergies est quant à lui limité par une énergie critique  $E_{cri}$  dont la définition dépend à la fois des paramètres matériaux et lasers [28]. Tout électron ayant une énergie supérieure ou égale à  $E_{cri}$  est supposé ne plus en gagner et retourner au premier niveau de la bande de conduction après avoir transféré une partie de son énergie à un électron de la bande de valence, ce dernier passant lui aussi au premier niveau de la bande de conduction (c'est le processus d'ionisation par impact). L'approche MRE considérée pour le modèle numérique décrit ici se décline ainsi selon le système d'équations différentielles suivant :

$$\frac{dN_0}{dt} = W_{PI} + 2 \times \tilde{\alpha} \times N_k - W_{1ph} \times N_0 - \frac{N_0}{\tau_r}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = W_{1ph} \times N_0 - W_{1ph} \times N_1 - \frac{N_1}{\tau_r}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = W_{1ph} \times N_1 - W_{1ph} \times N_2 - \frac{N_2}{\tau_r}$$

...

$$\frac{dN_{k-1}}{dt} = W_{1ph} \times N_{k-2} - W_{1ph} \times N_{k-1} - \frac{N_{k-1}}{\tau_r}$$

$$\frac{dN_k}{dt} = W_{1ph} \times N_{k-1} - \tilde{\alpha} \times N_k - \frac{N_k}{\tau_r}$$

Équations 3-1 à 3-5 : Jeu d'équations différentielles formalisant l'approche MRE choisie pour le modèle numérique présenté dans ce chapitre. En sommant toutes les équations, on retrouve, au terme de relaxation près qui n'avait alors pas été considéré, l'équation 1-4 qui est la version SRE résultant de l'approche MRE introduite et développée par Rethfeld et al. [42]. Les termes  $W_{PI}$ ,  $\tilde{\alpha}$  et  $W_{1ph}$  sont donnés en annexe 1.

avec

$W_{PI}$  : taux de photoionisation ( $m^{-3}.s^{-1}$ , nous reprenons l'expression utilisée par Tien et al. [30])

$\tilde{\alpha}$  : probabilité d'ionisation par impact ( $s^{-1}$ ;  $\tilde{\alpha}$  prend en compte  $\tau_m$ , voir annexe 1)

$W_{1ph}$  : probabilité d'absorption intrabande d'un photon ( $s^{-1}$ , voir annexe 1)

$1/\tau_r$  : probabilité de relaxation par piégeage STE ( $s^{-1}$ )

$k$  : nombre de niveaux ayant une énergie strictement inférieure à  $E_{cri}$  (niveaux 0 à  $k-1$ , le niveau  $k$  correspond aux électrons d'énergie supérieure à  $E_{cri}$ )

$N_i$  : densité volumique d'électrons libres du niveau  $i$  ( $m^{-3}$ ),  $i$  variant ici entre 0 et  $k$ . Par souci de simplification, la dépendance temporelle n'est pas représentée ( $N_i = N_i(t)$ ).

**Matériau considéré :** comme expliqué en première partie de ce chapitre,  $SiO_2$  comme  $HfO_2$  peuvent théoriquement être considérés comme le matériau limitant des miroirs utilisés dans les conditions expérimentales de cette étude ( $45^\circ$  d'incidence et polarisation P). Étant effectivement parvenus à la même conclusion à travers les simulations, nous avons fait le choix de ne présenter en détail que le cas de  $SiO_2$  et de simplement donner les paramètres obtenus pour  $HfO_2$ .

**Impulsions considérées :** impulsions ayant pour profils temporels ceux mesurés sur le banc DERIC par le diagnostic SPIRITED (décrits dans le deuxième chapitre).

Il est nécessaire de classer en tant que variable ou paramètre les différentes grandeurs décrivant le matériau  $SiO_2$  et chaque impulsion.

Pour SiO<sub>2</sub> ont été choisis :

- Comme paramètres
  - La masse effective  $m_{\text{eff}}$  de l'électron ( $m_{\text{eff}} = 0,5 \times m_e = 0,5 \times 9,109 \times 10^{-31}$  kg [26,87-88]).
  - L'énergie de bande interdite (7,5 eV [25-26]).
  - L'indice de réfraction (1,468 à 1054 nm d'après les données du fabricant).
  - La valeur maximale  $\text{EFI}_{\text{max}}$  du facteur de surintensification du champ électrique au sein de ce matériau dans le miroir considéré (1,48 comme indiqué en début de chapitre).
- Comme variables
  - Les temps caractéristiques de relaxation  $\tau_r$  et  $\tau_m$ .

Pour chaque impulsion ont été choisis :

- Comme paramètre
  - Le profil temporel d'intensité (mesuré par le diagnostic SPIRITED).
- Comme variable
  - La fluence.

Enfin, nous avons choisi comme critère d'endommagement la densité totale d'électrons libres : l'endommagement intrinsèque est considéré comme atteint dès que cette densité totale vaut la valeur critique  $N_{\text{cri}} = 10^{21}$  cm<sup>-3</sup>. Le choix de cette valeur est très courant [33,38,41,43] ; il correspond à l'atteinte d'une forte absorption dans le gaz d'électrons et à un fort couplage avec le laser. Les simulations ont ainsi été menées selon la procédure suivante :  $\tau_r$  et  $\tau_m$  sont d'abord fixées à certaines valeurs. Ensuite, pour chaque profil temporel ayant été mesuré par le diagnostic SPIRITED, la fluence seuil nécessaire pour atteindre  $N_{\text{cri}}$  est recherchée. Une fois déterminés tous les seuils correspondants à l'ensemble des profils des plages 1 et 2, les lois d'échelles temporelles résultantes sont comparées à celles déterminées expérimentalement. Si l'écart entre lois numériques et lois expérimentales est jugé trop important, la procédure est reprise depuis le début en fixant de nouvelles valeurs pour  $\tau_r$  et  $\tau_m$ . Ce cycle est répété jusqu'à ce que les lois d'échelles temporelles obtenues numériquement correspondent au mieux à celles déterminées expérimentalement.

### III.B.2.b Lois d'échelles temporelles numériques

La Figure 3-4 rassemble les résultats numériques obtenus à l'aide du modèle décrit précédemment.

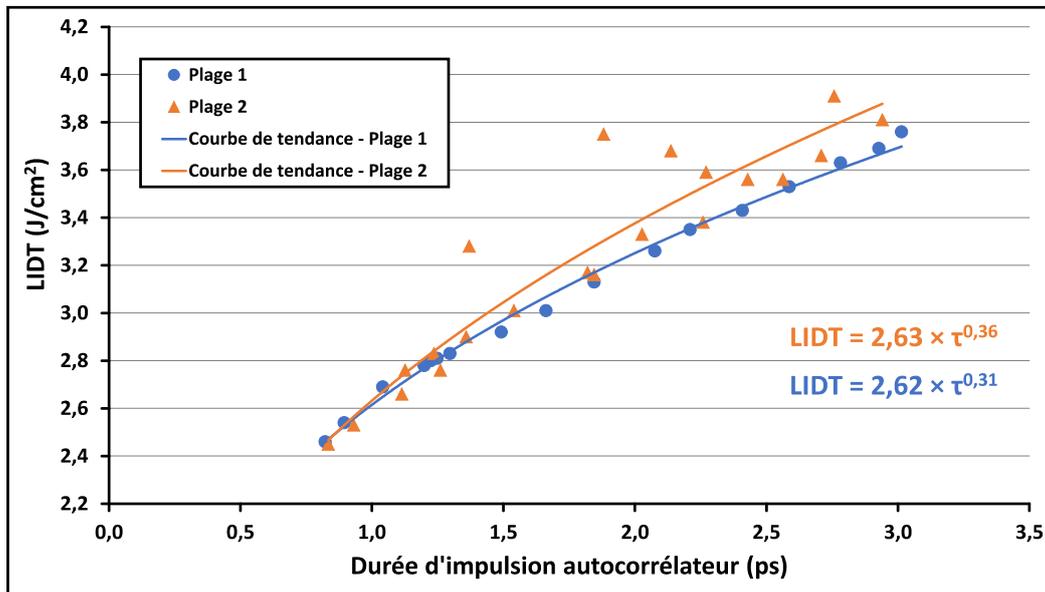


Figure 3-4 : Lois d'échelles temporelles numériques déterminées sur un miroir diélectrique pour l'ensemble des profils temporels mesurés au diagnostic SPIRITED sur les plages 1 et 2 de DERIC (chaque point correspond à un profil, une grande partie des profils SPIRITED sont donnés en annexe 2). Deux lois distinctes sont obtenues.

Un point important ici est l'orientation temporelle des profils. Comme mentionné dans le deuxième chapitre, le diagnostic SPIRITED reste ambigu quant au sens de lecture des profils. Les simulations menées ont permis de lever cette ambiguïté car seul le cas où les profils sont lus de gauche à droite (en considérant les exemples de profils donnés dans la Figure 2-14) a permis de retrouver les résultats expérimentaux.

Les résultats numériques présentés en Figure 3-4 ont été obtenus avec  $\tau_r = 270$  fs et  $\tau_m = 1,2$  fs. Ces valeurs sont en très bon accord avec d'autres travaux employant ces temps de relaxation lors de l'étude de l'endommagement de  $\text{SiO}_2$  déposé en couche mince ( $\tau_r = 220$  fs [38] et  $\tau_m = 0,18$  fs [33] sachant que  $\tau_m$  est compris entre 0,1 et 10 fs pour la silice [33]) ce qui renforce la validité des simulations menées.

Enfin, comme mentionné en début de chapitre,  $\text{HfO}_2$  peut aussi être théoriquement considéré comme le matériau limitant dans notre cas. Ce cas de figure a également été validé en retrouvant les résultats expérimentaux à l'aide de simulations se basant sur ce matériau : pour paramètres matériaux ont été considérés une masse effective de  $0,6 \times m_e$  pour l'électron [89], une énergie de bande interdite de 5,5 eV [6-7,18], un indice de réfraction de 1,920 à 1054 nm (donnée fabricant), une valeur  $EFI_{\max}$  de 1,02 (comme indiqué en début de chapitre) et des temps de relaxation  $\tau_r = 1050$  fs (valeur identique à l'étude de Mero et al. [38]) et  $\tau_m = 1,0$  fs (pas de valeur répertoriée dans la littérature à notre connaissance).

### III.B.3 Discussion autour de la dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque

La Figure 3-5 rassemble les résultats expérimentaux et numériques obtenus.

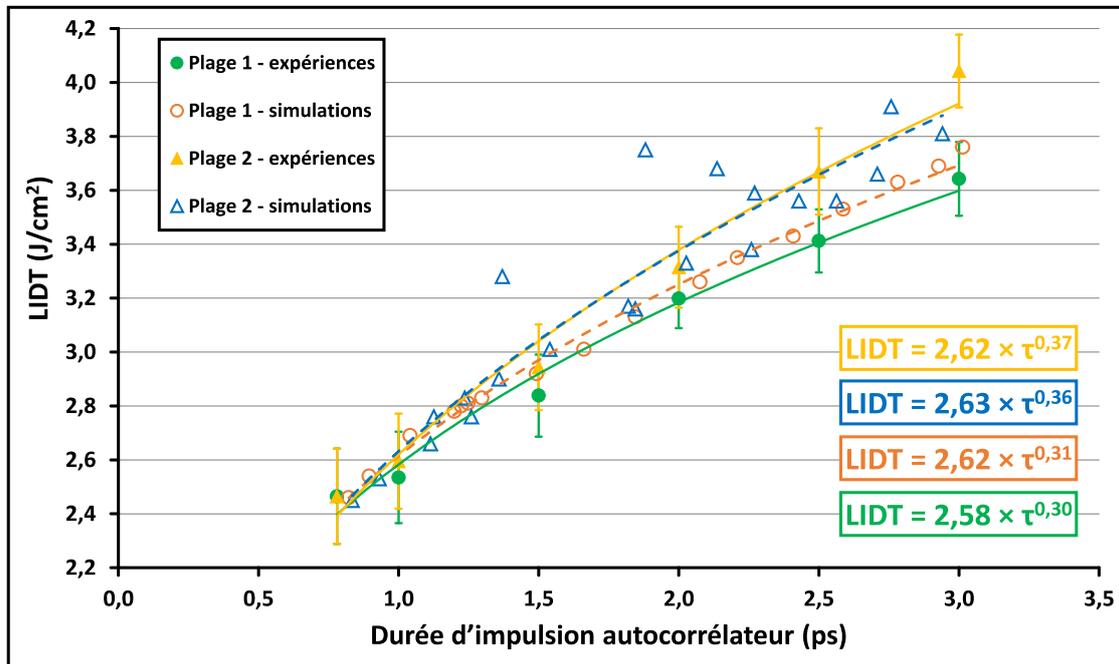


Figure 3-5 : Lois d'échelles temporelles obtenues expérimentalement et numériquement sur un miroir diélectrique à partir des plages temporelles 1 et 2 de DERIC. Ces deux plages présentent les mêmes durées d'impulsions mesurées par autocorrélation mais des profils temporels différents.

Un très bon accord est constaté entre expériences et simulations ce qui confirme le rôle majeur du profil temporel dans la dynamique d'endommagement de matériaux diélectriques pour la gamme temporelle utilisée.

Remarque : les mesures expérimentales en question ont été réalisées en 2017 alors que les profils temporels utilisés pour les simulations ont été mesurés par le SPIRITED en 2016 lors d'une précédente thèse (comme indiqué au deuxième chapitre). La présente étude est basée sur l'hypothèse que les profils n'ont pas significativement changé entre-temps, ce que semble confirmer les résultats.

L'étude numérique ayant notamment permis de déterminer le sens des profils temporels en jeu, il est possible d'expliquer qualitativement les résultats expérimentaux obtenus à l'aide des mécanismes électroniques décrits précédemment et en particulier pourquoi des LIDTs plus élevés sont obtenus avec la plage 2 plutôt qu'avec la plage 1 (10% d'écart constaté par exemple entre les deux valeurs obtenues à 3 ps) : pour simplifier la discussion, nous considérerons que chaque plage est caractérisée par un seul profil temporel contenant un pic principal et un pic secondaire d'intensité. Pour la plage 1, le pic principal interagit avec l'échantillon avant le pic secondaire. L'ordre est inversé pour la plage 2 (les pics restant les mêmes). Cette configuration est illustrée dans la Figure 3-6 qui reprend deux profils mesurés par le diagnostic SPIRITED.

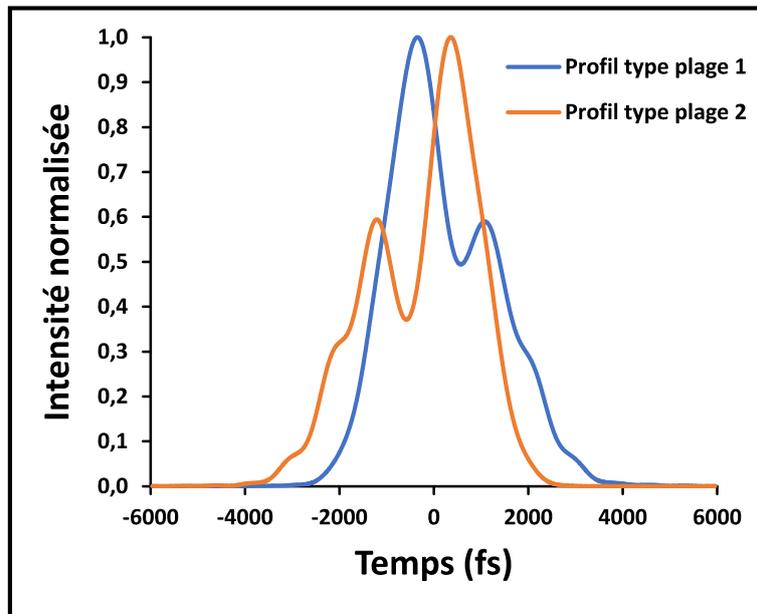


Figure 3-6 : Exemples de deux profils temporels (mesurés par le diagnostic SPIRITED) caractéristiques des plages 1 et 2. Les profils doivent être chronologiquement lus de gauche à droite.

Il semble alors raisonnable de supposer que dans le cas de la plage 1 (profil en bleu sur la Figure 3-6), le pic principal favorise d'abord fortement la photoionisation et qu'ensuite le pic secondaire aide efficacement l'établissement de l'avalanche électronique (de nombreux électrons libres étant disponibles). Au contraire, la photoionisation est moins marquée dans le cas de la plage 2 (en orange sur la Figure 3-6) avec le pic secondaire irradiant en premier ce qui ne favorise pas par la suite l'établissement de l'avalanche électronique avec le pic principal (moins d'électrons libres disponibles au bas de la bande de conduction). C'est pourquoi des LIDTs plus élevés sont obtenus avec la plage 2, plus d'énergie étant dans ce cas nécessaire afin d'atteindre la densité critique d'électrons libres. Cette dépendance de la dynamique électronique avec le profil temporel a déjà été observée pour ce même régime temporel (durée d'impulsion de l'ordre de la picoseconde) dans le domaine de l'ablation laser [90-93] où il a été montré que pour une énergie donnée, une impulsion présentant un pic principal d'intensité suivi de plusieurs pics secondaires facilite mieux l'établissement de l'avalanche électronique (et donc du régime d'ablation) qu'une impulsion ayant la configuration inverse. Dans notre cas, c'est la résistance du matériau qui est à privilégier et donc des profils temporels tels que ceux de la plage 2. Nous noterons pour finir que cette analyse qualitative des résultats expérimentaux est en accord avec l'approche MRE telle que décrite par Rethfeld et al. [39] et sur laquelle repose le modèle numérique de cette étude : pour des durées d'irradiation autour de la picoseconde, photoionisation et avalanche électronique contribuent de manière semblable à la dynamique électronique, la forme du profil temporel pouvant favoriser l'un ou l'autre de ces mécanismes. Il serait intéressant de réaliser une étude semblable avec des profils temporels tels que ceux de la Figure 3-6 mais ayant des largeurs à mi-hauteur plus grandes (par exemple entre 5 et 50 ps) de manière à cerner jusqu'où le profil temporel impacte le LIDT, en particulier dans sa capacité à retarder l'établissement du régime d'avalanche électronique puisque ce régime est attendu comme étant dominant pour des durées d'impulsions de plusieurs picosecondes, typiquement à partir de 10 ps [86]. Notre étude a confirmé que le profil temporel a bien une influence au moins jusqu'à 3 ps.

Cette étude de la dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque montre surtout que, pour le régime temporel étudié, le concept de loi d'échelle temporelle du LIDT repose entièrement sur le profil temporel et pas seulement sur la durée d'impulsion souvent mesurée par autocorrélation. Deux profils temporels différents induiront systématiquement deux LIDTs différents mais ne se verront pas nécessairement attribuer deux durées d'impulsions différentes par un autocorrélateur (voir Figure 2-9). Ainsi, si seul un autocorrélateur est utilisé pour la caractérisation temporelle des impulsions, il est possible de mesurer deux LIDTs différents pour la même durée d'impulsion « apparente » et à plus forte raison d'établir deux lois d'échelles temporelles différentes pour un même matériau sur une plage temporelle donnée mesurée par autocorrélation. Dans notre cas, les deux lois obtenues (Figure 3-3) résultent d'une combinaison de plusieurs profils temporels (Figure 2-14).

Ainsi, il apparaît que la connaissance du profil temporel est nécessaire tant pour les opérateurs qui établissent une loi d'échelle temporelle que pour ceux qui l'utiliseront par la suite : disposer d'un moyen de mesure du profil temporel en régime d'impulsions courtes améliore significativement la qualité de la métrologie prévue pour l'étude de l'endommagement laser (en particulier l'endommagement intrinsèque comme le montre l'étude de ce chapitre), cela facilite aussi grandement les comparaisons entre équipes de recherche de différents laboratoires (qui ne travaillent pas forcément avec les mêmes profils temporels), cela permet enfin une meilleure utilisation des lois d'échelles temporelles. En effet, en précisant avec quels profils une loi d'échelle a été établie, tout opérateur utilisant cette loi (comme moyen de prédiction du LIDT) pourra mieux juger de la précision de cette loi vis-à-vis de ses travaux.

Enfin, nous noterons que toute loi d'échelle établie expérimentalement a toutes les chances d'impliquer des profils temporels de différentes formes (inévitables effets du second et troisième ordres sur la phase par dérèglement du compresseur, voir section II.A.1.d.iv). Dans notre cas, cette diversité nous a été largement bénéfique car elle nous a permis de mettre en évidence le rôle central du profil temporel concernant le seuil d'endommagement intrinsèque et l'établissement des lois d'échelles temporelles de ce seuil mais dans le même temps, cette diversité rend les lois que nous avons établies (Figure 3-3) très probablement exclusives au banc DERIC. Il est en effet très improbable qu'un autre banc laser travaille avec exactement les mêmes profils temporels. Nous avons alors utilisé le modèle numérique présenté dans cette étude afin d'établir des lois d'échelles temporelles dites de référence : chaque loi n'emploie qu'un seul profil temporel (sa forme reste inchangée, seule sa largeur à mi-hauteur est modifiée par homothétie) et porte directement sur la fluence intrinsèque du matériau. En guise d'illustration sont données en Figure 3-7 trois exemples de ce type de lois d'échelles pour le matériau  $\text{SiO}_2$  : comme profils temporels sont considérés le profil Gaussien, le profil sécante hyperbolique carrée et celui en courbe de Lorentz. La durée d'impulsion est dans ce cas directement définie comme la largeur à mi-hauteur (FWHM) du profil.

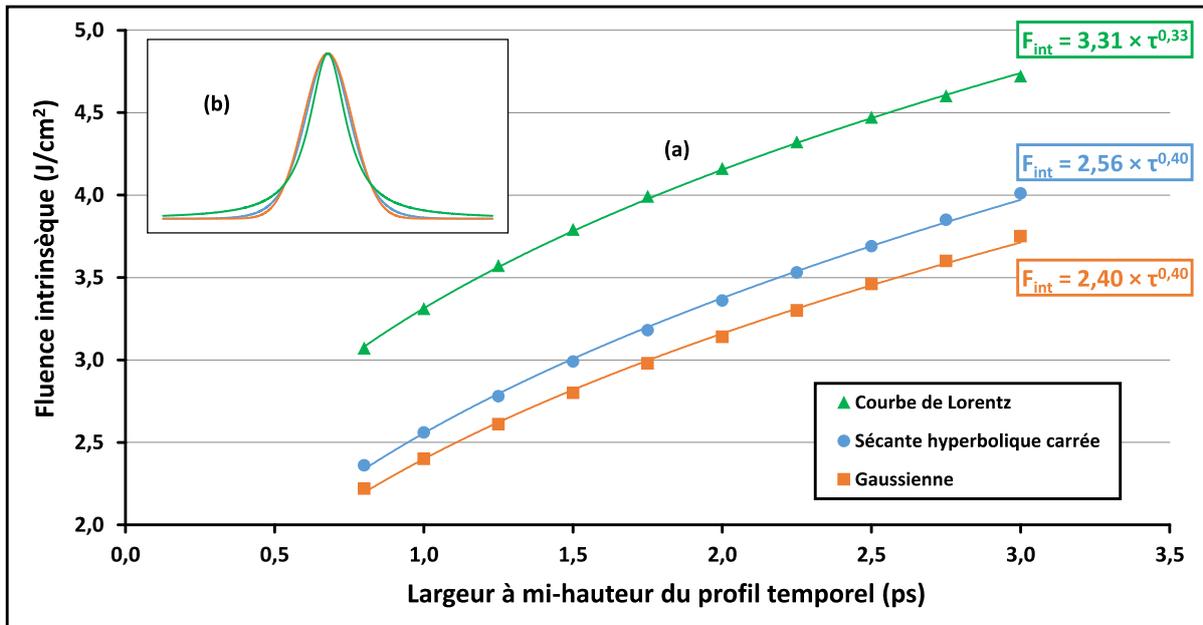


Figure 3-7 : (a) Trois exemples de lois d'échelles temporelles dites de référence pour SiO<sub>2</sub> (couche mince) établies numériquement grâce au modèle présenté dans ce chapitre. Chacune n'emploie qu'un seul profil temporel idéal. (b) Illustration des profils temporels idéaux utilisés (ici de même intégrale i.e. de même énergie) : Gaussien (orange), sécante hyperbolique carrée (bleu) et courbe de Lorentz (vert). Par définition, les lois sont exprimées pour la fluence intrinsèque  $F_{int}$ . Pour obtenir le LIDT, il reste à appliquer via l'équation 1-8 l' $EFI_{max}$  correspondant à la configuration expérimentale utilisée.

Quantitativement parlant, ces lois d'échelles références ne sont valables que dans les limites du modèle utilisé et pour le matériau SiO<sub>2</sub> déposé en couche mince par procédé e-beam ainsi que dans la plage temporelle balayée (0,8-3,5 ps là où le modèle a été validé). Le but premier de ces lois références est d'illustrer le rôle du profil temporel sur le seuil d'endommagement intrinsèque de matériaux diélectriques et de montrer pourquoi il est possible d'obtenir plusieurs lois d'échelles temporelles pour un même matériau. Dans le même esprit, des lois références pourraient être déterminées pour d'autres matériaux à partir du modèle de cette étude en utilisant les mêmes profils temporels idéaux (cela permettrait une comparaison directe entre matériaux). Enfin, il serait bénéfique de développer et valider des modèles similaires (toujours à partir de différents profils temporels) pour des durées d'impulsion plus élevées, par exemple entre 5 et 50 ps. Comme mentionné plus haut, l'intérêt serait d'une part de cerner jusqu'où le profil temporel a effectivement une influence sur le LIDT (particulièrement sur l'établissement du régime d'avalanche électronique) et ainsi jusqu'où il faut prendre garde aux lois d'échelles temporelles appliquées. D'autre part, cela permettrait de voir si cette limite coïncide ou non avec celle correspondant à la transition entre le régime d'endommagement dit électronique où le LIDT dépend des mécanismes électroniques (cas de notre étude) et celui dit thermique où le LIDT est principalement conditionné par la diffusion thermique (Stuart et al. [41] ont estimé à 20 ps cette transition pour de la silice massive, le LIDT variant alors en  $\tau^{1/2}$  au-delà de cette valeur,  $\tau$  étant la durée d'impulsion).

L'endommagement laser intrinsèque ne constitue cependant pas la seule limitation à prendre en compte pour caractériser la résistance au flux d'optiques réfléchives. Une autre forme d'endommagement existe même pour des fluences inférieures au LIDT : l'endommagement sur défauts. La prochaine partie de ce chapitre est consacrée à l'étude de la dépendance temporelle de cette forme d'endommagement laser (sur les mêmes miroirs diélectriques).

## III.C Dépendance temporelle de l'endommagement laser sur défauts

Toutes les durées d'impulsions impliquées par la suite sont celles estimées par l'autocorrélateur de DERIC sur la plage 1 (comme il sera montré dans la suite, il n'a pas été nécessaire de travailler également avec la plage 2).

### III.C.1 Résultats expérimentaux

L'étude présentée dans la suite a été menée sur un miroir diélectrique identique à celui utilisé précédemment pour l'étude de l'endommagement intrinsèque et dans les mêmes conditions expérimentales (45° d'incidence et des impulsions polarisées P). Une analyse Monoshot menée sur la plage 1 de DERIC a permis de déterminer la tenue au flux intrinsèque de ce miroir aux quatre durées d'impulsion considérées pour cette étude (0,8 / 1,5 / 2,5 et 3,5 ps). Les résultats sont rassemblés dans le tableau 3-3 (où sont reportées pour information les fluences intrinsèques correspondantes des matériaux SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub> qui peuvent tous deux être considérés comme le matériau limitant comme expliqué en début de chapitre).

Durée d'impulsion (ps)	LIDT (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,SiO<sub>2</sub></sub> (J/cm <sup>2</sup> )	F <sub>int,HfO<sub>2</sub></sub> (J/cm <sup>2</sup> )
0,8	2,43 ± 0,10	3,60 ± 0,15	2,48 ± 0,10
1,5	2,94 ± 0,09	4,35 ± 0,13	3,00 ± 0,09
2,5	3,57 ± 0,08	5,28 ± 0,12	3,64 ± 0,08
3,5	4,14 ± 0,11	6,13 ± 0,16	4,22 ± 0,11

Tableau 3-3 : Résultats de tenue au flux intrinsèque obtenus via la procédure Monoshot sur le miroir diélectrique considérée pour l'étude ci-dessous (identique à celui utilisé pour l'étude présentée précédemment). Les fluences intrinsèques F<sub>int</sub> ont été calculées à partir de l'équation 1-8 en appliquant un EFI de 1,48 et 1,02 pour SiO<sub>2</sub> et HfO<sub>2</sub> respectivement (matériaux déposés par procédé e-beam). Les barres d'erreur sont celles relatives à la procédure Monoshot.

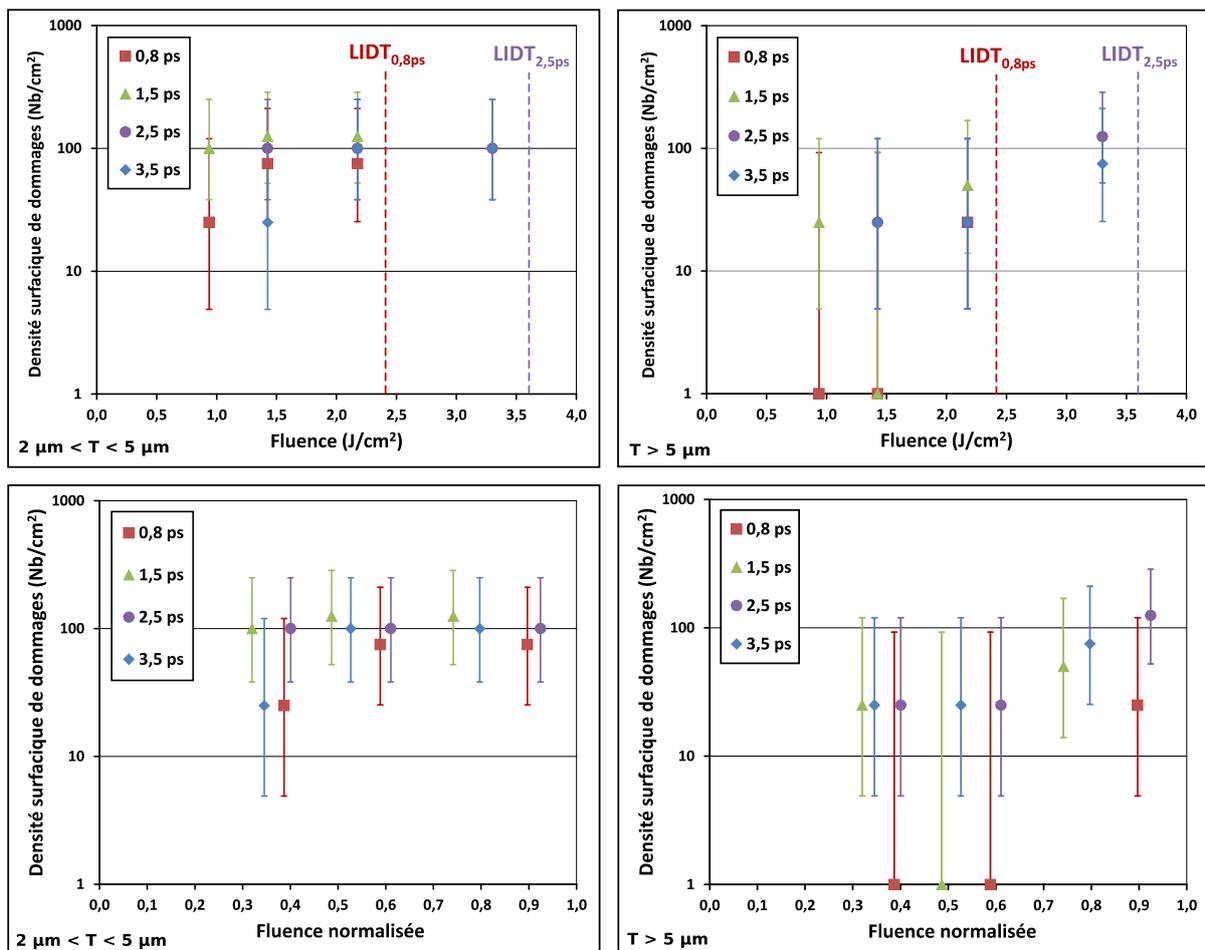
Il est intéressant de noter qu'en faisant fi des barres d'erreur, les valeurs de tenue au flux obtenues pour ce miroir sont très légèrement différentes de celles obtenues (tableau 3-2, course 1) sur celui utilisé lors de l'étude de l'endommagement intrinsèque, provenant pourtant du même lot de fabrication. Ces petites variations peuvent éventuellement traduire la répétabilité entre composant ayant été fabriqués en même temps par le même procédé (vu les probables faibles différences de tenue au flux en jeu dans ce cas, une étude plus fine serait nécessaire pour le confirmer ce qui serait envisageable avec la procédure 1-on-1 pour laquelle les barres d'erreur sont significativement plus faibles qu'avec la procédure Monoshot, voir Figure 3-2).

#### III.C.1.a Densités surfaciques de dommages induits sur défauts

La grandeur la plus caractéristique de l'endommagement laser sur défauts est la densité surfacique de dommages induits. Elle donne une bonne indication de la qualité globale de l'optique testée en quantifiant par unité de surface le nombre de défauts capables d'amorcer un dommage lorsqu'ils sont irradiés par laser.

Pour cette étude, nous nous intéressons surtout à l'impact de la durée d'impulsion sur cette densité surfacique mais aussi à celui de la fluence (ici inférieure au LIDT) : quatre durées ont

été étudiées (0,8 - 1,5 - 2,5 - 3,5 ps) et pour chacune d'elles, trois fluences d'irradiation ont été considérées. Les douze balayages rasterscans correspondant ont chacun été menés sur une surface carrée de  $2 \times 2 \text{ mm}^2$  avec un recouvrement du faisceau tir à tir de 80% (comme expliqué au deuxième chapitre) ce qui induit un total d'environ 700 tirs pour chaque balayage rasterscan. Outre le total important de tirs effectués, les surfaces balayées ont également été suffisamment espacées les unes des autres pour couvrir au mieux toute la surface de l'échantillon. Également, afin de mieux distinguer les impacts respectifs des deux paramètres que sont la durée d'impulsion et la fluence, nous avons choisis de nous limiter à quatre fluences au total (0,94 - 1,43 - 2,18 - 3,30  $\text{J}/\text{cm}^2$ ) : les trois plus petites fluences sont considérées pour les cas à 0,8 et 1,5 ps (elles sont en fait définies à respectivement 40%, 60% et 90% du LIDT à 0,8 ps qui est ici de 2,43  $\text{J}/\text{cm}^2$ ) tandis que les trois plus grandes fluences sont considérées pour les cas à 2,5 et 3,5 ps (elles correspondent dans ce cas à approximativement 40%, 60% et 90% du LIDT à 2,5 ps qui est ici de 3,57  $\text{J}/\text{cm}^2$ ). Ce faisant, il sera plus aisé de raisonner à durée d'impulsion ou à fluence fixe. Enfin, conformément à la description donnée précédemment du système de détection, nous distinguons les dommages induits dont la taille est comprise entre 2 et 5  $\mu\text{m}$  de ceux dont la taille est supérieure à 5  $\mu\text{m}$ . Les résultats sont donnés dans la Figure 3-8.



Nous raisonnerons par la suite uniquement par rapport aux fluences absolues (les conclusions étant identiques en raisonnant à partir des fluences relatives).

Pour les deux classes de dommages considérées, nous constatons qu'à fluence donnée, la durée d'impulsion n'a pas d'impact significatif sur la densité surfacique. Par voie de conséquence, cela signifie que les différents profils temporels de la plage 1 (utilisée ici) n'ont pas d'influence notable. C'est pourquoi la plage 2 n'a pas été considérée pour cette étude.

À durée fixe, nous constatons un impact très modéré de la fluence : aucune variation notable de la densité surfacique n'est visible pour la classe de dommages de plus petite taille tandis qu'une légère augmentation de cette densité apparaît pour la classe de dommages de plus grande taille.

Il est à noter enfin que, pour les gammes de durées d'impulsion et fluences utilisées, les densités restent de l'ordre de plusieurs dizaines de dommages par centimètre carré.

### III.C.1.b Morphologies des dommages induits sur défauts

Outre la densité surfacique de dommages, une autre caractéristique de l'endommagement laser sur défauts est la morphologie des dommages générés (par morphologie, nous entendons l'ensemble des caractéristiques physiques du dommage ; sa taille en surface, sa profondeur, son aspect en surface, en volume etc...). Cette dernière est en effet un très bon indicateur des mécanismes et de la nature de l'endommagement ayant lieu. Là où l'endommagement intrinsèque se manifeste par des dommages soit assez délocalisés (pigmentation caractéristique du matériau en surface illustrant son inhomogénéité en particulier pour des couches déposées en EBD, voir Figure 1-15(a)) soit relativement étendus (si le régime d'ablation est atteint, voir à nouveau Figure 1-15(b)), l'endommagement sur défauts se reconnaît par son aspect localisé et une morphologie atypique (voir Figure 1-20). Dans cette section, nous nous penchons ainsi sur le lien entre durée d'impulsion et morphologie des dommages induits sur défauts.

En premier lieu, nous baserons notre analyse sur des observations réalisées au microscope DIC (modèle Axio Imager.A2, Zeiss, objectifs  $\times 50$  et  $\times 100$ ). La résolution de cet instrument permet déjà d'analyser les tailles en surface des dommages. La Figure 3-9 rassemble les observations DIC des dommages induits sur défauts correspondants aux balayages rasterscans présentés précédemment. Pour chaque cas sont donnés les deux plus grands dommages observés (attention au changement d'échelle entre les images).

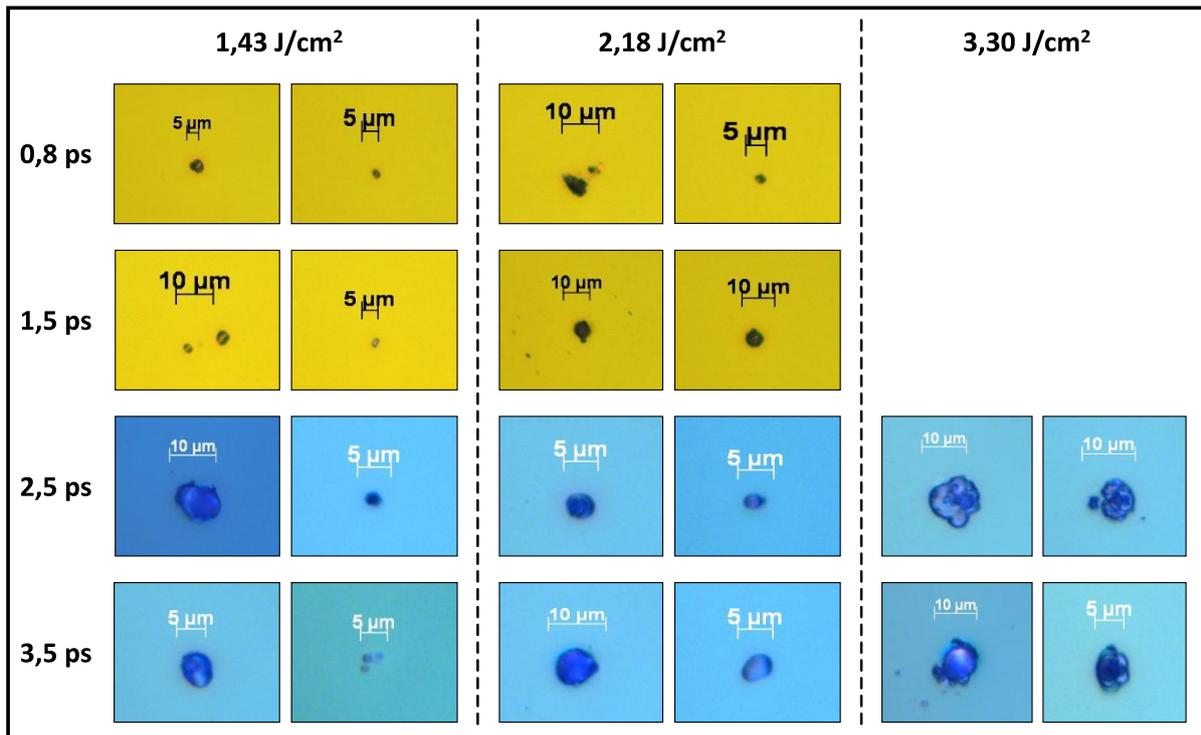


Figure 3-9 : Exemples de dommages induits sur défauts par balayage rasterscan sur un miroir diélectrique pour plusieurs durées d'impulsions et fluences d'irradiation (polarisation P et 45° d'incidence, le faisceau arrivant par la gauche). Les deux plus grands dommages sont représentés à chaque fois (bien prendre garde aux différentes barres d'échelles selon les images).

Nous constatons que pour une fluence donnée, la durée d'impulsion n'a quasiment aucune influence sur la taille des dommages formés (le cas du dommage de gauche à 2,5 ps et 1,43 J/cm<sup>2</sup> semble être dû à un défaut particulier). Pour une durée d'impulsion donnée, on observe une légère augmentation de la taille avec la fluence.

Un microscope DIC ne permet cependant pas de retirer plus d'informations, c'est pourquoi nous avons dans un second temps utilisé le microscope à balayage électronique situé à l'Institut Fresnel pour des observations plus résolues. Cet appareil possède en effet une résolution de l'ordre de la centaine de nanomètres là où celle d'un microscope DIC est de l'ordre du micromètre. Les Figures 3-10 et 3-11 rassemblent les observations faites sous MEB (le faisceau étant arrivé par la gauche) de balayages rasterscans effectués sur le même miroir et dans les mêmes conditions d'irradiation que ceux présentés précédemment (0,8 ps - 2,18 J/cm<sup>2</sup> ; 2,5 ps - 3,30 J/cm<sup>2</sup> ; polarisation P et 45° d'incidence). Les surfaces balayées sont ici de 5 × 5 mm<sup>2</sup> (environ 4400 tirs).

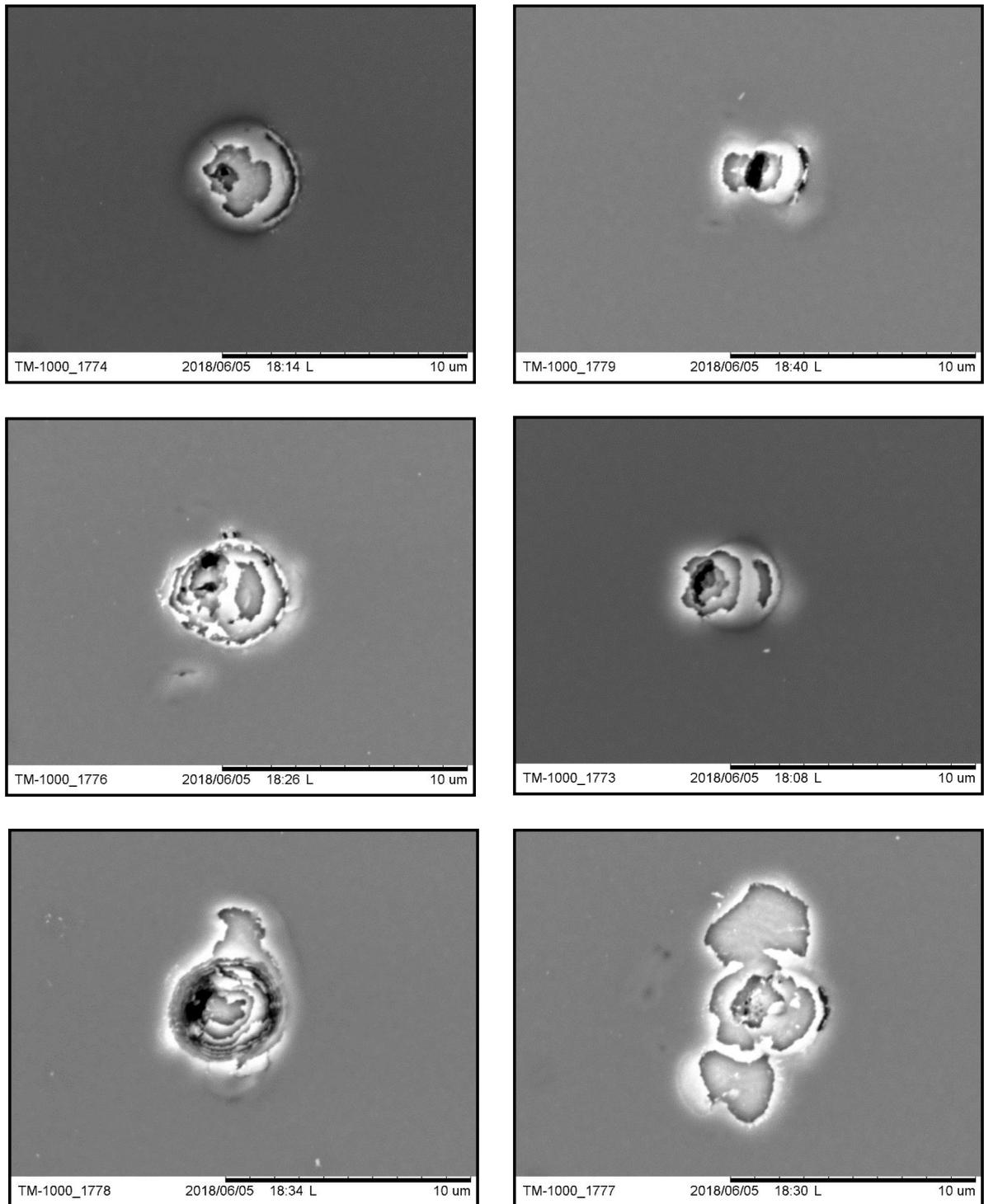


Figure 3-10 : Observations sous MEB de dommages induits sur défauts par balayage rasterscan sur un miroir diélectrique (polarisation P, 45° d'incidence, faisceau arrivant par la gauche). Les dommages ont été formés à 0,8 ps et 2,18 J/cm<sup>2</sup> (LIDT<sub>0,8ps</sub> = 2,43 J/cm<sup>2</sup>).

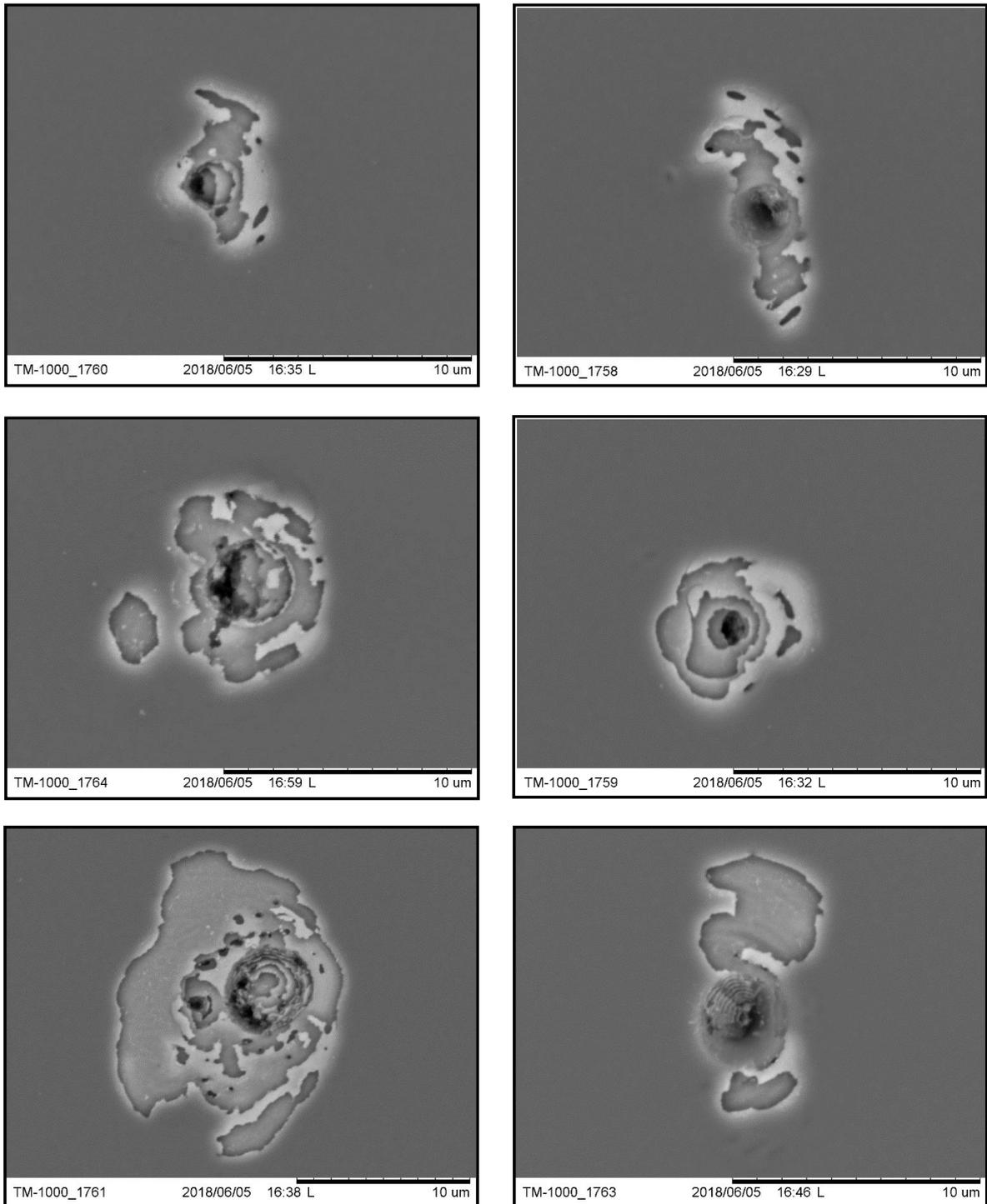


Figure 3-11 : Observations sous MEB de dommages induits sur défauts par balayage rasterscan sur un miroir diélectrique (polarisation P, 45° d'incidence, faisceau arrivant par la gauche). Les dommages ont été formés à 2,5 ps et 3,30 J/cm<sup>2</sup> (LIDT<sub>2,5ps</sub> = 3,57 J/cm<sup>2</sup>).

Ces observations MEB confirment tout d'abord le caractère localisé de l'endommagement sur défauts [55,63]. Les dommages observés sont également tous typiques d'une éjection de nodule. Cependant, nous notons des différences de morphologies : dans le cas à 0,8 ps et 2,18 J/cm<sup>2</sup> (Figure 3-10), chaque dommage est constitué d'un trou quasi systématiquement circulaire de 3 à 5 µm de diamètre et profond de plusieurs couches. Dans le cas à 2,5 ps et 3,30 J/cm<sup>2</sup> (Figure 3-11), nous retrouvons cette morphologie avec cette fois en plus une délamination systématique des premières couches en surface. Ceci confirme les observations

DIC à savoir que l'endommagement sur défauts est essentiellement dépendant de la fluence de l'impulsion et non de son intensité. En effet, l'endommagement est plus marqué dans le cas à 2,5 ps et 3,30 J/cm<sup>2</sup> (intensité d'environ 1,3 TW/cm<sup>2</sup>) que dans le cas à 0,8 ps et 2,18 J/cm<sup>2</sup> (intensité d'environ 2,7 TW/cm<sup>2</sup>). La diversité des morphologies observées montre par ailleurs la diversité des nodules ayant initié ces endommagements. La profondeur de ces dommages lasers semble également très liée à l'emplacement du défaut précurseur.

## **III.C.2 Discussion autour de la dépendance temporelle de l'endommagement laser sur défauts**

### **Constat général**

Les études menées ont tout d'abord confirmé de récents travaux [12,55,63,73,95] indiquant que l'endommagement laser sur défauts est, au même titre que l'endommagement laser intrinsèque, une forme d'endommagement bien présente dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde. En effet, nous constatons pour des miroirs diélectriques un endommagement sur défauts même pour des fluences d'irradiation valant 40% du LIDT. Ainsi, tout comme sa résistance intrinsèque, les imperfections introduites dans un matériau diélectrique lors de son procédé de dépôt doivent bien être prises en compte lors de l'évaluation de sa tenue au flux. Nous discutons en détail ci-dessous les résultats obtenus en distinguant les densités surfaciques de dommages et leurs morphologies. Également nous comparons nos résultats à d'autres études portant sur l'endommagement sur défauts en régime court. Nous mettons à part l'étude de Sozet et al. [55] cette dernière ayant été réalisée dans des conditions identiques aux nôtres (même installation, même procédure de test et miroirs du même lot) et dont les résultats recoupent entièrement les nôtres (ce qui témoigne simplement de la répétabilité des échantillons appartenant au même lot de fabrication).

### **Densités surfaciques de dommages**

Impact de la nature temporelle de l'impulsion : l'étude menée n'a révélé aucune corrélation nette entre la densité de dommages et la nature temporelle des impulsions (dans la gamme temporelle balayée et pour des matériaux diélectriques déposés en EBD). Quelle que soit la fluence considérée (absolue ou relative, voir Figure 3-8), on ne constate en effet aucune variation notable de la densité par changement de durée (et donc de profil temporel, voir Figure 2-14). À nouveau, il est possible d'interpréter ce phénomène à travers les fortes surintensifications du champ électrique ( $E_{I_{max}}$ ) causées par un défaut : en reprenant par exemple les travaux de Stolz et al. [52] qui indiquent, pour un miroir diélectrique comportant un nodule modèle, un  $E_{I_{max}}$  s'élevant à 6 dans le miroir en bordure du nodule et du côté opposé à l'arrivée du faisceau à 45° d'incidence (Figure 1-21), l'application de l'équation 1-8 à partir des fluences intrinsèques du miroir d'étude à 0,8 ps et 3,5 ps (3,60 J/cm<sup>2</sup> et 6,13 J/cm<sup>2</sup> respectivement) donne des valeurs de « LIDT sur défaut » de 0,6 et 1 J/cm<sup>2</sup> respectivement soit une variation de 0,4 J/cm<sup>2</sup> sur cette gamme temporelle (à titre de comparaison, la variation de LIDT est de 1,7 J/cm<sup>2</sup> pour le miroir sans nodules sur cette même gamme temporelle, voir tableau 3-3). Cet exemple illustre comment les surintensifications causées par un nodule ne modifient que très peu, de par leurs valeurs très élevées, la densité d'énergie à apporter pour endommager sur défauts entre 0,8 et 3,5 ps et comment ce seuil est par ailleurs très facilement atteint (25% du LIDT sans nodules avec l'exemple de Stolz et al. [52]).

Cette interprétation permet alors d'expliquer que l'absence de variation notable des densités surfaciques obtenues sur la gamme temporelle balayée est alors plus la traduction de la relative homogénéité du composant. Laurence et al. [73] ont également constaté qu'un changement de durée d'impulsion (entre 0,9 et 59 ps) n'impacte pas la densité surfacique, ces résultats ayant été cependant obtenus sur des monocouches SiO<sub>2</sub> déposées en EBD ce qui implique des défauts précurseurs différents de ceux sur miroir (ce même article met justement en avant qu'il est possible d'obtenir des conclusions opposées à savoir que la densité surfacique change avec la durée d'impulsion en étudiant un substrat de silice qui génère une classe de dommages sur défauts encore différente). Nous n'avons pas connaissance d'autres travaux ayant étudié la dépendance temporelle de la densité surfacique de dommages induits sur défauts dans le cas de miroirs diélectriques.

Impact de la fluence : quelle que soit la durée d'impulsion considérée, nous constatons une augmentation très modérée de la densité de dommages avec la fluence. L'interprétation de ce résultat fait directement écho à celle menée dans le paragraphe précédent : les fluences de balayages utilisées ont probablement été suffisamment élevées pour être bien supérieures au « seuil » de la quasi-totalité des défauts rencontrés. De ce fait, nous supposons que la légère augmentation de la densité avec la fluence est la traduction de la très probable diversité des défauts (localisation dans l'empilement, géométrie, nature) : au fur et à mesure que la fluence augmente, les énergies délivrées deviennent suffisantes pour endommager même les défauts qui génèrent des surintensifications moins importantes que la moyenne. Ces résultats sont identiques à ceux de l'étude de Negres et al. [63] mais cette dernière n'est pas entièrement reproductible par rapport à la nôtre. En effet, le seul point commun est d'avoir utilisé la procédure rasterscan. Le reste de cette étude a été réalisée dans un vide poussé, sur des miroirs diélectriques légèrement différents (dans l'empilement SiO<sub>2</sub>/HfO<sub>2</sub>, certaines couches HfO<sub>2</sub> sont remplacées par des couches Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) et à des fluences bien plus élevées : l'étude est faite à 30 ps (3,5 ps au plus dans notre cas) et les fluences de balayage sont préalablement déterminées à partir de la méthode R-on-1 (Monoshot dans notre cas).

Niveaux de densités : un constat qui complète ceux des deux paragraphes précédents est que pour l'ensemble des durées d'impulsion et fluences utilisées, nous observons des niveaux de densités qui restent de l'ordre de plusieurs dizaines de dommages par centimètre carré. Cette quasi-indépendance de la densité vis-à-vis de la nature de l'impulsion suggère fortement que seule compte la distribution des défauts dans le matériau. Nous avons supposé que cette dernière suit une loi de Poisson ; cette hypothèse est courante dans le régime nanoseconde [80,94] et dans notre cas, elle est d'autant plus supportée par le fait que plusieurs balayages rasterscans ont été effectués (chacun implique au moins plusieurs centaines de tirs) et ce en les espaçant suffisamment les uns des autres pour couvrir une surface assez représentative du miroir étudié. Des études supplémentaires restent à mener pour conforter ou non cette hypothèse (notamment en balayant des surfaces encore plus importantes) car la distribution des défauts reste un point d'interrogation (il n'existe toujours aucune méthode non destructive suffisamment performante pour au moins localiser l'ensemble des défauts précurseurs contenus dans un composant optique). Les niveaux de densités obtenus sont similaires à ceux de l'étude de Negres et al. [63] bien que pour cette dernière, il soit primordial de noter que seule une classe de dommages induits sur défauts parmi trois a été retenue pour

le calcul des densités (ces trois classes de dommages étant imputées à la durée d'impulsion qui y est de 30 ps).

### **Morphologie des dommages**

Impact de la nature temporelle de l'impulsion : les observations sous microscope DIC et MEB ont montré que, quelle que soit la fluence considérée (absolue ou relative), la morphologie des dommages lasers induits sur défauts ne dépend pas de la nature temporelle de l'impulsion (pour des durées d'impulsion comprises entre 0,8 et 3,5 ps et des profils temporels variés comme illustré en Figure 2-14). Comme pour la dépendance temporelle de la densité surfacique de dommages, ceci s'explique probablement par le fait que le champ électrique est suffisamment renforcé au niveau d'un défaut précurseur pour faire passer au second ordre la nature temporelle de l'impulsion (seule sa densité d'énergie compte alors). À cela s'ajoute aussi probablement le fait que les mécanismes d'endommagement ne varient quasiment pas dans la gamme temporelle balayée (qui reste courte, entre 0,8 et 3,5 ps). Une tendance similaire est observée dans les travaux de Kozlov et al. [96] où une morphologie unique d'endommagement est constatée pour des durées d'impulsions allant de 0,6 à 2,3 ps sur des miroirs  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  déposés en EBD. Cependant, l'étude en question ne considère pas qu'il s'agisse d'endommagement sur défauts sans non plus dire explicitement qu'il s'agisse d'endommagement intrinsèque : le type d'endommagement en question est appelé « Type-I » et seuls les deux autres formes d'endommagement identifiées (appelées « Type-II » et « Type-III ») sont estimées provenir des défauts des composants (pour des durées d'impulsions supérieures à 2,3 ps). Nous remarquons que la morphologie typique observée pour le « Type-I » s'apparente à des dommages intrinsèques (contour circulaire net, flancs droits et profondeur directement reliée aux pics de surintensifications provoquées par les couches mêmes du miroir) et qu'il est indiqué que les tirs ont été effectués « à proximité du seuil intrinsèque ». Nous notons enfin que l'étude a été réalisée avec une procédure semblable au 1-on-1 (la procédure exacte n'est pas décrite mais il est indiqué que chaque site ne reçoit qu'une impulsion) et que les surfaces irradiées n'ont pas été précisées ce qui empêche d'évaluer le caractère systématique de cette forme d'endommagement. Nous relèverons également les travaux croisés de Ly et al. et de Laurence et al. [73,95] entre 0,9 et 59 ps pour lesquels trois types de morphologies similaires à celles observées par Kozlov et al. [96] ont aussi été observées mais sur des substrats en silice et sur des monocouches  $\text{SiO}_2$  (déposées soit en EBD soit en PIAD, Plasma Ion Assisted Deposition), une transition dans les morphologies s'opérant dans tous les cas à partir d'une durée d'impulsion de 3,6 ps. Nous notons enfin que tous les composants testés dans ces trois études proviennent du même fabricant (LLE Rochester) ce qui peut en partie expliquer la similarité entre les morphologies.

Impact de la fluence : nous observons qu'à durée d'impulsion fixe, la morphologie des dommages induits sur défauts change assez significativement avec la fluence. En se restreignant aux tailles des dommages en surface, ces dernières sont en moyenne de 5  $\mu\text{m}$  tant que la fluence est inférieure à 2,2  $\text{J}/\text{cm}^2$  et de 10  $\mu\text{m}$  entre 2,2 et 3,3  $\text{J}/\text{cm}^2$ . En considérant la morphologie globale des dommages, nous observons que ces dernières sont typiques de l'éjection de nodules avec un trou d'éjection central quasi-systématique (diamètre moyen de 5  $\mu\text{m}$ ) et accompagné d'une délamination des premières couches uniquement pour les plus hautes fluences utilisées (3,3  $\text{J}/\text{cm}^2$  dans notre cas). Cette délamination aux plus fortes fluences s'expliquent probablement par le fait que plus d'énergie est couplée entre le laser et

la matière (notre étude ne permet pas pour autant de savoir si la délamination est le fait d'une éjection de matière plus violente après irradiation ou d'une ablation pendant irradiation). L'étude de Kozlov et al. [96] ne donne pas de point de comparaison car les seules illustrations montrant un changement de morphologie avec la fluence pour une durée d'impulsion donnée concernent des dommages irradiés avec des fluences tout justes supérieures au seuil d'endommagement intrinsèque et avec des polarisations différentes. L'article de Negres et al. [63] (étude réalisée à 30 ps) ne fournit pas des illustrations assez résolues pour comparer les dommages correspondants aux appellations Type I et Type III avec ceux que nous avons obtenus (ces deux types de dommages étant à première vue les plus semblables à ceux de notre étude). Les travaux de Ly et al. [95] font quant à eux apparaître clairement un changement de morphologie avec la fluence, l'endommagement apparaissant seulement à l'emplacement du centre du faisceau (gaussien) aux plus basses fluences puis sur une surface de plus en plus grande autour du centre du faisceau au fur et à mesure que la fluence augmente. Il convient cependant de rappeler que cette étude concerne des substrats en silice et des monocouches SiO<sub>2</sub>. Également, les trois fluences considérées dans cette étude correspondent à respectivement 10%, 50% et 90% de probabilité d'endommagement après des tests R-on-1 (ces pourcentages sont donc plus élevés par rapport au seuil d'endommagement 1-on-1).

### Bilan

Notre étude de l'endommagement sur défauts sur miroir diélectrique HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> (déposé par procédé e-beam) a fait ressortir une indépendance de cette forme d'endommagement (densité surfacique comme morphologie des dommages) vis-à-vis de la nature temporelle de l'impulsion (durée, profil) dans la gamme temporelle balayée (entre 0,8 et 3,5 ps en termes de durées d'impulsion estimées par autocorrélation). Nous pouvons interpréter ces résultats avec les très fortes modulations de champ électrique générés par et au niveau d'un nodule. La densité d'énergie (fluence) des impulsions est alors le seul paramètre ayant une influence (très légère pour la densité, plus prononcée pour les morphologies). Les niveaux de densités atteints restent de l'ordre de plusieurs dizaines dommages par centimètre carré pour l'ensemble des durées d'impulsions et fluences utilisées ce qui témoigne d'une certaine homogénéité des défauts pour le type de miroir de cette étude. L'observation sous MEB des dommages induits sur défauts révèlent des morphologies typiques d'éjection de nodules. L'ensemble des résultats ont été obtenus à partir de la procédure rasterscan combinée à l'emploi d'un système de détection de dommages par diffusion lumineuse dont la résolution en termes de taille surfacique de dommages est d'environ 2 μm.

Enfin, il n'est pas possible de juger de la reproductibilité des résultats obtenus car la littérature ne propose pas de travaux similaires ayant été menés dans des conditions suffisamment identiques et surtout sur d'autres installations. Comme mentionné plus haut, l'étude de Sozet et al. [55] est à part car ayant été réalisée dans des conditions identiques à la nôtre et surtout sur la même installation, cela permet au moins de garantir la répétabilité des résultats.

La problématique de la dépendance temporelle de l'endommagement sur défauts en régime sub-picoseconde et à plus forte raison picoseconde est donc complexe car ces régimes temporels font intervenir plusieurs catégories de dommages (pour les miroirs diélectriques [63], [96] comme pour les monocouches ou même les substrats [73,95]), ces catégories ne

présentant visiblement pas les mêmes dépendances temporelles et n'apparaissant pas aux mêmes durées d'impulsions. Nos travaux et nos conclusions s'inscrivent ainsi uniquement dans une certaine plage temporelle (entre 0,8 et 3,5 ps) qui ne constitue elle-même qu'une partie du régime dit de transition (communément placé entre 1 et 100 ps). Une première étape fondamentale a été de constater que l'endommagement sur défauts est une problématique toute aussi présente en régime sub-picoseconde et picoseconde qu'en régime nanoseconde [55,57]. Après avoir constaté la zoologie des dommages sur défauts possibles dans ces régimes [63,73,95-96], une prochaine étape pourrait être à présent d'y mener des études comparatives entre laboratoires (comme l'inter-comparaison présentée au deuxième chapitre). Par exemple, il serait intéressant de comparer les densités surfaciques et morphologies obtenues par plusieurs équipes à une durée d'impulsion donnée sur un même lot de miroirs diélectriques, la détermination des fluences d'irradiation (pourcentages du seuil déterminé soit par Monoshot, soit par 1-on-1 soit par R-on-1) et l'irradiation en elle-même (large matrice 1-on-1 ou balayage rasterscan) étant fixes pour tout le monde. Cela permettrait de renforcer les différents moyens métrologiques mis en place par chacun pour la détection et l'observation des dommages, de clarifier les classes de dommages existantes (par durée d'impulsion, par type de composant et éventuellement par procédé de dépôt) et finalement d'améliorer la compréhension de cette forme d'endommagement (notamment à travers l'amélioration et la validation de modèles numériques existants et peut-être à travers de nouveaux modèles). Une autre voie d'étude intéressante serait de comparer sur une même installation et une même procédure de test la zoologie obtenue de dommages induits sur défauts ainsi que leurs densités surfaciques et leurs morphologies pour plusieurs composants (typiquement des miroirs dont la structure, la nature des matériaux constitutifs et le procédé de fabrication seraient différents).

## Conclusion du Chapitre III

Au cours de ce chapitre ont été présentées les études (menées sur des miroirs diélectriques identiques) portant sur la dépendance temporelle des deux principales formes d'endommagement laser caractéristiques des régimes sub-picoseconde et picoseconde que sont l'endommagement intrinsèque et l'endommagement sur défauts.

Dans le cas de l'endommagement intrinsèque, nous avons montré à travers expériences et simulations que le LIDT dépend du profil temporel de l'impulsion et pas uniquement de sa durée souvent estimée par autocorrélation (pour des durées d'impulsions comprises entre 0,8 et 3 ps et des profils temporels tels que représentés en Figure 2-14). Il est en effet possible pour deux profils temporels différents de générer des traces d'autocorrélation de même FWHM et donc de se voir attribués la même durée d'impulsion. En conséquence, deux valeurs de LIDT peuvent être mesurées pour une même durée et pour un même matériau. Ce phénomène n'est compréhensible que si le profil temporel est connu à chaque fois ; une bonne métrologie temporelle de toute impulsion laser nécessite donc l'emploi (si possible permanent) d'un diagnostic laser capable d'en mesurer le profil temporel (un autocorrélateur peut être utilisé mais alors en complément). Dans notre cas, il s'agit du diagnostic SPIRITED [67]. En plus de bénéficier à la métrologie interne de toute équipe de recherche, l'emploi de tels diagnostics facilite aussi les études comparatives entre équipes de recherche autour du LIDT. Enfin, une conséquence directe de cette dépendance du LIDT avec le profil temporel est qu'il est possible d'établir plusieurs lois d'échelles temporelles pour un même matériau. Le but de ces lois est de notamment fournir un outil de prédiction du LIDT par changement de durée et sont à ce titre très utiles pour les installations lasers de puissance. Nous voyons alors la nécessité d'indiquer les profils temporels impliqués dans la détermination de toute loi d'échelle en plus de la loi elle-même. Ce faisant, tout opérateur souhaitant appliquer cette loi pourra mieux en juger la précision (d'autant plus s'il connaît lui-même les profils temporels avec lesquels il travaille). Cependant, les lois d'échelles temporelles établies expérimentalement ont de grandes chances d'impliquer des profils temporels variés (aberrations temporelles inévitables dues au dérèglement du compresseur) et de ce fait, leurs validités pour d'autres installations s'en voient très probablement réduites. C'est pourquoi nous avons établi des lois d'échelles temporelles dites de références (Figure 3-7) où chacune d'elles n'emploie qu'un seul profil temporel (profil Gaussien, en sécante hyperbolique carrée ou celui en courbe de Lorentz). Ces lois ont été déterminées numériquement grâce au modèle que nous avons développé pour l'étude associée. Quantitativement parlant, elles sont valables pour le matériau SiO<sub>2</sub> déposé en couche mince par procédé e-beam, dans la gamme temporelle balayée et dans le cadre de l'approche MRE retenue pour le modèle. Il serait bénéfique de disposer de lois similaires pour d'autres matériaux diélectriques employés par les installations lasers de puissance (ou qui viendront à être employés). Enfin, une perspective intéressante serait de mener des études similaires à celles présentées dans ce chapitre pour des durées d'impulsions  $\tau$  plus élevées (par exemple  $5 < \tau < 50$  ps et ce, toujours avec différents profils temporels) afin de cerner jusqu'où le profil temporel a une influence sur le LIDT (autrement dit jusqu'où des lois de référence par profil sont nécessaires). La détermination de cette limite serait également à comparer à la frontière traduisant le passage du régime d'endommagement électronique vers celui dit thermique où le LIDT varie en  $\tau^{1/2}$  (cette frontière a été située aux alentours de 10 à 20 ps [30,41]).

Pour la gamme temporelle balayée lors de notre étude (durée d'impulsions comprises entre 0,8 et 3,5 ps), le phénomène d'endommagement sur défauts s'est quant à lui montré insensible à un changement de la nature temporelle de l'impulsion tant au niveau des densités de dommages amorcés que de la morphologie de ces dommages. Nous parvenons à expliquer ce comportement par les très fortes surintensifications du champ électrique causées par un défaut au sein d'un matériau diélectrique [57] qui atténuent ainsi fortement l'influence de l'aspect temporel des impulsions courtes. Seule la fluence d'irradiation apparaît dans ce cas comme un paramètre impactant. Ces travaux confirment d'une part qu'il est possible d'endommager sur défauts même en régime court et que cette forme d'endommagement doit donc être considérée au même titre que l'endommagement intrinsèque lors de l'évaluation de la tenue au flux de tout composant optique. D'autre part, la confrontation de nos travaux avec d'autres études similaires [63,73,95-96] montre qu'il est très important de garder à l'esprit que l'endommagement sur défauts est une problématique complexe qui dépend de nombreux paramètres, au premier rang desquels la nature des échantillons étudiés (miroir, monocouche, substrat) et le régime temporel d'étude qui peut notamment provoquer l'apparition de différentes classes de dommages même sous seuil. Ces classes peuvent varier avec le composant (miroir [63,96], monocouches ou substrat [73,95]) et réagir différemment face à un changement de la durée d'impulsion [73]. Notre étude ne concerne ainsi qu'une classe de dommages sur défauts (provoqués par l'éjection de nodules) pour un certain type de miroirs diélectriques entre 0,8 et 3,5 ps. L'enrichissement des connaissances au sujet de l'endommagement sur défauts bénéficierait grandement d'une comparaison directe entre laboratoires (la nature du composant, son procédé de dépôt, le régime temporel et la procédure d'étude étant les principaux paramètres à étudier).

Qu'il s'agisse d'un dommage amorcé intrinsèquement ou sur défaut, une problématique commune à ces deux formes d'endommagement est la croissance de ce dommage (évolution tir à tir). Le chapitre suivant concerne ainsi l'étude de ce phénomène de croissance des dommages lasers.

## Chapitre IV

# Étude paramétrique de la croissance des dommages lasers dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde

La génération de dommages lasers constitue la première problématique à laquelle sont confrontées toutes les installations laser de puissance. Quelle que soit l'origine d'un dommage amorcé, une deuxième problématique commune à toutes ces installations est la croissance de ce dommage c'est-à-dire son évolution lorsqu'il est de nouveau irradié. C'est ce phénomène qui finit par dégrader chaque composant jusqu'à un point où il ne peut plus assurer sa fonction optique et doit alors être remplacé. Étant donné les coûts très élevés des composants (au moins plusieurs dizaines de milliers d'euros pièce), il est ainsi nécessaire de maîtriser le plus possible le phénomène de croissance des dommages pour maximiser la durée de vie des optiques. Dans ce chapitre, nous nous penchons sur cette problématique dans le cadre d'irradiations courtes. L'étude que nous y présentons se démarque de celles présentées au chapitre précédent dans le sens où, au lieu d'un faisceau spatialement gaussien, nous avons utilisé un faisceau spatialement top-hat i.e. dont le profil spatial est à répartition homogène de densité surfacique d'énergie. Nous commencerons par détailler la méthodologie spécifique mise en place autour de ce faisceau avant de présenter les études de croissance qui consistent en une étude paramétrique, la durée d'impulsion étant au cœur de celle-ci. L'ensemble des paramètres étudiés expérimentalement, associé à une étude numérique basée sur des calculs de modulation du champ électrique, nous permettra de proposer une loi de croissance empirique s'inscrivant dans la lignée de précédents travaux menés autour de la croissance des dommages lasers en régime d'impulsions courtes [13-14].

## Tables des matières du Chapitre IV

<b>IV.A</b> Cadre d'étude.....	151
<b>IV.A.1</b> Définition et caractérisation des miroirs étudiés.....	151
<b>IV.A.2</b> Voie laser et procédure d'étude employées.....	153
<b>IV.A.3</b> Analyse des résultats.....	155
<b>IV.A.4</b> Phénomène de fatigue et taux de répétition.....	156
<b>IV.A.5</b> Qualité du faisceau top-hat.....	157
<b>IV.A.6</b> Paramètres étudiés.....	159
<b>IV.B</b> Étude paramétrique expérimentale.....	161
<b>IV.B.1</b> Impact de la taille de l'amorce.....	161
<b>IV.B.2</b> Impact de la durée d'impulsion.....	163
<b>IV.B.3</b> Impact de la polarisation.....	168
<b>IV.B.4</b> Impact de l'angle d'incidence.....	174
<b>IV.C</b> Étude paramétrique numérique.....	175
<b>IV.C.1</b> Modèle COMSOL 2D.....	175
<b>IV.C.1.a</b> Description et validité du modèle.....	175
<b>IV.C.1.b</b> Calculs numériques d'EFI et confrontation aux expériences.....	177
<b>IV.C.2</b> Modèle COMSOL 3D.....	182
<b>IV.D</b> Loi empirique de croissance.....	183
<b>IV.E</b> Influence de la nature spatiale du faisceau sur le phénomène de croissance.....	185
<b>IV.F</b> Saturation des dommages en croissance.....	186
<b>Conclusion du Chapitre IV.....</b>	<b>188</b>

## IV.A Cadre d'étude

### IV.A.1 Définition et caractérisation des miroirs étudiés

Toutes les expériences présentées dans ce chapitre ont été réalisées sur des miroirs diélectriques identiques provenant du même lot de fabrication (le fabricant est Okamoto). Ils possèdent la structure suivante :

$$[\text{BK7} / (\text{BH})^{15} / \text{Air}]$$

B et H désignent les matériaux  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  respectivement (il s'agit du même type de miroir que celui utilisé au troisième chapitre en section III.B.1.a pour la validation de la procédure Monoshot en régime sub-picoseconde et picoseconde). À l'aide d'un spectromètre, des indices optiques de 1,448 et 1,930 à 1053 nm ont été mesurés pour  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  respectivement. Les épaisseurs des couches  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  sont respectivement de 194,3 nm et 149,9 nm ce qui donne un empilement d'une épaisseur d'environ 5,16  $\mu\text{m}$ . Le procédé de dépôt est l'évaporation par canon à électrons avec assistance ionique (e-beam + IAD).

Ces miroirs ont été utilisés soit à 30° soit à 45° d'incidence en polarisation S et P (ils restent réfléchissants à 1053 nm dans ces conditions, voir les courbes de réflectivité correspondantes en annexe 7). La configuration actuelle de la voie top-hat ne permet pas d'étudier la croissance à des angles d'incidence inférieurs à environ 25° du fait de la proximité du microscope à la voie d'arrivée du laser (Figure 2-23). Nous avons essayé de contourner cette difficulté en plaçant le microscope à l'arrière du porte-échantillon pour observer les dommages depuis la face arrière mais les observations sont alors trop floues. Il est prévu d'élargir la gamme d'angle d'incidence possible sur la voie top-hat dans le cadre d'une thèse à venir.

Nous donnons en Figure 4-1 la répartition de l'EFI pour ces miroirs dans ces à 30° et 45° d'incidence pour les polarisations S et P.

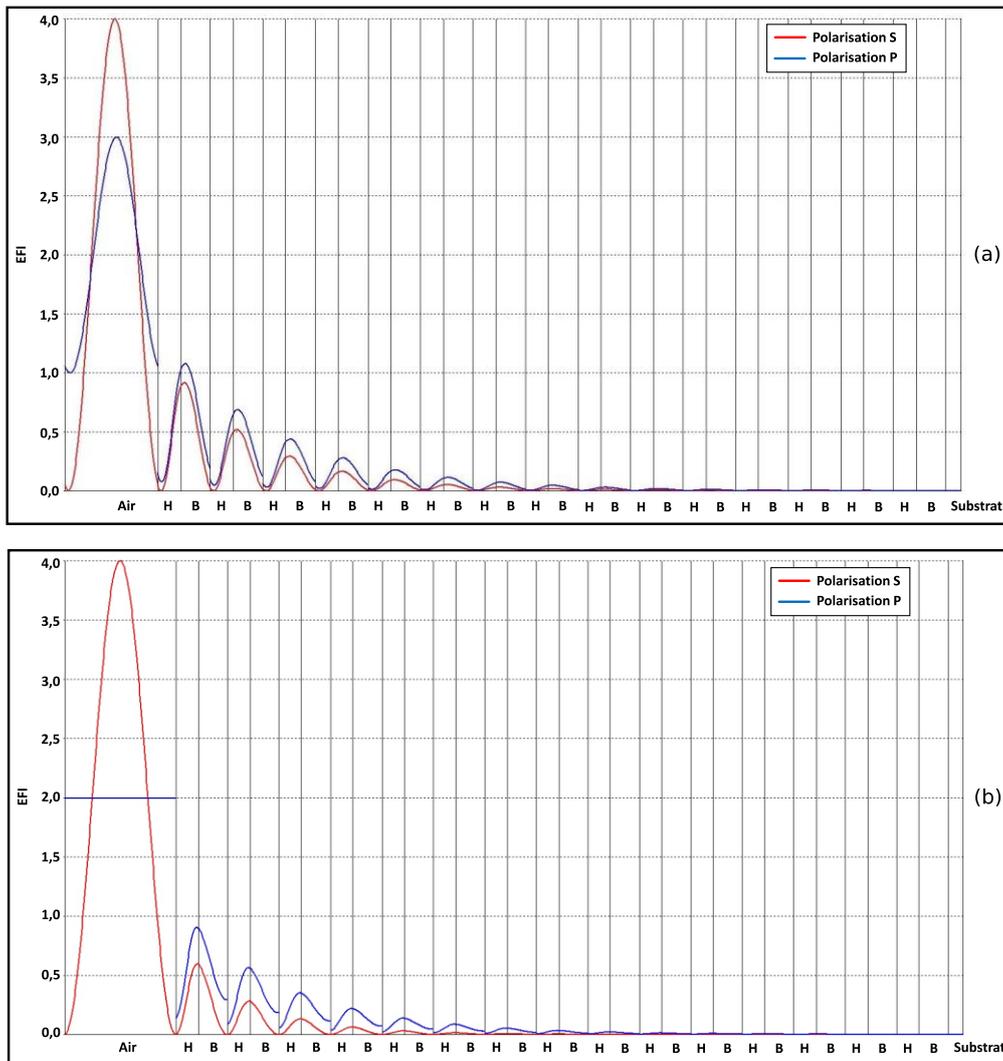


Figure 4-1 : Répartition de l'EFI au sein des miroirs diélectriques considérés dans ce chapitre pour (a) une incidence de 30° et (b) une incidence de 45°. Les calculs ont été réalisés avec le logiciel TFCalc [50].

Pour les deux matériaux, la plus forte modulation de champ se trouve toujours dans la couche la plus proche de la surface (la première irradiée pour HfO<sub>2</sub>, celle en-dessous pour SiO<sub>2</sub>). Le tableau 4-1 rassemble les valeurs d'EFI<sub>max</sub> selon les configurations et les matériaux.

EFI <sub>max</sub>	AOI 30°		AOI 45°	
	Polarisation P	Polarisation S	Polarisation P	Polarisation S
HfO <sub>2</sub>	1,02	0,88	0,93	0,62
SiO <sub>2</sub>	1,08	0,92	0,92	0,62

Tableau 4-1 : Plus hautes modulations de champ au sein des miroirs considérés dans ce chapitre selon l'angle d'incidence AOI, la polarisation et le matériau.

Également, nous voyons dans la Figure 4-1 que pour les deux matériaux, l'EFI<sub>max</sub> est localisé très proche de la première interface HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> que ce soit à 30° d'incidence (près de l'interface côté SiO<sub>2</sub>) ou 45° d'incidence (près de l'interface côté HfO<sub>2</sub>). En plus du fait que l'endommagement intervient d'abord nécessairement dans la première couche irradiée de HfO<sub>2</sub> (voir tableau 2-6 et section III.B.1.a), cette localisation de l'EFI<sub>max</sub> indique même qu'en cas d'ablation, c'est toute la couche limitante qui sera ablatée (son épaisseur est d'environ 150 nm, voir tableau 2-4).

Enfin, la loi d'échelle temporelle du LIDT de ce miroir a été déterminée pour un angle d'incidence de 45° et une polarisation P sur la voie gaussienne de DERIC à partir de la page 1 (voir sections III.B.1.a et III.B.1.b du troisième chapitre) et s'écrit comme suit :

$$\text{LIDT} = (2,45 \pm 0,03) \times \tau^{0,27 \pm 0,01} \text{ (avec LIDT en J/cm}^2 \text{ et } \tau \text{ en ps)}$$

## IV.A.2 Voie laser et procédure d'étude employées

Toutes les expériences de croissance des dommages présentées dans ce chapitre ont été réalisées sur la voie top-hat de DERIC dont la description a été donnée au deuxième chapitre en section II.A.3 (son synoptique est également donné en Figure 2-1). Nous rappelons ici que la caustique du faisceau sur cette voie est composée d'une grande diversité de profils spatiaux (Figure 2-21 et annexe 5) après passage du faisceau gaussien délivré par la source laser dans une lame de phase (Figure 2-19 et annexe 5) et une lentille de focalisation. Chaque séquence de croissance a été réalisée grâce à deux de ces profils spatiaux : un profil dit « étoile » très intense en son centre pour générer un dommage intrinsèque de taille contrôlée (appelé amorce) puis un profil top-hat i.e. à répartition homogène de densité d'énergie pour réaliser la croissance de cette amorce (nous revenons plus loin sur la validité du choix de ne considérer que des amorces intrinsèques). L'emploi de ces deux types de profils spatiaux a cependant nécessité la mise en place d'une procédure spécifique pour la préparation des expériences de croissance. Nous détaillons ci-après cette procédure qui se base également beaucoup sur un microscope (Figure 2-23) spécialement intégré à la voie top-hat au cours de cette thèse pour l'observation *in situ* des dommages lasers (les acquisitions de ce microscope sont synchronisées sur la source laser pour reconstituer l'évolution tir à tir de la surface endommagée) :

**1)** La première étape consiste à s'assurer de la bonne qualité du faisceau top-hat i.e. s'il est carré et homogène, propriétés qui ne peuvent pas être atteintes si le faisceau n'est pas rigoureusement centré sur la gravure de la lame de phase. L'objectif est donc ici de vérifier ce centrage en visualisant le faisceau top-hat sur la voie prélèvement et en corrigeant si nécessaire la position de la lame de phase sur le trajet du faisceau (verticalement et/ou horizontalement grâce à deux verniers de réglages fins). Il est parfois aussi nécessaire de déplacer légèrement la caméra selon l'axe de propagation pour retrouver le faisceau top-hat (déplacement de l'ordre du millimètre typiquement).

**2)** Une fois le passage dans la lame de phase assuré, l'étape suivante consiste à repérer sur la voie échantillon la position sur l'axe optique du faisceau top-hat qui servira pour l'irradiation ainsi que celle du faisceau de type « étoile » qui servira à créer les amorces. Cette étape s'est surtout avérée nécessaire pour l'étude de la dépendance temporelle de la croissance des dommages (présentée en section IV.B.2) car la caustique de la voie échantillon est sujette à un phénomène dit de défocalisation par changement de durée d'impulsion (causant un déplacement des faisceaux sur l'axe optique, le phénomène est illustré en annexe 8). Pour toutes les autres études effectuées au minimum de durée d'impulsion (0,8 ps), nous sommes tout de même passés par cette étape par précaution et il s'est avéré que même dans ce cas, les positions des faisceaux top-hat et étoile varient très légèrement (jamais plus d'un millimètre mais même une variation de cet ordre est critique uniquement au regard du faisceau top-hat comme nous l'explicitons en section IV.A.5). Le repérage des deux faisceaux

d'intérêt s'effectue à l'aide d'une série de tirs de type Monoshot sur plusieurs sites vierges de l'échantillon à étudier (un unique tir très énergétique par site vierge), tous les tirs étant réalisés à incidence nulle (le dommage prend alors la forme du faisceau telle que visualisée sur la caustique) et en changeant la position de l'échantillon sur l'axe optique entre chaque tir. Tous les dommages sont observés grâce au microscope, l'opérateur détermine alors les positions top-hat et étoile qu'ils jugent les meilleures (plusieurs positions peuvent convenir).

**3)** L'étape suivante consiste à identifier, pour le faisceau étoile précédemment sélectionné et la configuration expérimentale souhaitée (angle d'incidence et polarisation), l'énergie seuil au-delà de laquelle l'échantillon est systématiquement endommagé. Pour ce faire, celui-ci est placé à la position de l'axe optique où se situe le faisceau étoile puis tourné avec l'angle d'incidence voulu de manière à être vu de face par le microscope. Une série de tirs à différentes énergies est alors effectuée sur plusieurs sites vierges (un seul tir par site), l'énergie seuil étant déterminée directement par visualisation au microscope.

**4)** Une fois cette énergie seuil « étoile » déterminée, l'opérateur doit alors identifier dans un premier temps l'énergie minimale à apporter afin de générer des amorces de tailles répétables pour l'expérience de croissance à venir (cette énergie est bien sûr supérieure à la valeur seuil précédemment déterminée, de quelques dizaines de microjoules typiquement). Travailler trop proche du seuil expose en effet aux fluctuations de la source laser. Dans un deuxième temps, l'opérateur établit un abaque de la taille de l'amorce générée en fonction de l'énergie.

**5)** L'étape suivante consiste à générer l'ensemble des amorces nécessaires à l'étude voulue. Cet ensemble doit comprendre les amorces prévues pour les mesures de répétabilité et pour assurer le centrage sur le faisceau (pour des raisons explicitées en section IV.A.5 et en annexe 8, il est optimal de placer les amorces au centre du faisceau top-hat incident).

**6)** L'avant-dernière étape consiste à déterminer l'énergie seuil de l'échantillon, toujours pour la configuration expérimentale souhaitée, cette fois à partir du profil top-hat identifié à l'étape 2). Ce seuil en énergie augmente nécessairement par rapport à celui déterminé avec le profil étoile, ce dernier endommageant plus facilement. La détermination de ce seuil se fait de manière identique à l'étape 3). Il est ensuite converti en fluence connaissant la surface équivalente du faisceau top-hat (évaluée à  $(6,3 \pm 0,5) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ , voir Figure 2-22).

**7)** La dernière étape consiste à irradier les différentes amorces avec le faisceau top-hat d'étude selon les fluences d'irradiation souhaitées (30%, 40%, 50%... par rapport au seuil déterminé à l'étape précédente). Le microscope est quant à lui placé de manière à observer et enregistrer tir à tir l'amorce irradiée, sa fréquence d'acquisition étant égale au taux de répétition de la source laser (10 Hz) grâce à une synchronisation avec le signal d'horloge fourni par cette source. Un traitement d'images sous ImageJ extrait la surface endommagée pour chaque acquisition ce qui permet de retracer tir à tir son évolution pour l'analyse de la séquence complète de croissance.

### IV.A.3 Analyse des résultats

La surface endommagée étant la grandeur retenue dans cette thèse pour la caractérisation de la croissance des dommages lasers, toute séquence de croissance d'un dommage sera donc caractérisée par la courbe d'évolution de sa surface endommagée tir après tir. Également, nous avons veillé à assurer un minimum la répétabilité des mesures (voir la cinquième étape de la procédure de préparation des expériences décrite en section précédente). Chaque séquence de croissance a ainsi été répétée deux à trois fois comme illustré dans la Figure 4-2 (les séquences se sont montrées répétées tout au long de ces études de croissance).

Nous avons surtout constaté que du moment qu'un dommage croît, sa croissance passe par trois régimes distincts (illustrés en Figure 4-2) :

- Un régime initial : ce régime se caractérise par une croissance très peu marquée et ne représente toujours qu'une faible part de toute séquence de croissance. En effet, plus la fluence d'irradiation est faible, plus ce régime est vite interrompu par le régime de saturation (voir ci-après) et plus la fluence d'irradiation est forte, plus il cède vite sa place au régime principal (voir ci-après).
- Un régime principal : lors de ce régime, le dommage croît significativement. Il est d'autant plus marqué que la fluence d'irradiation est élevée et représente de manière générale la part la plus importante de chaque séquence de croissance.
- Un régime de saturation : ce régime clôture toute séquence de croissance et se caractérise par une évolution asymptotique de la surface endommagée. Cette surface de saturation peut prendre différentes valeurs (voir section IV.F) mais ne peut en tous les cas pas dépasser la surface du faisceau.

Pour mener notre étude paramétrique de la croissance des dommages lasers, nous avons fait le choix de ne considérer que le régime principal pour deux raisons : premièrement, ce régime est le plus contraignant vis-à-vis de la problématique de la croissance des dommages. Le considérer permet ainsi à minima de minorer les estimations de durée de vie des composants optiques. Deuxièmement, nous avons constaté que l'évolution de la surface endommagée avec le nombre de tirs durant le régime principal se paramètre toujours très bien par une droite affine de type  $S_N = \beta \times N + S_0$  (voir équation 1-9) tout comme lors des études de croissance réalisées par Martin Sozet [13] (rapportées au premier chapitre). Cela permet d'une part de se comparer à ces travaux et cela offre d'autre part un moyen robuste d'étudier le phénomène de croissance à travers une étude paramétrique. Nous reviendrons cependant en fin de chapitre sur ce choix de ne considérer que le régime principal. Ainsi, toute séquence de croissance d'un dommage laser dans ce chapitre sera caractérisée par un coefficient linéaire de croissance que nous noterons  $\beta$  et exprimerons en  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$ .  $\beta$  résultera de la moyenne des différentes séquences de croissance effectuées dans des conditions identiques afin de tenir compte de la répétabilité des mesures et l'erreur de mesure correspondra à l'écart entre cette moyenne et les valeurs minimale et maximale mesurées.

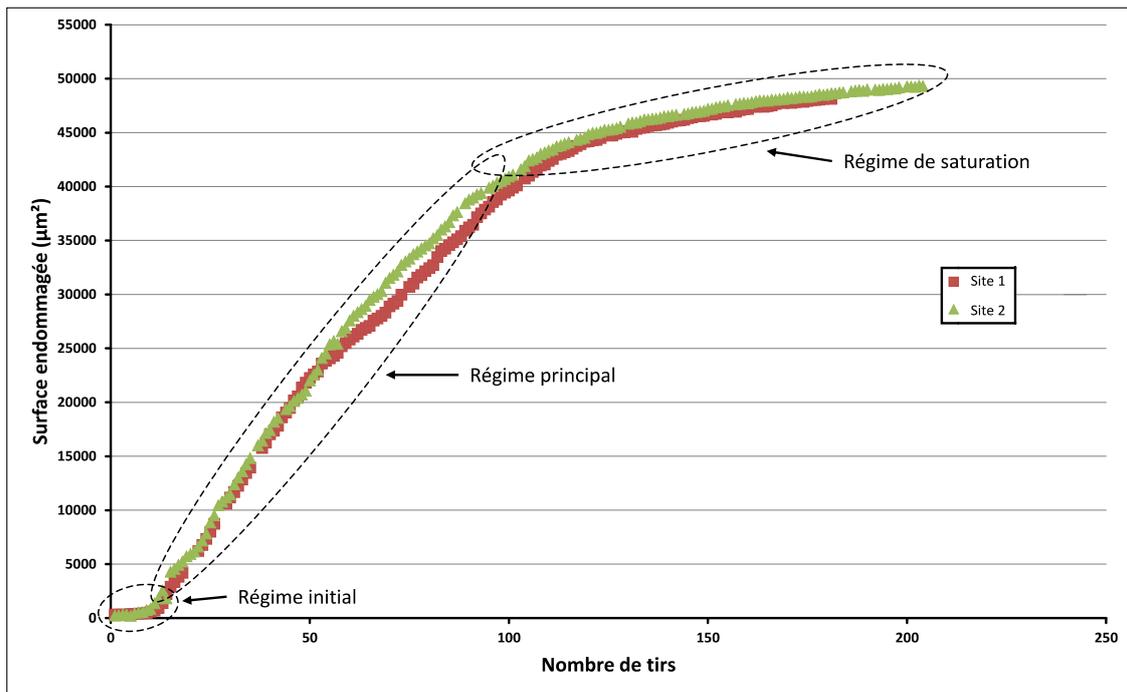


Figure 4-2 : Deux exemples de séquences de croissance de dommages lasers irradiés par un faisceau top-hat réalisées dans des conditions identiques pour assurer la répétabilité des mesures. À l'image de ces courbes, la répétabilité s'est avérée très bonne tout au long des études de croissance. Trois phases de croissance sont visibles (régimes initial, principal et de saturation). Seule la phase principale, paramétrée par une droite affine et caractérisée par une pente appelée coefficient de croissance, est considérée pour caractériser le phénomène de croissance. Ces séquences de croissance sont traduites par un seul coefficient de croissance résultant de la moyenne des deux coefficients obtenus.

#### IV.A.4 Phénomène de fatigue et taux de répétition

L'étude de la croissance des dommages lasers suppose une exposition locale à de multiples irradiations. Se pose ainsi la problématique de la fatigue du miroir qui se manifeste par une diminution de son LIDT avec le nombre de tirs (le phénomène de fatigue est illustré en Figure 2-26 et décrit au deuxième chapitre en section II.B.1.c lorsqu'est abordée la procédure S-on-1). Nous avons donc cherché à évaluer la fatigue des miroirs considérés dans ce chapitre lorsqu'ils sont irradiés avec un profil top-hat : après en avoir déterminé le LIDT, nous avons exposé plusieurs sites vierges à au moins une centaine d'irradiations sous seuil, chaque site étant irradié à une fluence donnée. Chaque séquence a été observée en direct à l'aide du microscope afin de repérer immédiatement un endommagement induit en fatigue. Ces tests ont été menés pour différentes configurations expérimentales (angle d'incidence, polarisation) ce qui implique différentes valeurs de LIDT. Les résultats ci-dessous sont ainsi exprimés relativement au seuil :

- Pour des fluences d'irradiation inférieures à 80% du LIDT, nous n'avons jamais constaté d'endommagement en fatigue.
- Pour des fluences d'irradiation comprises entre 80% et 90% du LIDT, le phénomène de fatigue ne s'est manifesté que très rarement (en moins de dix tirs le cas échéant).
- Pour des fluences d'irradiation supérieure à 90% du LIDT, l'endommagement en fatigue s'est systématiquement produit dès le cinquième tir en moyenne.

Au regard de ces résultats en fatigue, nous avons ainsi décidé d'étudier la croissance des dommages lasers pour des fluences d'irradiation allant jusqu'à 90% du LIDT (cette limite ne sera qu'occasionnellement dépassée dans le cadre de l'étude de la dépendance temporelle du phénomène de croissance des dommages présentée en section IV.B.2).

Également, ces études de fatigue ont été réalisées à 10 Hz. Il est attendu qu'un tel taux de répétition n'impacte pas le phénomène d'endommagement laser (voir section II.B.1.c au deuxième chapitre). Nous l'avons vérifié en comparant des séquences de croissance réalisées à 10 Hz et une séquence de croissance à 0,5 Hz, toutes les autres conditions étant identiques (ces résultats sont reportés en annexe 8). Toutes les études présentées dans la suite de ce chapitre ont ainsi été réalisées à 10 Hz.

### **IV.A.5 Qualité du faisceau top-hat**

La qualité du profil spatial d'un faisceau laser ainsi que sa caractérisation sont un souci permanent en métrologie de l'endommagement laser. La voie top-hat de DERIC a de ce point de vue représenté un défi certain. En effet, nous rappelons que cette voie présente une multitude de profils spatiaux (voir Figure 2-21 et annexe 5) formés à partir d'un faisceau initialement gaussien ayant traversé une lame de phase possédant un motif de gravure symétrique (voir Figure 2-19). Le faisceau top-hat correspond ainsi à un des profils spatiaux disponibles et il s'avère bien plus délicat de travailler avec un tel faisceau (comparativement au faisceau gaussien disponible sur la voie gaussienne du même banc) car plusieurs éléments conditionnent sa qualité globale.

Centrage dans la lame de phase et sensibilité aux fluctuations de la source laser : au même titre que tous les autres profils spatiaux de la voie top-hat de DERIC, le centrage du faisceau par rapport au motif de gravure est le premier élément affectant la qualité du faisceau top-hat i.e. sa capacité à être de géométrie carrée et à répartition homogène de densité surfacique d'énergie. Comme indiqué en section IV.A.2, nous avons ainsi veillé à vérifier rigoureusement ce centrage avant chaque expérience de croissance à l'aide de la caméra située sur la voie de prélèvement, un bon centrage se caractérisant par des profils spatiaux symétriques (des corrections mineures sur le placement de la lame de phase se sont quasi-systématiquement avérées nécessaires d'un jour sur l'autre). Si le centrage assure en grande partie l'homogénéité, de légères fluctuations sont tout de même constatées. En effet, un autre facteur impactant la qualité du faisceau et sur lequel nous n'avons pas de prise sont les fluctuations de la source laser. Nous distinguons trois types de fluctuations :

- Les fluctuations énergétiques : les énergies des impulsions en sortie de source ne sont en effet jamais rigoureusement égales et oscillent en réalité autour d'une valeur moyenne correspondant à l'énergie maximale délivrée par la source (environ 2,1 mJ). Nous avons estimé ces fluctuations à environ 2%.
- Les fluctuations en densité surfacique d'énergie : les impulsions émises par la source laser ne présentent pas toutes rigoureusement le même profil spatial gaussien et se caractérisent en réalité par de très légères variations autour de ce profil moyen.
- Les fluctuations en position : la source laser présente naturellement un dépointage d'une impulsion à une autre qui est de quelques micromètres dans notre cas.

Ces fluctuations ne sont pas problématiques sur la voie gaussienne de DERIC. Il n'en est en revanche pas de même sur la voie top-hat où la lame de phase y est sensible. En effet, il est directement visible sur la voie prélèvement que tous les profils spatiaux de la voie top-hat sont sujets à certaines variations de densité d'énergie même après avoir assuré le centrage du faisceau dans la lame de phase. Ces variations sont le plus marquées chez le faisceau top-hat où les bords du faisceau se révèlent plus variables que le centre du faisceau qui se montre lui assez stable et homogène. Nous avons directement constaté que de mêmes amorces volontairement placées soit en bordure soit au centre de la surface irradiée par le faisceau top-hat peuvent se comporter différemment en croissance (le détail de cette expérience est donné en annexe 8). Nous avons ainsi veillé à ce que chaque amorce soit centrée sur le faisceau top-hat pour éviter ces effets de bord.

Nous estimons qu'au moins une raison pour laquelle le faisceau top-hat en particulier se montre sensible à ces fluctuations est son positionnement même au sein de la caustique de la voie top-hat. Nous rappelons en effet que dans notre cas, le profil top-hat est situé à la frontière de deux groupes de faisceaux radicalement différents en termes de profil spatial (voir annexe 5) : d'un côté les profils dits en « matrice », constitués de plusieurs points chauds équivalents et équidistants, et de l'autre les profils dits en « étoile » caractérisés par un point chaud très intense au centre. Le profil top-hat constitue ainsi un profil de transition où se mélangent des points chauds aux quatre coins et au centre du carré ce qui peut expliquer sa relative instabilité (les autres profils type « matrice » et « étoile » se montrent plus stables probablement parce qu'ils sont justement caractérisés par des points chauds mieux localisés).

Zone utile top-hat : nous rappelons que la zone utile top-hat est définie comme la distance sur l'axe optique où le faisceau est considéré comme top-hat (cette distance est délimitée par l'apparition du caractère soit « étoile » soit « matrice » du faisceau, voir Figures 2-22(b) et 2-22(d)). Nous rappelons également que cette zone utile est non seulement très courte (nous estimons sa longueur à 1,5 mm au maximum, voir Figure 2-22(a)) mais qu'elle se caractérise aussi et surtout par une variation significative de la surface équivalente en son sein (voir Figure 2-22(a)) que nous évaluons à 8% étant donné que la surface équivalente dans la zone utile top-hat a été évaluée à  $(6,3 \pm 0,5) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ . Enfin, nous rappelons aussi qu'à position donnée dans cette zone utile, la surface équivalente est très stable (variation de 1% au mieux uniquement due aux fluctuations de la source laser). Bien qu'une certaine imprécision sur la surface équivalente du faisceau utilisé soit inévitable, cette dernière est ainsi plus importante avec le faisceau top-hat qu'avec le faisceau gaussien.

Lame de phase : nous ferons également remarquer que la lame de phase employée est une lame commerciale qui n'est pas rigoureusement adaptée au faisceau gaussien délivré par la source laser. En effet, la lame est prévue pour un faisceau gaussien centré à 1064 nm et de diamètre 3 mm à  $1/e^2$  alors que celui délivré par la source laser de DERIC est centré à 1054 nm (Figure 2-3) et possède un diamètre à  $1/e^2$  de 3,25 mm. Nous serions en droit de penser que ces écarts peuvent affecter la qualité des faisceaux formés et en particulier celle du profil top-hat. Bien que cela soit probablement vrai dans le fond, nous estimons cependant que ces effets sont en pratique négligeables car l'évolution constatée du profil spatial sur la voie top-hat de DERIC se montre vraiment très proche de celle prévue par le constructeur chez qui la lame de phase a été achetée (voir annexe 5 où nous donnons une caustique étendue de la voie top-hat ainsi que celle donnée sous forme d'abaque par le constructeur de la lame de

phase). Il serait en revanche intéressant d'optimiser la gravure de la lame de phase (en demandant par exemple la conception d'une lame spécifique au faisceau DERIC) car cela permettrait probablement d'améliorer la qualité du faisceau top-hat disponible (meilleure homogénéité et stabilité des bords par rapport au centre, moins de déperdition d'énergie en dehors de la tache centrale de diffraction, zone utile top-hat plus longue).

Pour l'ensemble des raisons évoquées ci-dessus et également parce que différentes configurations expérimentales ont été employées au cours des études de croissance des dommages (variation de l'angle d'incidence et/ou de la polarisation ce qui modifie le LIDT), nous exprimerons les fluences relativement au LIDT. Les fluences absolues seront uniquement employées lors de l'étude de la dépendance temporelle en section IV.B.2.

## IV.A.6 Paramètres étudiés

Par rapport à celle déjà réalisée par Martin Sozet lors de sa thèse [22] et rapportée au premier chapitre en section I.B.3.c, les paramètres suivants ne sont pas considérés pour l'étude paramétrique présentée dans ce chapitre :

- Le procédé de fabrication (e-beam + IAD), la structure (donnée en début de chapitre) et le substrat (BK7) car tous nos travaux ont été conduits sur des miroirs identiques provenant d'un même lot de fabrication (voir première section de ce chapitre).
- La nature de l'amorce car aucune influence de ce paramètre n'a été constatée sur le phénomène de croissance ni même sur le coefficient de croissance à une fluence donnée (les amorces étant générées sur défauts, intrinsèquement, en fatigue ou à partir d'un FIB pour obtenir des amorces « modèles »). Pour les études présentées dans ce chapitre, nous avons donc fait le choix de ne considérer que des amorces de nature intrinsèque. Comme indiqué en début de chapitre, ces dernières sont générées par un faisceau type « étoile » et sont de dimensions contrôlées en jouant finement sur la fluence du faisceau de manière à dépasser à peine le seuil d'endommagement. Un exemple d'amorce est donné en Figure 4-3 (observation MEB). Ces amorces peuvent varier en taille en surface mais ont la même profondeur à savoir environ 150 nm (Figure 4-4) soit l'épaisseur de la première couche du miroir faite de  $\text{HfO}_2$  (nous rappelons que les miroirs utilisés dans ce chapitre sont limités en tenue au flux laser par leur première couche et que l'endommagement a lieu dans toute l'épaisseur de cette dernière le cas échéant). Cette mesure de la profondeur d'amorce a été réalisée grâce au microscope AFM (Atomic Force Microscope) de l'Institut Fresnel.

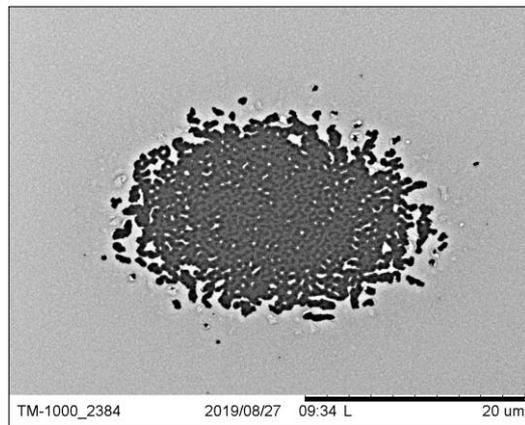


Figure 4-3 : Exemple d'amorce observée sous MEB d'une taille d'environ 20 µm. Le faisceau de type « étoile » ayant servi à générer cette amorce est arrivé par la gauche.

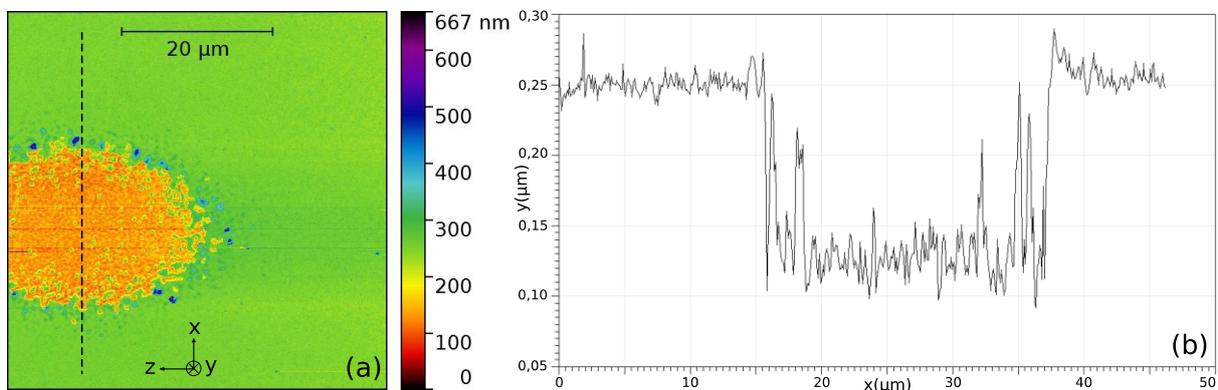


Figure 4-4 : (a) Mesure AFM sur une zone carrée de  $50 \times 50 \mu\text{m}^2$  d'une amorce (dommage intrinsèque) servant de point de départ à toute séquence de croissance. (b) Représentation graphique de la coupe verticale visible en (a). L'amorce a une profondeur d'environ 150 nm correspondant à l'épaisseur de la première couche du miroir faite de  $\text{HfO}_2$ .

Les paramètres retenus pour l'étude présentée dans ce chapitre sont ainsi les suivants :

- La taille de l'amorce.
- La durée d'impulsion.
- La polarisation.
- L'angle d'incidence.
- La fluence.

La fluence est à part dans le sens où nous nous appuierons systématiquement sur ce paramètre pour évaluer l'impact de chacun des autres paramètres sur le coefficient de croissance. Nous compléterons les études expérimentales par une étude numérique qui se concentrera plus en particulier sur les rôles de l'angle d'incidence et de la polarisation.

## IV.B Étude paramétrique expérimentale

### IV.B.1 Impact de la taille de l'amorce

Nous désignons par taille de l'amorce sa plus longue dimension en surface. Toutes les expériences de croissance ayant été menées à des angles d'incidence non nuls et tous les profils spatiaux des faisceaux étant symétriques (annexe 5), cette taille correspond toujours à la longueur de l'amorce dans le sens horizontal d'après l'orientation de la Figure 4-3.

Pour cette étude, nous avons considéré des amorces de tailles 20  $\mu\text{m}$  et 40  $\mu\text{m}$  afin de garantir la génération d'amorces de tailles répétables (en dessous de 20  $\mu\text{m}$ , on travaille alors trop proche du seuil d'endommagement ce qui expose aux fluctuations en fluence de la source laser) tout en maintenant une bonne plage d'observation du phénomène de croissance vis-à-vis de la taille du faisceau top-hat utilisé (carré de côté 150  $\mu\text{m}$ , voir Figure 2-20).

Cette étude a été réalisée à 30° d'incidence, en polarisation P et avec une durée d'impulsion de 0,8 ps. Les résultats sont présentés en Figure 4-5. Comme expliqué en section IV.A.5, nous privilégions les fluences normalisées par rapport au LIDT pour exprimer les résultats. Le principal avantage est ainsi de mieux s'affranchir de l'incertitude entourant la surface équivalente du faisceau top-hat utilisé : une fois ce dernier sélectionné dans la zone utile top-hat à l'issue de la procédure de préparation (décrite en section IV.A.2), l'échantillon est placé à la position correspondante et n'en bouge plus durant toute l'expérience. Étant donné la très bonne stabilité de la surface équivalente pour chaque position dans la zone utile top-hat, nous considérons donc qu'il n'est pas utile d'accompagner les fluences relatives de barres d'erreur.

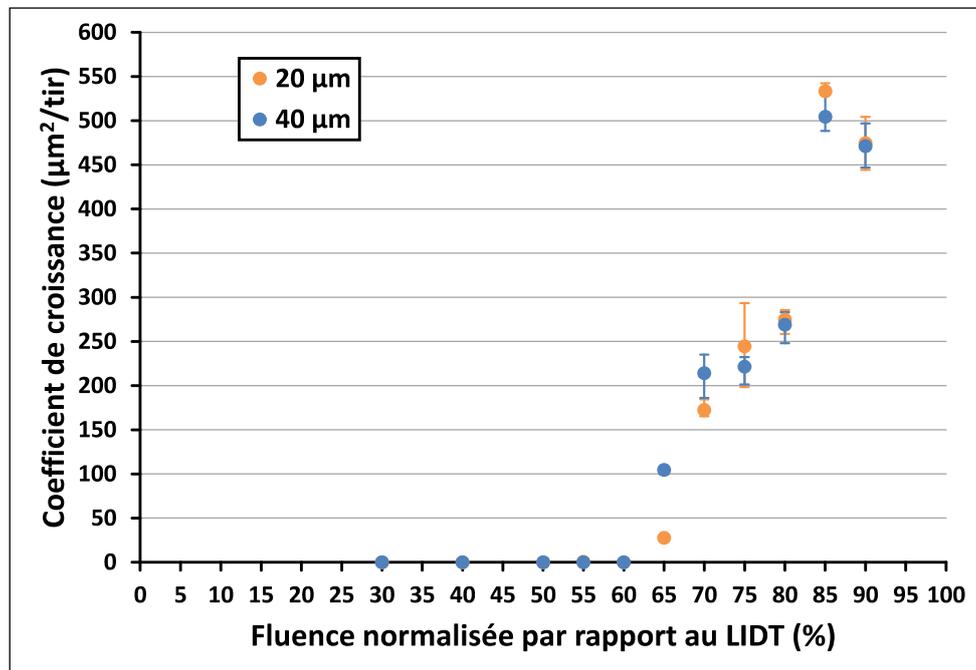


Figure 4-5 : Évolution du coefficient de croissance pour différentes fluences (exprimées relativement au LIDT) et deux tailles d'amorces (20 et 40  $\mu\text{m}$ ). Les points sont confondus jusqu'à 60% du LIDT, ce dernier ayant été évalué à  $2,22 \pm 0,18 \text{ J}/\text{cm}^2$ .

Qualitativement, trois résultats ressortent de cette étude : tout d'abord, il existe une fluence seuil de croissance que nous désignerons dans toute la suite par seuil de croissance et que nous noterons  $LIDT_c$ . Ensuite, ce seuil de croissance est inférieur au LIDT. Enfin, une fois ce seuil atteint, le coefficient de croissance augmente avec la fluence. Ces résultats sont identiques à ceux rapportés au premier chapitre (Figure 1-24).

Nous ne constatons pas de variation significative du coefficient de croissance pour les deux tailles d'amorce étudiées. Nous estimons que la seule différence notable à 65% du seuil vient du fait que le seuil de croissance ne peut pas être exactement répétable d'une séquence à une autre malgré le fait de travailler à position fixe. Nous avons en effet mis en avant en section IV.A.5 que le faisceau top-hat est sujet à des variations de densité d'énergie ; ces variations ont un poids d'autant plus grand que l'irradiation se fait proche du seuil de croissance et peuvent ainsi expliquer que la croissance démarre plus facilement dans un cas que dans l'autre (voir également l'annexe 8 à ce sujet). Nous notons par ailleurs que les valeurs à 85% du LIDT semblent anormalement élevées (coefficients de croissance aux alentours de  $500 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  là où on attendrait des valeurs entre 350 et  $400 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  d'après la tendance qui se dégage dans toute la Figure 4-5). Nous supposons ici aussi que ces valeurs ont été obtenues avec un faisceau top-hat présentant un point chaud en son centre un peu plus intense par rapport aux cas des autres fluences.

En écartant ces valeurs à priori aberrantes à 85% du seuil, il est intéressant de constater que quantitativement, l'évolution du coefficient de croissance avec la fluence (dès lors que cette dernière est supérieure au seuil de croissance) est bien paramétrée par une droite affine de type  $\beta = \delta \times (F - LIDT_c)$ , les coefficients de corrélation étant de 0,96 et 0,94 pour les cas à 20  $\mu\text{m}$  et 40  $\mu\text{m}$  respectivement (nous estimons que ces coefficients auraient été encore meilleurs avec un échantillonnage plus fin en fluence et surtout un faisceau top-hat plus stable). Un autre argument en faveur de ce paramétrage (que nous qualifierons par la suite de linéaire) est qu'il permet de déterminer mathématiquement un seuil de croissance très cohérent avec les données expérimentales. En effet, le seuil de croissance se définit alors comme l'intersection de la droite de paramétrage avec l'axe des abscisses. Ce faisant, des seuils de croissance très proches à 62% et 57% du LIDT sont respectivement déduits des cas à 20  $\mu\text{m}$  et 40  $\mu\text{m}$  ce qui est cohérent avec les données visibles en Figure 4-5. Nous revenons en détail dans la section IV.C.1.b sur cette notion de seuil de croissance.

Cette étude indique ainsi que dans notre cas, le phénomène de croissance des dommages ne sera pas impacté pour des tailles d'amorces comprises entre 20 et 40  $\mu\text{m}$ . Surtout, cette étude confirme d'une part que la croissance est un phénomène à seuil et suggère d'autre part fortement que le coefficient de croissance évolue linéairement avec la fluence dès lors que le seuil de croissance est dépassé. Toutes les sections suivantes vont nous permettre de renforcer la validité de ce modèle linéaire.

## **IV.B.2 Impact de la durée d'impulsion**

Dans la lignée des expériences présentées au troisième chapitre sur la dépendance temporelle des endommagements intrinsèque et sur défauts, il s'agit ici d'étudier la dépendance temporelle du phénomène de croissance des dommages lasers en régime court.

Pour ces expériences en particulier, nous avons cependant fait face à une contrainte propre à la voie top-hat : la caustique du faisceau subit une défocalisation par changement de durée d'impulsion. Ce phénomène, détaillé en annexe 8, se traduit par un changement de position des profils spatiaux sur l'axe optique sans modifier leur nature ni leur ordre. Ainsi, sans empêcher les études avec un profil top-hat, cette défocalisation impose cependant de relocaliser l'emplacement de la zone utile top-hat pour chaque durée d'impulsion étudiée. C'est en grande partie la raison pour laquelle nous avons privilégié les durées d'impulsion extrêmes disponibles sur DERIC à savoir 0,8 ps et 4 ps sur la plage 1 et une durée intermédiaire de 2 ps (suite à une maintenance sur la source laser avant d'entamer les expériences de croissance, la gamme temporelle disponible sur cette plage s'est légèrement élargie par rapport à celle disponible pour les études du troisième chapitre).

Enfin, de manière similaire à l'étude de la dépendance temporelle de l'endommagement sur défauts (au troisième chapitre), nous avons souhaité pouvoir interpréter les résultats en raisonnant soit à fluence absolue donnée soit à durée d'impulsion donnée. Nous avons donc sélectionné plusieurs fluences au sein de la gamme disponible sur DERIC et, en veillant à ne pas dépasser le LIDT propre à chaque durée d'impulsion, étudié la croissance des dommages pour le plus grand nombre d'entre elles pour chaque durée d'impulsion (le LIDT augmentant avec la durée d'impulsion, plus de fluences ont pu être employées à 4 ps qu'à 0,8 ps).

Les résultats visibles en Figure 4-6 sont rapportés selon les fluences absolues et relatives au LIDT propre à chaque durée d'impulsion. Cette étude a été réalisée à 30° d'incidence, en polarisation P et avec des amorces de taille 35  $\mu\text{m}$ . Nous précisons aussi que toutes les amorces ont été générées à 0,8 ps pour s'assurer au maximum de la stabilité de ce paramètre (la défocalisation imposerait de localiser un nouveau profil « étoile » pour chaque nouvelle durée d'impulsion d'étude).

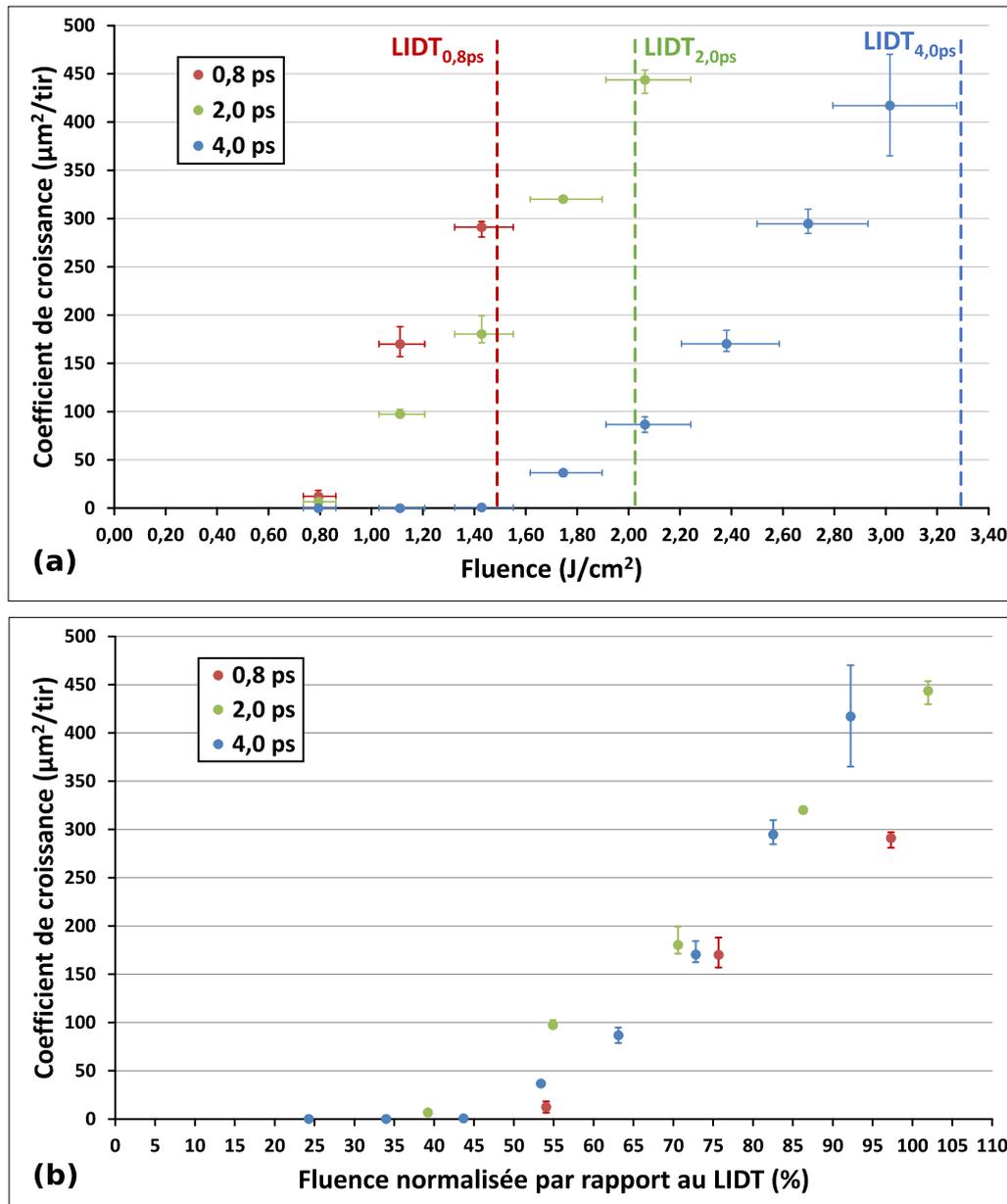


Figure 4-6 : Évolution du coefficient de croissance pour des durées d'impulsion de 0,8 ps, 2 ps et 4 ps (0,8 ps et 4 ps étant les valeurs extrêmes disponibles sur DERIC) et pour plusieurs fluences. Les résultats sont exprimés selon (a) la fluence absolue (dont les différentes méthodes de calcul sont données en section II.A.3) et (b) la fluence relative (rapportée au LIDT propre à la durée d'impulsion correspondante). Les LIDT à 0,8 ps, 2 ps et 4 ps sont respectivement de  $1,47 \pm 0,12 \text{ J/cm}^2$ ,  $2,02 \pm 0,16 \text{ J/cm}^2$  et  $3,27 \pm 0,26 \text{ J/cm}^2$ . Les incertitudes de mesure sur les seuils proviennent de celles sur la surface équivalente top-hat (voir section IV.A.5). Seuls les seuils médians sont représentés pour ne pas surcharger la Figure. Nous appliquons également ces incertitudes dans la partie (a) puisqu'elle fait intervenir les fluences absolues.

De nombreux résultats ressortent de cette étude.

Qualitativement d'abord, nous retrouvons (indépendamment de la durée d'impulsion et de la considération en fluence absolue ou relative) les trois résultats obtenus à partir de l'étude précédente à savoir la présence systématique d'un seuil de croissance, ce dernier étant inférieur au LIDT et un coefficient de croissance augmentant avec la fluence lorsque celle-ci est supérieure au seuil de croissance.

En considérant ensuite la Figure 4-6(a), deux résultats propres à cette étude sont d'une part que le seuil de croissance augmente avec la durée d'impulsion et d'autre part, qu'à fluence absolue donnée, le coefficient de croissance diminue quand la durée d'impulsion augmente.

La Figure 4-6(b) est quant à elle intéressante sur deux points : premièrement, le seuil de croissance (ici relatif) apparaît indépendant de la durée d'impulsion. Nous revenons plus bas sur ce point lors de l'analyse quantitative. Deuxièmement, à fluence relative fixe, une tendance très légère est que le coefficient de croissance augmente avec la durée d'impulsion. Nous ne pouvons formellement parler que de tendance car la répartition de l'ensemble des fluences relatives étudiées n'offre que très peu de points de comparaison à fluence relative donnée (conséquence d'avoir choisi de travailler avec les mêmes fluences absolues indépendamment de la durée d'impulsion sachant que le LIDT varie avec cette dernière). Néanmoins, il n'y a dans le fond aucun doute possible concernant ce résultat. En effet, il s'agit toujours de tracer l'évolution du coefficient de croissance qui est lui bien sensible à la fluence absolue et non relative. Or, étant donné que le LIDT augmente avec la durée d'impulsion, à toute fluence relative donnée correspond une fluence absolue d'autant plus grande que la durée d'impulsion est grande.

Quantitativement, nous constatons de nouveau que quelle que soit la durée d'impulsion considérée, l'évolution du coefficient de croissance avec la fluence (absolue comme relative) se paramètre très bien par une droite affine de type  $\beta = \delta \times (F - \text{LIDT}_c)$  : les coefficients de corrélation sont respectivement de 0,99, 0,99 et 0,95 pour les cas à 0,8 ps, 2 ps et 4 ps. Selon la représentation en fluence absolue ou relative, seule la pente change (l'ordonnée à l'origine étant par définition indépendante de cette représentation). En nous appuyant sur ce paramétrage linéaire comme lors de l'étude précédente, des seuils de croissance relatifs à respectivement 53%, 41% et 49% du LIDT sont déterminés à 0,8 ps, 2 ps et 4 ps à l'aide de la Figure 4-6(b) ce qui va dans le sens de l'hypothèse émise plus haut d'un seuil de croissance relatif indépendant de la durée d'impulsion. Nous apporterons un autre argument théorique en faveur de cette hypothèse en section IV.C.1.b. Toujours à partir de la Figure 4-6(b), nous obtenons les relations affines suivantes :

- $\beta_{0,8\text{ps}} = 6,27 \times [F_{\%} - 53]$  avec  $R^2 = 0,99$
- $\beta_{2,0\text{ps}} = 6,99 \times [F_{\%} - 41]$  avec  $R^2 = 0,99$
- $\beta_{4,0\text{ps}} = 8,65 \times [F_{\%} - 49]$  avec  $R^2 = 0,95$

Où  $F_{\%}$  désigne la fluence relative. Exprimées en  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$ , les pentes relatives de plus en plus élevées avec la durée d'impulsion confirment l'analyse qualitative précédente à savoir qu'à fluence relative donnée, le coefficient de croissance est d'autant plus grand que la durée d'impulsion est grande.

En considérant à son tour la Figure 4-6(a), le paramétrage linéaire donne les résultats suivants pour le coefficient de croissance  $\beta$  (en polarisation P et à 30° d'incidence) :

- $\beta_{0,8ps} = (439 \pm 35) \times [F - (0,75 \pm 0,06)]$  avec  $R^2 = 0,99$
- $\beta_{2,0ps} = (346 \pm 27) \times [F - (0,82 \pm 0,07)]$  avec  $R^2 = 0,99$
- $\beta_{4,0ps} = (265 \pm 21) \times [F - (1,59 \pm 0,12)]$  avec  $R^2 = 0,95$

Où  $\beta$  s'exprime en  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$ ,  $F$  est la fluence absolue en  $\text{J}/\text{cm}^2$ , chaque coefficient directeur s'exprime en  $10^8 \mu\text{m}^4/\text{J}/\text{tir}$  et  $R^2$  est le coefficient de corrélation.

Les incertitudes sur le coefficient directeur et le seuil de croissance sont dues à la prise en compte de l'incertitude sur la surface équivalente du faisceau top-hat.

Ainsi, conformément aux observations qualitatives énoncées plus haut, nous obtenons bien un seuil de croissance qui augmente avec la durée d'impulsion et un coefficient de croissance d'autant plus petit, à fluence absolue fixe, que la durée d'impulsion est grande. Cette dernière dépendance temporelle provient directement du fait que le coefficient directeur, noté  $\delta$ , diminue quand la durée d'impulsion augmente. Nous allons ainsi quantifier plus précisément les dépendances temporelles du coefficient directeur  $\delta$  et du seuil de croissance  $\text{LIDT}_c$  en étudiant directement leurs évolutions en fonction de la durée d'impulsion  $\tau$  ce qui revient à établir leurs lois d'échelles temporelles.

En tenant compte des incertitudes, nous obtenons les lois d'échelles temporelles suivantes :

- $\text{LIDT}_c = (0,75 \pm 0,06) \times \tau^{0,45}$  avec  $R^2 = 0,78$
- $\delta = (415 \pm 33) \times \tau^{-0,31}$  avec  $R^2 = 0,99$

Où  $\text{LIDT}_c$  est exprimé en  $\text{J}/\text{cm}^2$ ,  $\delta$  en  $10^8 \mu\text{m}^4/\text{J}/\text{tir}$  et  $\tau$  en ps.

Nous estimons que la raison pour laquelle un meilleur coefficient de corrélation est obtenu pour  $\delta$  que pour  $\text{LIDT}_c$  vient des sensibilités respectives de ces grandeurs vis-à-vis du phénomène, évoqué précédemment, de défocalisation qui impose de relocaliser la zone utile top-hat dès qu'est changée la durée d'impulsion. Il est ainsi délicat de garantir qu'un faisceau de même profil spatial est utilisé, prérequis lorsque l'on souhaite étudier la dépendance temporelle d'une grandeur donnée. Cependant,  $\delta$  étant à chaque fois déterminé à partir d'un ensemble de points à durée d'impulsion donnée i.e. à même position dans la zone utile top-hat, cette grandeur est ainsi très peu sensible à la nature spatiale du faisceau utilisé (nous rappelons que le faisceau présente une bonne stabilité en termes de surface équivalente pour une position donnée au sein de la zone utile top-hat). Ce n'est en revanche pas le cas pour  $\text{LIDT}_c$  qui est issu d'un seul point de mesure à chaque durée d'impulsion.

Nous rappelons qu'une loi d'échelle temporelle en  $\tau^{(0,27 \pm 0,01)}$  a été établie pour le LIDT du miroir étudié. Nous remarquons ainsi que  $\delta$  présente une dépendance temporelle selon une loi d'échelle quasi-inverse. Concernant le  $\text{LIDT}_c$ , nous apporterons un argument théorique en section IV.C.1.b en faveur d'une dépendance temporelle identique à celle du LIDT.

À partir des résultats précédents, nous proposons alors la loi empirique suivante pour le coefficient de croissance  $\beta$  :

$$\beta(F, \tau) = \delta(\tau) \times [F - \text{LIDT}_c(\tau)] = c_1 \times \tau^{-k_1} \times (F - c_2 \times \tau^{k_2})$$

Équation 4-1 : Loi empirique du coefficient de croissance.

Où  $F$  est la fluence absolue,  $\tau$  la durée d'impulsion et  $c_1$ ,  $c_2$ ,  $k_1$ ,  $k_2$  des grandeurs positives ( $k_1$  et  $k_2$  étant adimensionnés). Si  $\beta$  est exprimé en  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$ ,  $F$  en  $\text{J}/\text{cm}^2$  et  $\tau$  en ps alors  $c_1$  s'exprime en  $10^8 \mu\text{m}^4 \cdot \text{ps}/\text{tir}/\text{J}$  et  $c_2$  s'exprime en  $\text{J}/\text{cm}^2/\text{ps}$ . Dans notre cas, nous avons  $c_1 = (415 \pm 33) \times 10^8 \mu\text{m}^4 \cdot \text{ps}/\text{tir}/\text{J}$ ,  $c_2 = 0,75 \pm 0,06 \text{ J}/\text{cm}^2/\text{ps}$ ,  $k_1 = 0,31$  et  $k_2 = 0,45$ .

Nous donnons ci-dessous quelques exemples d'applications numériques de cette loi empirique à 0,8 ps, 2 ps et 4 ps et pour deux fluences d'irradiation par durée d'impulsion (une légèrement supérieure au seuil de croissance, l'autre légèrement inférieur au LIDT) :

- 0,8 ps :  $\beta = 99 \pm 31 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 0,9  $\text{J}/\text{cm}^2$  et  $\beta = 276 \pm 47 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 1,3  $\text{J}/\text{cm}^2$
- 2 ps :  $\beta = 59 \pm 32 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 1,2  $\text{J}/\text{cm}^2$  et  $\beta = 293 \pm 52 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 1,9  $\text{J}/\text{cm}^2$
- 4 ps :  $\beta = 81 \pm 37 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 1,7  $\text{J}/\text{cm}^2$  et  $\beta = 405 \pm 63 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 2,9  $\text{J}/\text{cm}^2$

Par rapport aux valeurs obtenues via les trois paramétrages linéaires issus de la Figure 4-6(a) (donnés précédemment), nous trouvons que le coefficient de croissance empirique est surestimé de  $35 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 0,8 ps et de  $53 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 4 ps et qu'il est sous-estimé de  $76 \mu\text{m}^2/\text{tir}$  à 2 ps. Pour améliorer la précision de la loi empirique, il faudrait établir plus précisément la loi d'échelle temporelle du coefficient directeur  $\delta$  et en particulier celle du seuil de croissance  $\text{LIDT}_c$ . La meilleure piste serait déjà de réduire le plus possible l'imprécision entourant le profil spatial du faisceau (assez grande dans notre cas avec le faisceau top-hat), d'être également plus résolu en fluence de manière à mieux cerner le seuil de croissance et enfin d'être aussi plus résolu en durée d'impulsion (idéalement sans aucune défocalisation par changement de durée d'impulsion contrairement à notre cas).

Nous allons qualitativement affiner cette loi empirique à l'aide des prochaines sections.

### IV.B.3 Impact de la polarisation

Il s'agit ici d'étudier l'impact des polarisations P et S sur la croissance d'un dommage laser. La polarisation sur la voie top-hat est modifiée à l'aide d'une lame demi-onde située juste après la séparatrice (Figure 2-1).

L'étude a été menée à 45° d'incidence avec une durée d'impulsion de 0,8 ps et des amorces de taille 40  $\mu\text{m}$ . Les résultats sont donnés en Figure 4-7.

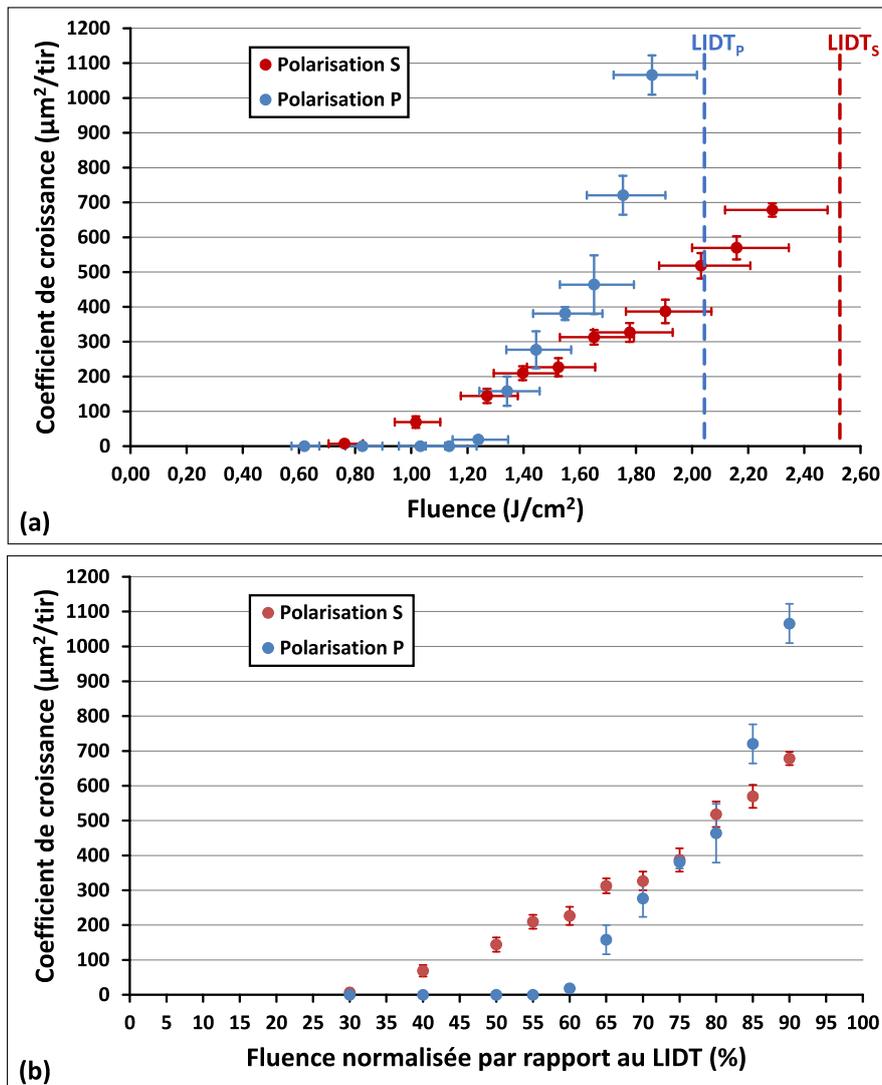


Figure 4-7 : Évolution du coefficient de croissance pour les polarisations P et S selon (a) la fluence absolue et (b) la fluence relative (normalisée au LIDT). Les LIDT valent respectivement  $2,06 \pm 0,17 \text{ J}/\text{cm}^2$  et  $2,54 \pm 0,21 \text{ J}/\text{cm}^2$  en polarisation P et S.

Une nouvelle fois, nous constatons l'existence d'un seuil de croissance inférieur au LIDT et une augmentation du coefficient de croissance avec la fluence dès que celle-ci est supérieure au seuil de croissance. Cette étude confirme en plus un autre résultat précédemment mis en évidence [14] et reporté en Figure 1-26 à savoir que le seuil de croissance dépend de la polarisation (les résultats y sont exprimés selon les fluences absolues mais la conclusion reste inchangée en normalisant au LIDT). Nous reviendrons sur ce résultat en section IV.C.1.b.

Quantitativement, nous constatons de nouveau que l'évolution du coefficient de croissance avec la fluence se paramètre très bien de façon affine, les coefficients de corrélation étant respectivement de 0,96 et 0,97 pour les polarisations S et P. À partir des données en Figure 4-7(b), ce paramétrage linéaire permet de déterminer des seuils relatifs de croissance à respectivement 35% et 60% du LIDT pour les polarisations S et P. Nous obtenons également les relations affines suivantes à partir de la Figure 4-7(a) :

- $\beta_{45^\circ_S} = (432 \pm 35) \times [F - (0,89 \pm 0,08)]$  avec  $R^2 = 0,96$
- $\beta_{45^\circ_P} = (1255 \pm 100) \times [F - (1,23 \pm 0,10)]$  avec  $R^2 = 0,97$

Ces résultats montrent ainsi qu'à incidence donnée, la pente et le seuil de croissance dépendent de la polarisation. En tenant également compte du résultat obtenu en section précédente en polarisation P et 30° d'incidence (cas à 0,8 ps), nous en déduisons qu'à polarisation donnée, ces deux grandeurs dépendent aussi de l'angle d'incidence. Dans l'ensemble, ces résultats suggèrent ainsi que la pente et le seuil de croissance dépendent des modulations de champ. Nous approfondirons le cas du seuil de croissance à partir de calculs de champ numériques en section IV.C.

Lors de cette étude autour de l'influence de la polarisation, nous avons également constaté que la morphologie des dommages durant leur croissance est très affectée par la polarisation de l'impulsion irradiante. Nous avons observé ces dommages à l'aide du microscope à balayage électronique. Les observations concernant la polarisation P sont reportées en Figure 4-8 et celles concernant la polarisation S en Figure 4-9 (bien prendre garde aux changements d'échelles).

Remarque : toutes les observations MEB rassemblées dans les Figures 4-8 et 4-9 concernent des dommages ayant chacun suivi une séquence complète de croissance c'est-à-dire jusqu'à ce qu'une saturation de la surface endommagée soit observée. Nous revenons sur cette notion de saturation en section IV.F.

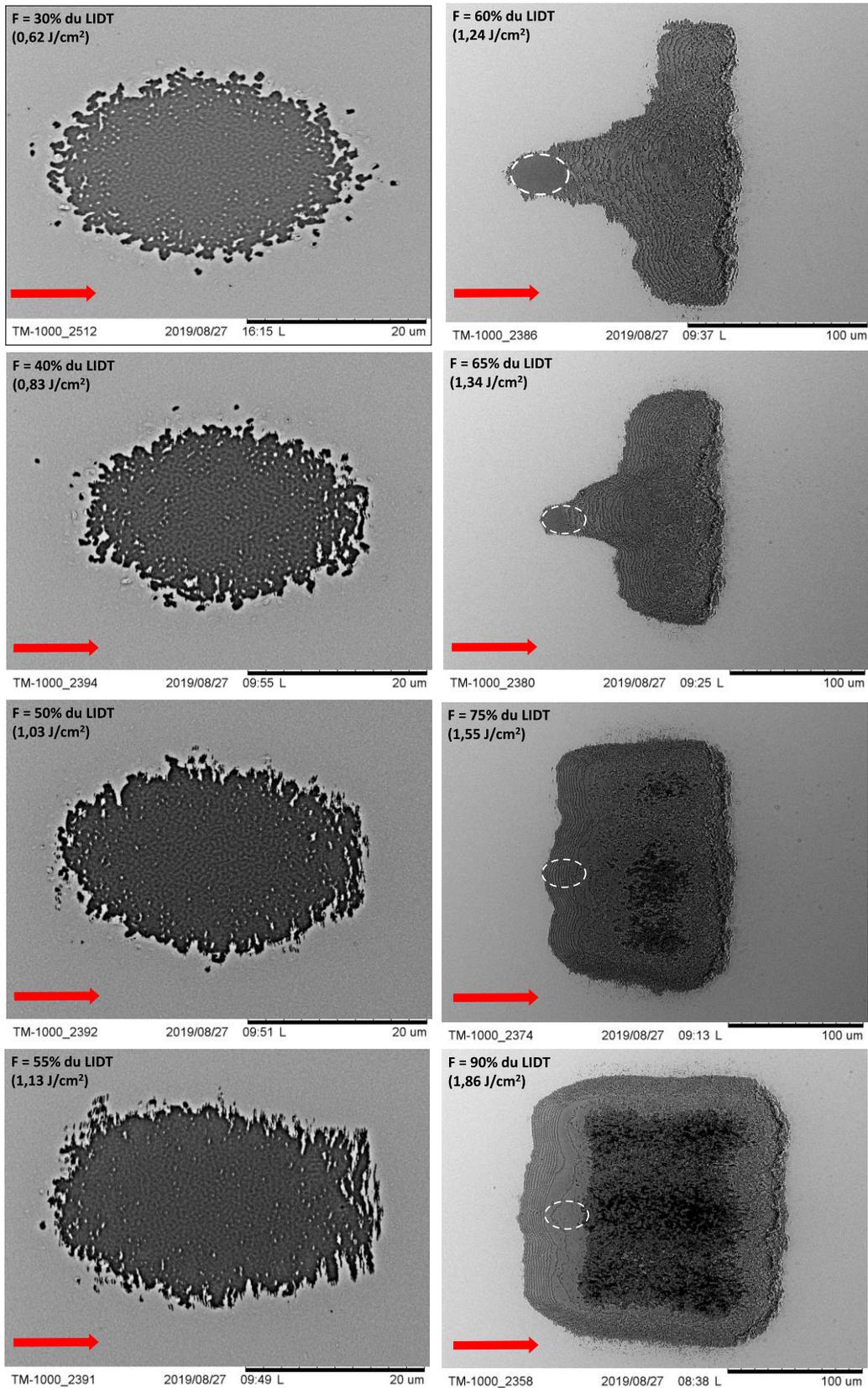


Figure 4-8 : Observations pour différentes fluences d'irradiation (exprimées relativement au LIDT et en absolu en haut à gauche de chaque image) de dommages lasers ayant tous suivis une séquence de croissance en étant irradiés par un faisceau carré top-hat polarisé P et en partant systématiquement d'un même dommage initial (amorce, visible en Figure 4-3, repérée en blanc là où la croissance est prononcée). Le faisceau arrive toujours par la gauche (indiqué par les flèches rouges). L'angle d'incidence est de  $45^\circ$  et la durée d'impulsion de 0,8 ps.

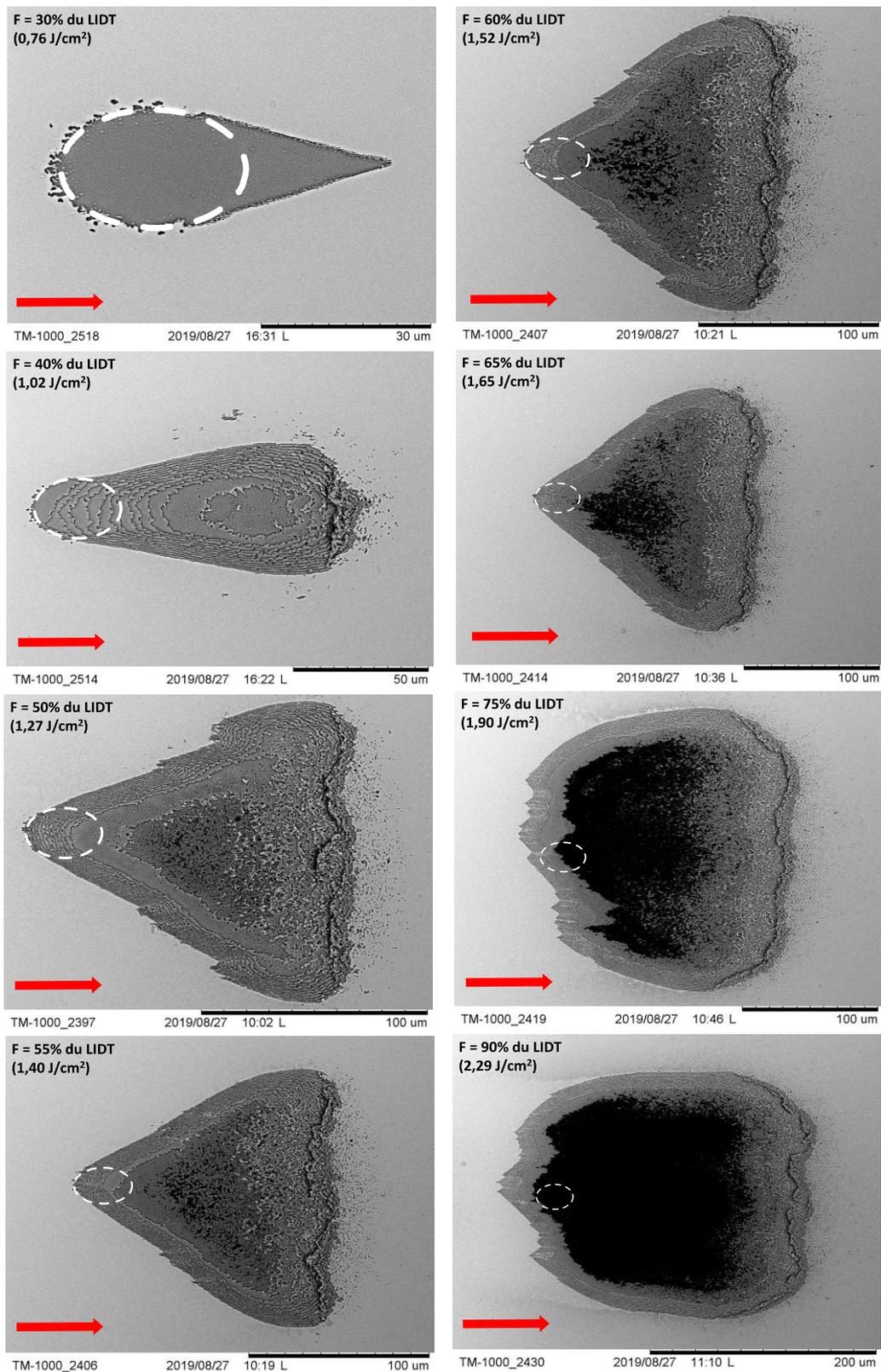


Figure 4-9 : Observations pour différentes fluences d'irradiation (exprimées relativement au LIDT et en absolu en haut à gauche de chaque image) de dommages lasers ayant tous suivis une séquence de croissance en étant irradiés par un faisceau carré top-hat polarisé S et en partant systématiquement d'un même dommage initial (amorce, visible en Figure 4-3, repérée en blanc là où la croissance est prononcée). Le faisceau arrive toujours par la gauche (indiqué par les flèches rouges). L'angle d'incidence est de 45° et la durée d'impulsion de 0,8 ps.

Il apparaît clairement une morphologie type selon la polarisation, en forme de T basculé pour la polarisation P et en forme de triangle pour la polarisation S. Les morphologies se rejoignent vers les plus hautes fluences d'irradiation car ces dernières impriment de mieux en mieux le faisceau top-hat incident de forme carrée. Un constat intéressant est que les seuils relatifs de croissance donnés par le paramétrage linéaire en Figure 4-7 (35% du LIDT pour la polarisation S et 60% du LIDT pour la polarisation P) préviennent très bien l'apparition d'une croissance significative mais qu'ils surestiment en revanche toujours légèrement la réalité de l'endommagement. En effet, nous voyons bien par exemple dans les cas à 55% du LIDT en polarisation P (Figure 4-8) et à 30% du LIDT en polarisation S (Figure 4-9) que les dommages correspondant ont effectivement évolué au cours de leurs séquences de croissance respectives. Nous aurons l'occasion de revenir sur ce point en section IV.C.1.b.

Nous donnons également en Figure 4-10 la mesure AFM (réalisée à l'Institut Fresnel) de la profondeur du dommage correspondant au cas d'une irradiation à 60% du LIDT en polarisation P dans la Figure 4-8.

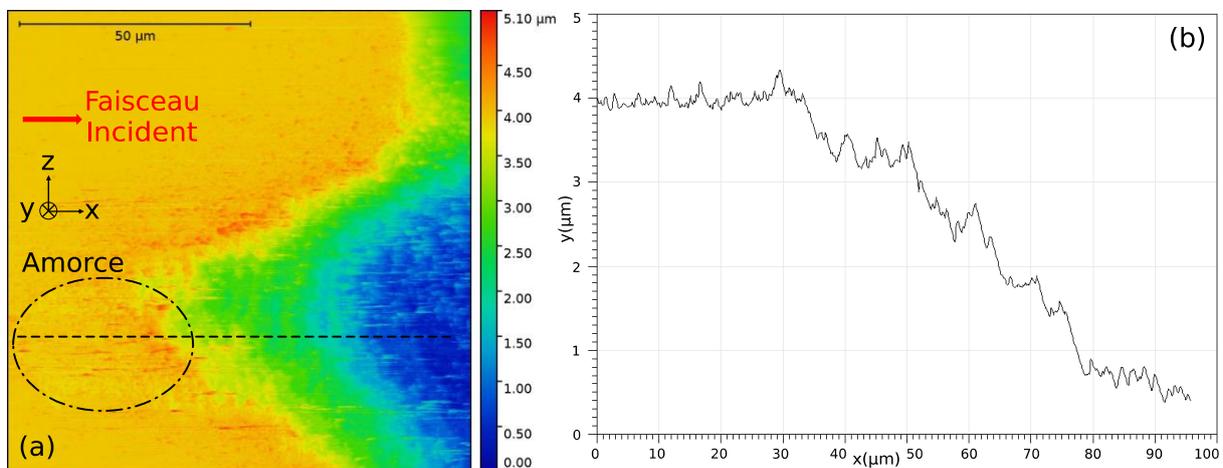


Figure 4-10 : Mesure AFM sur une zone de  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  de la profondeur d'un dommage ayant cru après avoir suivi une séquence de croissance où l'irradiation s'est faite en polarisation P à 60% du LIDT ( $1,24 \text{ J/cm}^2$ ). Une profondeur d'environ  $3,5 \mu\text{m}$  est mesurée ce qui signifie que le substrat n'a pas été atteint (l'empilement a une épaisseur de  $5,16 \mu\text{m}$ ).

Les morphologies propres à chaque polarisation découlent en grande partie du fait que la croissance en surface se produit visiblement selon une direction privilégiée propre à chaque polarisation. En reprenant l'orientation des Figures 4-8 et 4-9, on constate en effet que la croissance a lieu préférentiellement dans la direction horizontale pour la polarisation S et dans la direction verticale pour la polarisation P. De manière générale, nous constatons que la croissance en surface a lieu préférentiellement dans une direction orthogonale à celle de la polarisation. Nous illustrons ces directions privilégiées de croissance en surface dans la Figure 4-11 où sont rassemblés deux exemples d'observation MEB de dommages ayant tout juste commencé à croître.

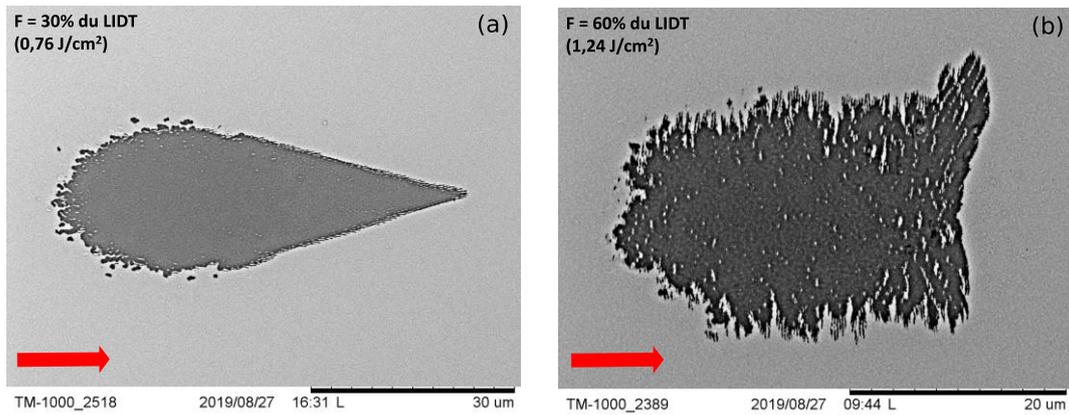


Figure 4-11 : Illustration des directions privilégiées de croissance en surface selon la polarisation. Dans les deux cas, le faisceau top-hat arrive de la gauche (flèches rouges) et irradie un dommage initial identique (Figure 4-3). Le cas (a) correspond à la polarisation S et le cas (b) à celui de la polarisation P. Les fluences sont précisées en haut à gauche de chaque image.

**Remarque :** nous avons observé les mêmes morphologies de dommages en croissance pour les polarisations P et S avec un angle d'incidence de 30°.

Nous ferons enfin remarquer que le cas de la polarisation P dans la Figure 4-11 est à comparer directement avec celui dans la Figure 4-8 correspondant à une fluence d'irradiation à 60% du LIDT où la croissance a eu lieu significativement. Ces deux dommages ont en effet été irradiés consécutivement car ils correspondent à deux séquences de croissance réalisées à la suite dans les mêmes conditions pour assurer la répétabilité des études. Cela illustre l'aspect déterministe du seuil de croissance ; seules les légères fluctuations en fluence du faisceau et le fait que les amorces ne soient pas rigoureusement les mêmes au niveau de leur contour en surface peuvent expliquer qu'à conditions identiques, la croissance ait à peine eut lieu dans un cas (Figure 4-11) et plus nettement dans l'autre (Figure 4-8).

## IV.B.4 Impact de l'angle d'incidence

Les deux sections précédentes ont notamment montré que le seuil relatif de croissance varie avec l'angle d'incidence en polarisation P. Nous complétons ici ce résultat dans le cas de la polarisation S qui nous sera plus utile en vue de l'étude numérique présentée en section IV.C.

Pour ces expériences de croissance, la durée d'impulsion est de 0,8 ps et les tailles des amorces de 30  $\mu\text{m}$  à 30° d'incidence et de 40  $\mu\text{m}$  à 45° d'incidence. Les résultats sont donnés en Figure 4-12.

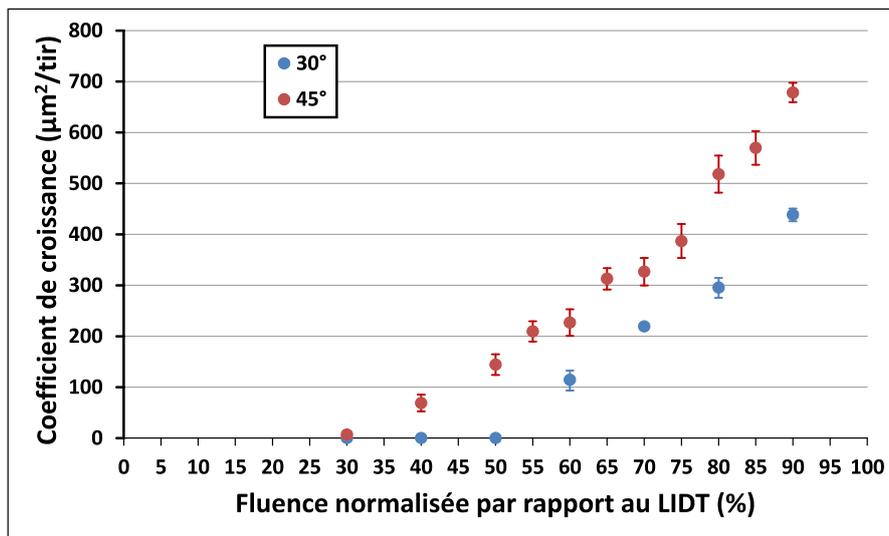


Figure 4-12 : Évolution du coefficient de croissance en polarisation S à 30° et 45° d'incidence selon des fluences croissantes (normalisées au LIDT). Les données à 45° d'incidence sont les mêmes que dans la Figure 4-7.

Nous constatons de nouveau que le seuil relatif de croissance varie avec l'angle d'incidence. Le paramétrage selon une droite affine du coefficient de croissance avec la fluence relative (les coefficients de corrélation sont respectivement de 0,99 et de 0,96 à 30° et 45° d'incidence) permettent de déterminer des seuils relatifs de croissance à 50% du LIDT à 30° d'incidence et à 35% du LIDT à 45° d'incidence (résultat de la section précédente).

Ces seuils relatifs de croissance en polarisation S vont nous servir de fil conducteur pour illustrer le rôle des modulations de champ à partir de calculs numériques d'EFI réalisés sous COMSOL à partir d'une structure adaptée à notre problématique.

## IV.C Étude paramétrique numérique

### IV.C.1 Modèle COMSOL 2D

Nous avons dans un premier temps effectué les calculs d'EFI dans un modèle à deux dimensions (depuis la version COMSOL 5.4 et le module « Wave-Optics »). Un modèle à trois dimensions a également été utilisé et est présenté en section IV.C.2.

#### IV.C.1.a Description et validité du modèle

Nous avons d'abord reconstitué (Figure 4-13) le type de miroir utilisé pour les expériences de croissance présentées dans ce chapitre à partir de ses caractéristiques (structure, nature, épaisseur et indices des matériaux constitutifs) qui ont été données en section IV.A.1.

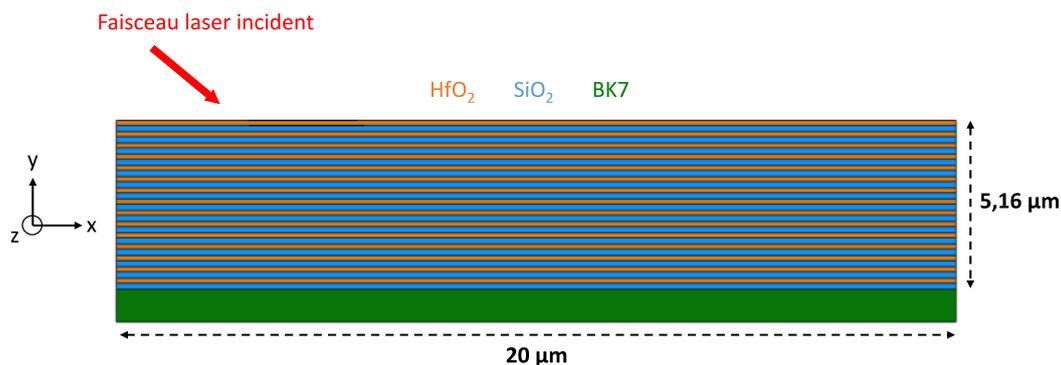


Figure 4-13 : Miroir d'étude pour la croissance des dommages lasers reconstitué numériquement sous COMSOL (en deux dimensions). L'épaisseur est bien identique à celle des miroirs utilisés expérimentalement mais la largeur a été volontairement diminuée afin de diminuer les temps de calculs (cela n'a aucune conséquence sur la validité des calculs d'EFI comme nous le montrons ci-après). Comme indiqué par le code couleur, les couches de  $\text{HfO}_2$  apparaissent en orange, celles en  $\text{SiO}_2$  en bleu et le substrat en BK7 en vert. Enfin, le faisceau incident est considéré comme une onde plane dans ce modèle 2D.

Dans ce modèle 2D, le faisceau est assimilé à une onde plane i.e. à profil spatial homogène ce qui revient à un faisceau top-hat idéal. Les conditions d'irradiation dans ce modèle numérique sont donc très similaires à celles des expériences. Les conditions aux limites sont définies selon Y par des ports d'entrée (au niveau de la première interface air/ $\text{HfO}_2$ ) et de sortie (au niveau de l'interface  $\text{SiO}_2/\text{BK7}$ ) et selon X par une condition de périodicité de type Floquet avec un déphasage en X.

COMSOL s'appuyant sur la résolution des équations par la méthode des éléments finis, un compromis doit être trouvé pour le maillage des couches du miroir afin que les équations de Maxwell, qui nous concernent ici, soient convenablement résolues sans trop alourdir les temps de calculs. Étant donné la relative simplicité de la structure interférentielle étudiée dans notre cas, nous avons pu appliquer un maillage assez fin avec des tailles de cellule de taille  $\lambda/20$ ,  $\lambda$  étant la longueur d'onde de l'onde plane incidente (1054 nm ici), pour des temps de calculs n'excédant pas la dizaine de minutes.

La Figure 4-14 donne un exemple typique de calcul de répartition de l'EFI dans ce miroir à partir de ce modèle 2D (suivant une coupe selon Y dans la Figure 4-13).

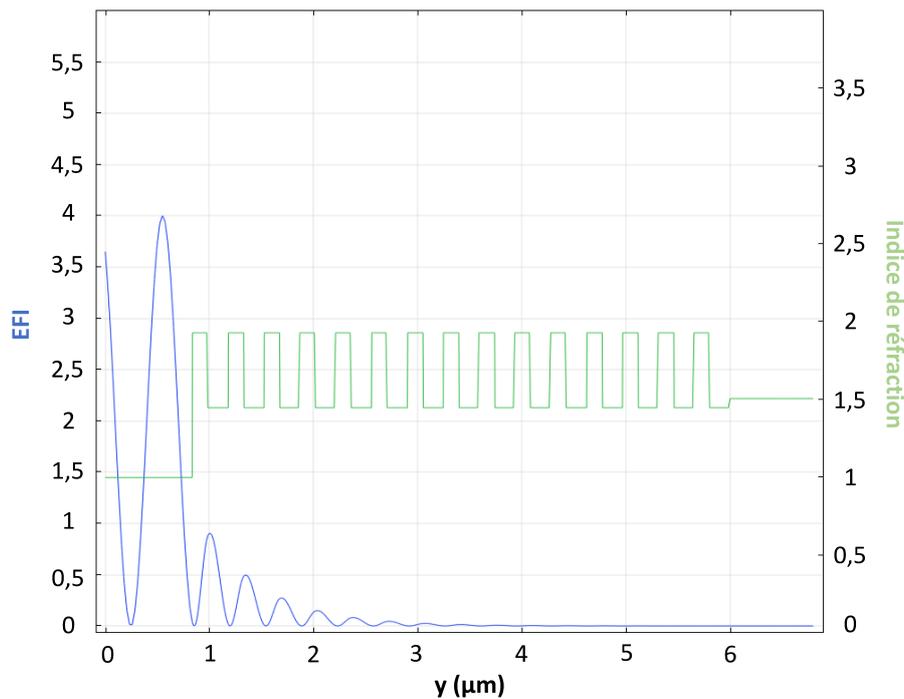


Figure 4-14 : Exemple de calcul d'EFI (polarisation S et 30° d'incidence) dans le miroir modèle donné en Figure 4-13. La courbe bleue correspond à l'évolution de l'EFI selon la profondeur  $y$  dans le miroir (les valeurs d'EFI sont données sur l'axe des ordonnées à gauche) et la courbe verte représente l'évolution de l'indice optique selon la profondeur  $y$  (dont les valeurs sont à lire sur l'axe des ordonnées à droite) afin de visualiser les différentes couches constitutives du miroir.

Afin de vérifier la validité des calculs de modulations du champ électrique menés sur ce modèle, nous avons comparé les répartitions d'EFI obtenues sous COMSOL avec celles obtenues via TfCalc (données en Figure 4-1). Comme l'illustre le cas de la Figure 4-14, correspondant à celui de la Figure 4-1(a) (angle d'incidence de 30° et polarisation S), les calculs d'EFI sous le modèle COMSOL 2D sont identiques à ceux fournis par TfCalc. Nous synthétisons ce comparatif dans le tableau 4-2 à travers les valeurs d'EFI<sub>max</sub> obtenues via les deux logiciels pour les configurations d'intérêt (angles d'incidence de 30° et 45°, polarisations P et S).

EFI <sub>max</sub>	AOI 30°				AOI 45°			
	Polarisation P		Polarisation S		Polarisation P		Polarisation S	
	TfCalc	COMSOL	TfCalc	COMSOL	TfCalc	COMSOL	TfCalc	COMSOL
HfO <sub>2</sub>	1,02	1,02	0,88	0,88	0,93	0,94	0,62	0,62
SiO <sub>2</sub>	1,08	1,06	0,92	0,90	0,92	0,91	0,62	0,61

Tableau 4-2 : Comparatif des valeurs d'EFI<sub>max</sub> obtenues avec COMSOL et TfCalc pour le même miroir (employé pour les études de croissance).

Les très légères différences (au plus 1%) parfois visibles entre les deux logiciels s'expliquent par les maillages de calculs différents appliqués par les logiciels selon la profondeur dans le miroir (TfCalc étant le plus précis avec un pas d'environ 4 nm selon la profondeur du miroir).

#### IV.C.1.b Calculs numériques d'EFI et confrontation aux expériences

Nous intéressant en particulier au seuil de croissance et aux directions privilégiées de croissance en surface visibles dès que les dommages commencent à croître, nous avons alors reconstitué le miroir d'étude en y introduisant cette fois une amorce (Figure 4-15) de même profondeur que celles utilisées expérimentalement (150 nm, voir Figure 4-4, soit selon l'épaisseur de la première couche irradiée faite de  $\text{HfO}_2$ ). La géométrie étant toujours 2D, l'invariance selon Z est toujours valable et l'amorce constitue ainsi dans ce cas une « tranchée » infiniment longue selon Z.

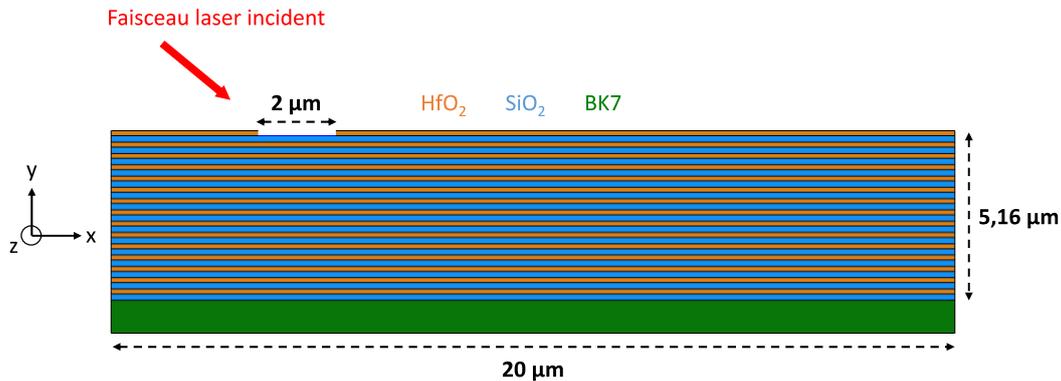


Figure 4-15 : Miroir d'étude identique à celui de la Figure 4-13 dans lequel a été introduit une amorce sur sa première couche irradiée faite de  $\text{HfO}_2$ . L'amorce fait 150 nm de profondeur (il s'agit de la profondeur de toutes les amorces employées pour les études de croissance de ce chapitre, voir Figure 4-4). La dimension selon X de l'amorce a été adaptée à celle du miroir modèle (cela n'impacte pas les calculs d'EFI). Aussi, l'amorce a été volontairement placée sur la gauche car le faisceau incident (onde plane) est supposé venir de gauche (cela n'impacte pas non plus les calculs d'EFI).

Le calcul des modulations du champ électrique dans une telle structure se fait en deux temps. Il a en effet été montré [97] que la répartition du champ dans une structure contenant un défaut peut se calculer à partir de la répartition du champ dans la structure sans défaut qui est ensuite utilisée comme un terme source dans la deuxième partie du calcul avec le défaut. Également, le miroir endommagé est entouré de couches dites PML (Perfect Matched Layer) qui sont absorbantes afin d'éviter les phénomènes de réflexion en bordure du miroir.

Nous avons alors calculé la répartition des modulations du champ électrique au sein de cette structure endommagée pour l'ensemble des configurations expérimentales utilisées pour les expériences de croissance réalisées durant cette thèse à savoir un angle d'incidence de  $30^\circ$  ou  $45^\circ$  avec un faisceau polarisé P ou S. La Figure 4-16 rassemble les résultats obtenus pour ces quatre configurations (afin de visualiser plus facilement les résultats, nous avons réduit la fenêtre de représentation autour de l'amorce qui est la région d'intérêt).

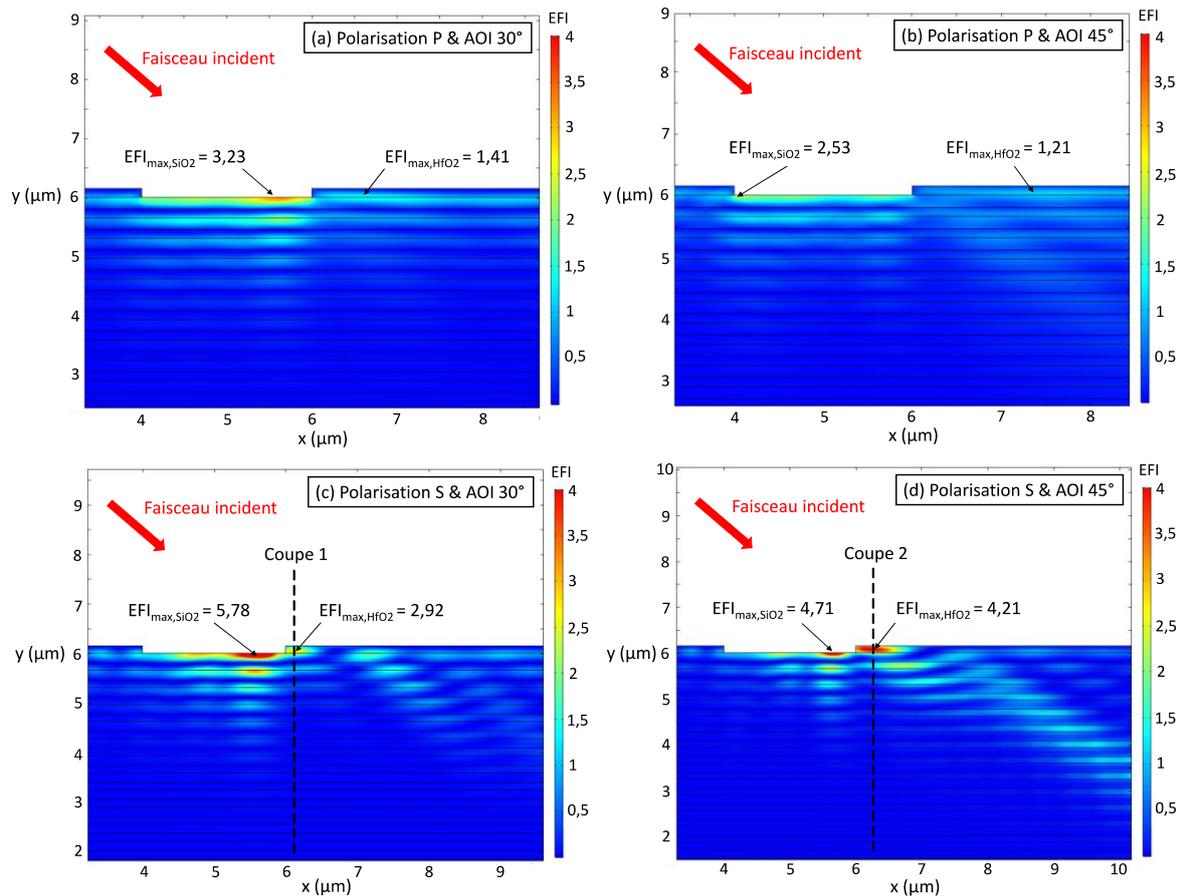


Figure 4-16 : Quatre exemples de répartition de l'EFI calculée avec COMSOL (module RF) autour de la structure endommagée modèle (miroir + amorce). Le faisceau incident arrive toujours de la gauche. Cas (a) : faisceau polarisé P avec une incidence de 30°. Cas (b) : faisceau polarisé P avec une incidence de 45°. Cas (c) : faisceau polarisé S avec une incidence de 30°. Cas (d) : faisceau polarisé S avec une incidence de 45°. Les coupes 1 et 2 pour les cas (c) et (d) sont représentées graphiquement en Figure 4-18 et servent à la discussion (menée plus loin) autour du seuil de croissance. Les valeurs maximales d'EFI sont également données pour les matériaux HfO<sub>2</sub> et SiO<sub>2</sub> des deux premières couches.

Dans tous les cas, nous remarquons que les modulations de champ sont plus importantes au niveau de l'amorce que dans le reste du miroir. La localisation des plus fortes modulations varie cependant selon l'angle d'incidence et surtout la polarisation. Nous remarquons en effet qu'avec la polarisation S, à 30° comme à 45° d'incidence, les plus fortes modulations se situent du côté opposé à l'arrivée du faisceau d'une part à l'interface HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> et d'autre part au sein de la couche HfO<sub>2</sub> en surface tout juste à proximité du bord de l'amorce. Cette dernière zone n'est en revanche pas source de fortes modulations avec la polarisation P avec laquelle seule l'interface HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> est sujette à un renforcement du champ électrique (à 30° plus qu'à 45° d'incidence).

Nous avons rappelé au premier chapitre avec l'équation 1-8 le lien fondamental existant entre le phénomène d'endommagement laser d'un matériau diélectrique et la plus haute modulation de champ présente dans ce matériau. Plus précisément, ce lien renseigne à la fois sur la localisation de l'endommagement s'il doit avoir lieu et sur le niveau de fluence nécessaire pour que cet endommagement ait lieu. Nous allons suivre ce lien pour interpréter les expériences de croissance des dommages effectuées durant cette thèse.

**Direction de croissance en surface :** les résultats présentés en Figure 4-16 permettent d'expliquer la direction privilégiée de croissance en surface constatée expérimentalement avec la polarisation S. En effet, comme illustré en Figure 4-11(a), l'amorce commence dans ce cas à croître depuis son côté opposé à l'arrivée du faisceau et surtout selon une direction en surface dans le prolongement de l'arrivée du faisceau (selon X dans la Figure 4-15). Or, la plus forte surintensification du champ dans la couche en surface de  $\text{HfO}_2$  se trouve précisément du côté de l'amorce opposé à l'arrivée du faisceau (à  $30^\circ$  comme à  $45^\circ$  d'incidence). Concernant la polarisation P, ce modèle 2D permet seulement de confirmer que la direction selon X n'est pas celle où la croissance a d'abord lieu car aucune surintensification notable n'est visible dans la couche en surface selon cette direction (nous reviendrons sur ce point lorsque nous aborderons le modèle en trois dimensions).

**Croissance en profondeur :** quels que soient la polarisation et l'angle d'incidence, de fortes surintensifications sont visibles au niveau de l'interface  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  surtout du côté opposé à l'arrivée du faisceau (hormis le cas à  $45^\circ$  d'incidence en polarisation P où elles sont assez homogènes) ce qui préfigure bien de la croissance potentielle en profondeur qui a bien été systématiquement constatée expérimentalement dès que le seuil de croissance est franchi (Figures 4-8 à 4-10). Il est également intéressant de constater que les différences de surintensifications obtenues à  $45^\circ$  entre les polarisations P et S expliquent qualitativement la sévérité de la pente du dommage en profondeur. Cette dernière est en effet bien plus marquée en polarisation S qu'en polarisation P (voir Figure 4-17 ci-dessous) ce qui est cohérent avec les niveaux de surintensifications visibles pour les cas (b) et (d) en Figure 4-16 (nous quantifions cet aspect un peu plus loin).

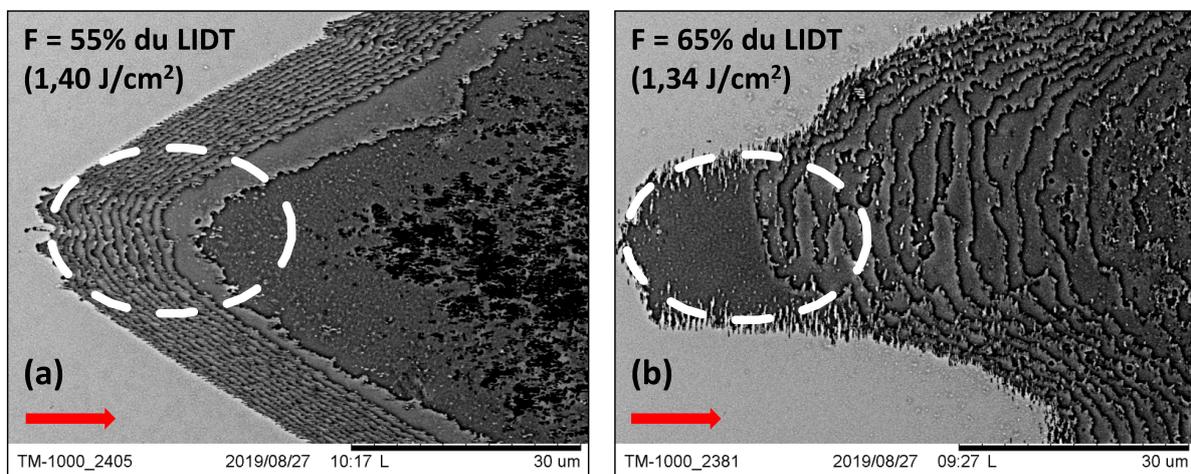


Figure 4-17 : Illustration de la différence de comportement en termes de croissance en profondeur selon la polarisation. (a) Cas de la polarisation S. (b) Cas de la polarisation P. L'amorce initiale est repérée en blanc. La direction du faisceau incident est repérée avec une flèche rouge. Les fluences d'irradiation sont indiquées en haut à gauche ; nous avons représenté deux cas à fluence absolue proche pour juger au mieux de l'impact de la polarisation. Il est bien visible que la croissance en profondeur est plus marquée en polarisation S qu'en P.

**Seuil de croissance :** nous allons ici d'abord nous concentrer sur le cas de la polarisation S car comme nous l'avons vu juste précédemment, le modèle 2D employé permet de cibler la direction privilégiée de croissance en surface uniquement pour cette polarisation. Il est alors intéressant de quantifier les niveaux d'EFI atteints à  $30^\circ$  et  $45^\circ$  d'incidence dans la couche  $\text{HfO}_2$  en surface dans la zone de plus forte surintensification. À cet effet ont été tracées dans la Figure 4-16 les coupes appropriées selon l'axe Oz passant par les plus hautes valeurs d'EFI. Les

représentations graphiques correspondantes sont données ci-dessous en Figure 4-18 où nous faisons également apparaître la répartition de référence de l'EFI dans le miroir vierge (ces dernières ayant été initialement données en Figure 4-1).

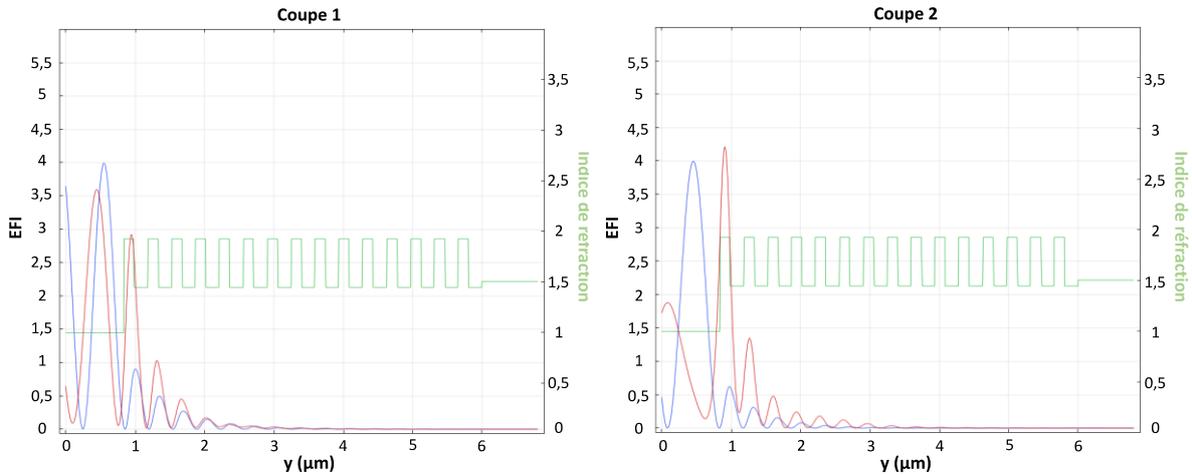


Figure 4-18 : Représentation graphique des coupes visibles en Figure 4-16 dont les courbes correspondantes d'évolution de l'EFI sont en rouge (à lire sur l'axe des ordonnées à gauche de chaque image). Sont représentées en bleu pour comparaison les évolutions de l'EFI en l'absence d'amorce. La courbe verte représente l'évolution de l'indice optique afin de visualiser l'empilement (à lire sur l'axe des ordonnées à droite de chaque image). La coupe 1 correspond au cas d'une incidence de 30° en polarisation S et la coupe 2 d'une incidence de 45° toujours en polarisation S.

La Figure 4-18 indique clairement que les modulations du champ électrique sont bien plus importantes en présence de l'amorce qu'en son absence. Comme indiqué en Figure 4-16, les valeurs maximales d'EFI sont de 2,92 et 4,21 à respectivement 30° et 45° d'incidence.

Nous rappelons ici l'équation 1-8 présentée au premier chapitre :  $F_{int} = LIDT \times EFI_{max}$ . Un des intérêts de cette équation est de faire apparaître  $F_{int}$ , la fluence intrinsèque, grandeur propre à tout matériau diélectrique et surtout indépendante de la configuration expérimentale utilisée pour endommager ce matériau. Cette grandeur permet ainsi de déterminer le seuil d'endommagement de tout composant diélectrique à partir de la plus haute valeur de modulation de champ à laquelle il est soumis. Très souvent, l'objectif est de déterminer le seuil d'endommagement dit intrinsèque de ce composant, celui qui causera l'apparition d'un dommage dans le matériau vierge. Dans notre cas, il s'agit de déterminer le seuil de croissance d'un dommage déjà existant. Cela ne change pas le fait qu'il faille pour cela toujours considérer la partie encore non endommagée de ce composant ce qui justifie de nouveau l'emploi de l'équation 1-8 rappelée ci-dessus. À matériau donné caractérisé par sa fluence intrinsèque  $F_{int}$ , on peut alors écrire :

$$F_{int} = LIDT \times EFI_{max} = LIDT_c \times EFI_{max_c}$$

Où  $LIDT$  et  $LIDT_c$  sont respectivement les seuils d'endommagement du matériau en l'absence et en présence d'un dommage pour une configuration expérimentale donnée et  $EFI_{max}$  et  $EFI_{max_c}$  les valeurs maximales correspondantes de modulation du champ électrique.

On a donc :

$$LIDT_c = LIDT \times \frac{EFI_{max}}{EFI_{max_c}} = \frac{F_{int}}{EFI_{max_c}}$$

Équation 4-2 : Expression à partir de l'équation 1-8 pour une configuration expérimentale donnée (angle d'incidence et polarisation) du seuil de croissance  $LIDT_c$  pour un dommage donné à la surface d'un matériau diélectrique donné de seuil intrinsèque  $F_{int}$  et dont le seuil d'endommagement en l'absence de dommage est  $LIDT$  dans la configuration expérimentale considérée.  $EFI_{max}$  est la valeur maximale de l'EFI dans le matériau considéré en l'absence de tout dommage et  $EFI_{max_c}$  celle engendré par le dommage considéré.

L'équation 4-2 indique notamment qu'un dommage donné croîtra d'autant plus facilement qu'il génère de hautes modulations de champ à son voisinage. Elle permet aussi d'évaluer le seuil de croissance relatif (normalisé au  $LIDT$ ) de tout dommage comme le rapport de la plus forte modulation de champ en l'absence de ce dommage sur celle causée en présence et par la nature de ce dommage. Cette équation fait aussi plus généralement apparaître que le seuil de croissance, absolu comme relatif, dépend des modulations de champ.

Dans notre cas, en appliquant l'équation 4-2 au matériau  $HfO_2$  dans le cas de la polarisation S (à partir des valeurs maximales d'EFI données dans le tableau 4-1 pour ce matériau dans le miroir vierge d'une part et en Figure 4-16 pour ce matériau quand le miroir comporte une amorce d'autre part), nous trouvons des seuils relatifs de croissance à respectivement 30% et 15% du  $LIDT$  à 30° et 45° d'incidence. Expérimentalement, des valeurs de 50% et 35% ont été déterminées pour ces mêmes configurations (section IV.B.4) à l'aide du paramétrage linéaire du coefficient de croissance avec la fluence. Nous constatons donc que l'approche théorique basée sur l'équation 4-2 est d'une part qualitativement en accord avec les données issues des expériences mais qu'il subsiste par ailleurs un écart quantitativement parlant.

Nous estimons que ces écarts sont dus à trois éléments :

- Tout d'abord, il aurait fallu être plus résolu en fluence que nous ne l'avons été de manière à mieux cerner expérimentalement le seuil de croissance qui est déterministe (notre résolution a été de 5% la grande majorité du temps ; il faudrait une résolution plus faible de l'ordre de 2% ou 3% puis revenir à une résolution plus faible une fois le seuil dépassé). Une meilleure résolution en fluence aurait amélioré la précision entourant la détermination du seuil de croissance via le paramétrage linéaire.
- Deuxièmement, et cela va de pair avec le point précédent, il faudrait attribuer un coefficient de croissance non nul aux quelques cas où le seuil de croissance est tout juste dépassé même si les séquences de croissance correspondantes ne présentent pas de régime principal sur lequel nous nous sommes basés pour déterminer le coefficient de croissance.
- Enfin, il faudrait améliorer la résolution spatiale avec laquelle les séquences de croissance sont observées car cela permettrait de détecter plus fidèlement si croissance il y a et donc d'affiner la mesure du seuil de croissance (nous avons toujours travaillé avec la résolution maximale du microscope, d'environ 4  $\mu m$ ).

Tous les éléments évoqués ci-dessus affectent en définitif la précision du seuil de croissance déterminé via le paramétrage linéaire des données expérimentales. Afin d'illustrer la pertinence de l'équation 4-2 dans sa capacité à prédire le seuil de croissance, reprenons le cas de la polarisation S avec un angle d'incidence de 45° : le paramétrage linéaire indique un seuil

de croissance à 35% du LIDT. Or il est visible en Figure 4-11(a) que l'amorce irradiée à 30% du LIDT dans cette configuration a certes peu mais significativement évolué. Comme nous l'avons vu un peu plus haut, l'équation 4-2 prédit quant à elle un seuil de croissance à 15% du LIDT ce qui est donc entièrement en accord avec les observations expérimentales.

Cette équation présente également l'avantage d'expliquer qualitativement les dépendances temporelles observées expérimentalement autour du seuil de croissance à savoir :

- Le fait que le seuil de croissance absolu augmente avec la durée d'impulsion. En effet, étant donné que le LIDT d'un matériau diélectrique suit une certaine loi d'échelle temporelle en  $\tau^k$ , alors l'équation 4-2 implique directement que le LIDT<sub>c</sub> de tout dommage à la surface de ce matériau suit la même loi d'échelle temporelle.
- Le fait que le seuil relatif de croissance semble indépendant de la durée d'impulsion. En effet, cela revient à normaliser par rapport au LIDT dans l'équation 4-2 ce qui conduit à un seuil relatif de croissance uniquement défini par un quotient d'EFL, grandeur par définition indépendante de la durée d'impulsion.

Enfin, l'équation 4-2 permet aussi d'expliquer en quoi la croissance en profondeur semble plus marquée en polarisation S qu'en polarisation P (illustré en Figure 4-17). Il faut ici considérer la surintensification maximale au sein de la couche SiO<sub>2</sub> située sous la couche HfO<sub>2</sub> en surface comportant l'amorce. En appliquant comme précédemment l'équation 4-2 au matériau SiO<sub>2</sub> avec les valeurs d'EFL<sub>max</sub> concernées (voir tableau 4-1 et Figure 4-16), nous trouvons alors des seuils relatifs de croissance en profondeur à 13% du LIDT pour la polarisation S et à 47% du LIDT pour la polarisation P. Sachant qu'une fluence intrinsèque de 3,03 J/cm<sup>2</sup> a été déterminée pour le matériau SiO<sub>2</sub> dans ce miroir, cela revient à des seuils absolus de croissance de 0,64 J/cm<sup>2</sup> en polarisation S et 1,55 J/cm<sup>2</sup> en polarisation P. À fluence d'irradiation donnée, la croissance en profondeur sera ainsi plus marquée en polarisation S qu'en polarisation P.

Nous avons précédemment mentionné en quoi ce modèle COMSOL à deux dimensions ne permet pas de mener les analyses autour de la polarisation P concernant la direction privilégiée de croissance en surface pour cette polarisation. Ce modèle ne permet pas non plus d'être certain qu'il n'existe pas de surintensification dans la direction transverse à la fenêtre de calcul en polarisation S. Afin de répondre à l'ensemble de ces questions, nous avons développé un modèle à trois dimensions que nous présentons dans la section suivante.

## IV.C.2 Modèle COMSOL 3D

Le passage de deux à trois dimensions est extrêmement coûteux en termes de ressource mémoire nécessaire pour les calculs numériques. Pour des raisons de temps également, nous nous sommes ainsi limités à un miroir diélectrique HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> simplifié dans le sens où ses dimensions ont été réduites (volume de calcul de 5 × 5 × 5 μm<sup>3</sup>) et son nombre de couches a été réduit (six au lieu de trente). Néanmoins, cette structure à six couches est déposée sur un réflecteur parfait (condition sur la limite basse de conducteur électrique parfait). La Figure 4-19 illustre les calculs de champ effectués pour ce miroir en polarisation S et P pour un angle d'incidence de 45° en présence d'une amorce circulaire localisée dans la première couche irradiée (le diamètre est de 2 μm en polarisation S et de 1 μm en polarisation P). Le temps de calcul est à chaque fois d'une quinzaine d'heures environ (16 Go de RAM, 4 cœurs et processeur à 3,4 GHz).

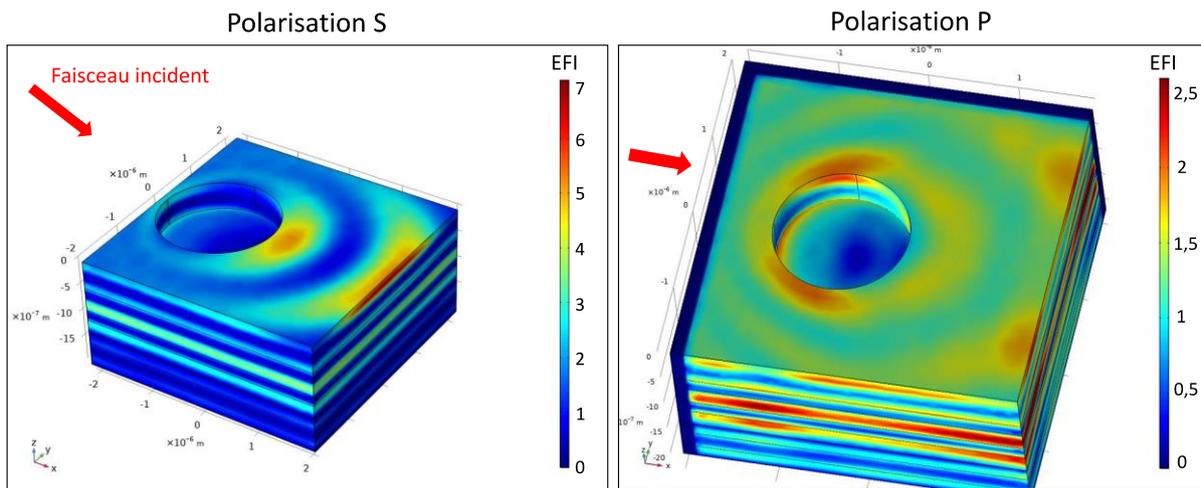


Figure 4-19 : Répartition des modulations de champ électrique autour d'un dommage localisé dans la première couche irradiée en surface d'un miroir simplifié HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>. L'image de gauche représente le cas d'un faisceau polarisé S et celle de droite d'un faisceau polarisé P. Le faisceau arrive dans les deux cas par la gauche (sens d'arrivée indiqué par les flèches rouges).

Dans le cas de la polarisation S, nous voyons clairement apparaître un renforcement du champ du côté de l'amorce diamétralement opposé à l'arrivée du faisceau, ce renforcement étant périodique et en forme d'arc de cercle centré sur l'amorce. Ceci confirme qualitativement la direction de croissance privilégiée en surface précédemment mise en évidence par le modèle à deux dimensions. Le recours à un modèle en trois dimensions permet surtout d'expliquer la direction privilégiée de croissance constatée pour un faisceau polarisé P, orthogonale à celle constatée pour la polarisation S. Ce modèle en trois dimensions permet ainsi d'expliquer, à travers les modulations de champ électrique causées par un dommage en surface, la direction dans laquelle ce dommage va commencer à croître selon la polarisation du faisceau qui l'irradie, cette direction étant orthogonale à la direction de la polarisation.

## IV.D Loi empirique de croissance

Nous rappelons ci-dessous, pour un dommage localisé dans la première couche irradiée des miroirs diélectriques considérés, la loi empirique (équation 4-1) établie à partir des expériences de croissance pour  $\beta$ , le coefficient de croissance en surface de ce dommage :

$$\beta(F, \tau) = \delta(\tau) \times [F - \text{LIDT}_c(\tau)] = c_1 \times \tau^{-k_1} \times (F - c_2 \times \tau^{k_2})$$

Où  $F$  est la fluence et  $\tau$  la durée d'impulsion.  $\delta$  est la pente avec laquelle varie le coefficient de croissance selon la fluence et  $\text{LIDT}_c$  est le seuil de croissance en surface du dommage.  $c_1$ ,  $c_2$ ,  $k_1$  et  $k_2$  sont des grandeurs positives ( $k_1$  et  $k_2$  étant adimensionnées).

Les résultats expérimentaux présentés en section IV.B.2 et IV.B.3 ont montré que  $\delta$  et  $\text{LIDT}_c$  (et donc les grandeurs  $c_1$  et  $c_2$ ) dépendent de l'angle d'incidence et de la polarisation. À partir du modèle COMSOL à deux dimensions, nous avons été en mesure de montrer en particulier que le seuil de croissance dépend plus généralement des modulations de champ électrique selon la relation suivante (équation 4-2 formulée en tenant également compte de la loi d'échelle temporelle du matériau vierge constituant la première couche irradiée) :

$$\text{LIDT}_c = \text{LIDT} \times \frac{\text{EFI}_{\text{max}}}{\text{EFI}_{\text{max}_c}} = \frac{F_{\text{int}}}{\text{EFI}_{\text{max}_c}} = \frac{A}{\text{EFI}_{\text{max}_c}} \times \tau^k$$

Où LIDT est le seuil d'endommagement du matériau en surface sans dommage et  $F_{\text{int}}$  sa fluence intrinsèque.  $\text{EFI}_{\text{max}}$  et  $\text{EFI}_{\text{max}_c}$  sont respectivement les plus hautes modulations de champ dans le matériau en l'absence et en présence du dommage.  $A$  est une constante positive et  $\tau$  est la durée d'impulsion.

L'équation 4-2 montre ainsi que le  $\text{LIDT}_c$  doit présenter la même loi d'échelle temporelle que le LIDT. Dans notre cas, nous avons obtenu des lois d'échelles différentes en  $\tau^{0,45}$  pour le  $\text{LIDT}_c$  et en  $\tau^{0,27}$  pour le LIDT. Cependant, nous avons déjà fait remarquer que l'imprécision est plus grande pour la loi d'échelle du  $\text{LIDT}_c$  du fait de l'imprécision sur la surface équivalente du faisceau top-hat utilisé.

Une première voie d'amélioration de la loi empirique proposée consisterait ainsi à établir plus précisément la dépendance temporelle du seuil de croissance (comme nous l'avons évoqué en section IV.B.2, cela passerait notamment par l'emploi d'un faisceau dont le profil spatial est connu avec grande précision mais aussi par un balayage plus large en durée d'impulsion et en fluence). Cela permettrait ainsi de confirmer ou d'infirmer que la loi d'échelle temporelle associée qui apparaît dans la loi empirique est identique à celle du LIDT. Si cela est confirmé, alors on aurait l'égalité  $c_2 = A / \text{EFI}_{\text{max}_c}$  ce qui signifie que le coefficient  $c_2$  pourrait alors être calculé pour toute configuration expérimentale du moment que sont connues la loi d'échelle temporelle du seuil intrinsèque du matériau en surface du miroir et la géométrie du dommage apparu en surface et s'apprêtant à croître (les modulations de champ qu'il provoque peuvent être calculées pour toute configuration expérimentale à l'aide de logiciels tel que COMSOL).

Une deuxième voie d'amélioration consisterait à également établir de manière plus précise la dépendance temporelle de la grandeur notée  $\delta$  pour le plus de configurations expérimentales possibles (prioritairement celles où le miroir sera employé si ce dernier vient à être installé sur chaîne). Cela permettrait d'une part de confirmer ou d'infirmer ce que suggère nos résultats à savoir que  $\delta$  suit une loi d'échelle temporelle inverse à celle du LIDT (nous avons établi avec une bonne précision une loi d'échelle temporelle en  $\tau^{-0,31}$  pour  $\delta$  là où une loi d'échelle en  $\tau^{0,27}$  a été établie pour le LIDT du même miroir). Si cela est confirmé, cela simplifierait l'expression de la loi empirique (du moment qu'il aurait aussi été confirmé que le seuil de croissance suit la même loi d'échelle temporelle que le LIDT). D'autre part, cela permettrait d'établir la valeur du coefficient  $c_1$  pour plusieurs configurations expérimentales. Nos résultats montrent en effet que ce coefficient varie avec la polarisation et l'angle d'incidence ce qui suggère fortement une dépendance selon les modulations de champ électrique. Néanmoins, un tel lien n'a pu être clairement établi dans notre cas car nous n'avons étudié la dépendance temporelle que dans une seule configuration (avec un faisceau polarisé P et une incidence de 30°). Déterminer le coefficient  $c_1$  pour différentes configurations expérimentales augmenterait les chances de relier ce coefficient à l'EFI de la même manière qu'a pu l'être le coefficient  $c_2$ .

## **IV.E Influence de la nature spatiale du faisceau sur le phénomène de croissance**

Les expériences de croissance des dommages lasers présentées dans ce chapitre ont été menées avec un faisceau top-hat, la volonté principale étant de se démarquer d'un faisceau gaussien dont la répartition en fluence est par définition hétérogène.

Tout d'abord, nous avons systématiquement constaté la présence d'un seuil de croissance inférieur au LIDT, un résultat également obtenu lors d'études précédentes de croissance avec un faisceau gaussien [13-14].

En termes de comportement en croissance, une fois le seuil de croissance dépassé, nous avons constaté un régime principal de croissance où il peut être fait l'approximation que la surface endommagée croît linéairement avec le nombre d'irradiations. Ce résultat a aussi été obtenu lors des études de croissance, précédemment citées, menées avec un faisceau gaussien.

Par ailleurs, nous remarquons avoir obtenu des coefficients de croissance en moyenne significativement plus élevés que ceux mesurés avec un faisceau gaussien (une différence de 200 à 300  $\mu\text{m}^2/\text{tir}$  est généralement constatée, voir les Figures 1-24, 1-26, 4-5 à 4-7 et 4-12) et ce pour des fluences d'irradiation similaires (il est difficile d'établir des comparaisons nettes mais les fluences sont toutes comprises entre 0,5  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 4  $\text{J}/\text{cm}^2$ ). Des expériences supplémentaires de croissance sont à venir sur DERIC pour montrer en particulier à quel point ces différences proviennent de la nature du profil spatial et/ou de la taille du faisceau (faisceau top-hat carré de 150  $\mu\text{m}$  de côté dans notre cas et de 65  $\mu\text{m}$  de diamètre à 1/e pour le faisceau gaussien utilisé dans les expériences de croissance référencées en [13-14]).

Enfin, nous ferons remarquer que l'emploi d'un faisceau top-hat facilite grandement le lien pouvant être fait entre le phénomène d'endommagement laser (et en particulier celui de la croissance des dommages) et les modulations de champ électrique. En effet, la répartition en fluence étant homogène pour un tel faisceau, l'endommagement est alors censé toujours être le reflet de la répartition des modulations de champ. Cette correspondance est déjà fortement suggérée par les morphologies de dommages que nous avons obtenues expérimentalement (Figures 4-8 et 4-9) et les calculs numériques 3D d'EFI que nous avons réalisés sous COMSOL (visibles en Figure 4-19).

## IV.F Saturation des dommages en croissance

Comme détaillé en section IV.A.3, la croissance d'un dommage passe par trois régimes : un régime initial suivi d'un régime principal puis enfin d'un régime de saturation. Pour des raisons également explicitées en section IV.A.3, nous avons fait le choix d'analyser le phénomène de croissance en considérant seulement le régime principal. Comme l'ont montré les études tout au long de ce chapitre, de nombreux résultats ont été obtenus via cette approche bien qu'elle soit par nature incomplète.

Ainsi, nous souhaitons ici compléter l'étude de la croissance des dommages à partir de plusieurs considérations et observations autour du régime de saturation.

La présence de ce régime est habituellement attribuée à la taille finie du faisceau incident qui, en tenant compte de l'angle d'incidence, définit une surface maximale pour la surface endommagée de tout dommage, en particulier de tout dommage croissant. Cette interprétation géométrique du phénomène de saturation en croissance implique qu'une fois l'angle d'incidence fixé, la surface endommagée doit alors toujours tendre asymptotiquement vers cette surface maximale, donc indépendamment de toute autre grandeur telle que la polarisation ou la fluence par exemple. Or, nous n'avons jamais observé un tel comportement comme cela est reporté en Figure 4-20 pour des incidences de 30° et 45°.

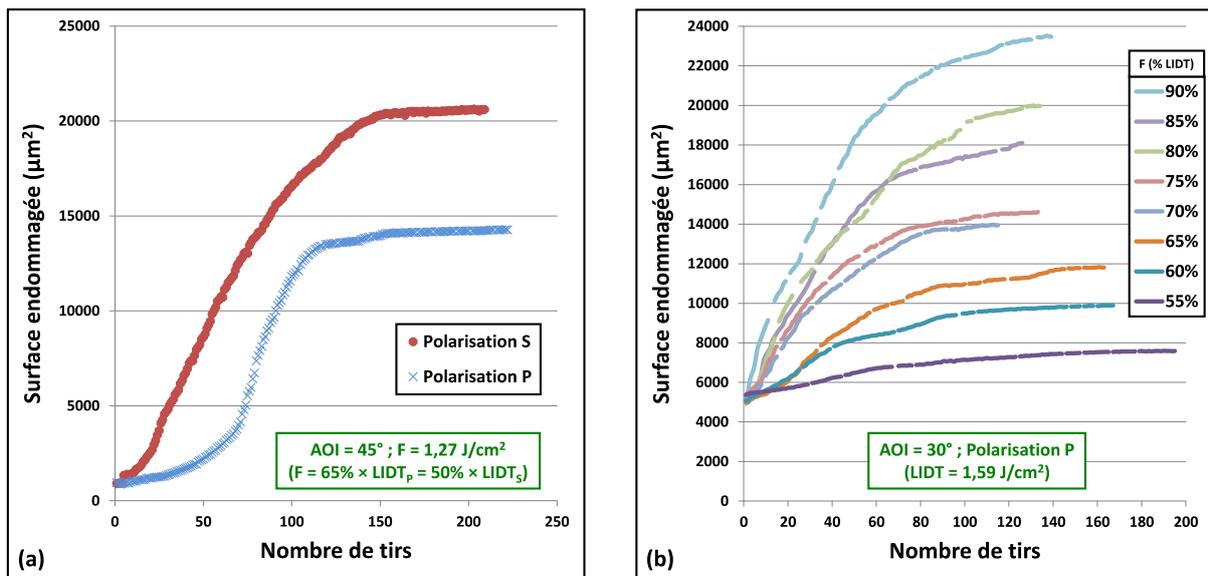


Figure 4-20 : Évolution de la surface endommagée en fonction du nombre de tirs pour (a) un angle d'incidence AOI de 45°, les polarisations S et P et une fluence  $F$  de 1,27 J/cm<sup>2</sup> (correspondant à respectivement 50% et 65% des LIDTs en polarisation S et P) et pour (b) un angle d'incidence de 30°, une polarisation P et plusieurs fluences inférieures au LIDT. Les amorces utilisées en (b) sont plus grandes que celles utilisées en (a), c'est pourquoi les surfaces initiales sont plus grandes en (b) qu'en (a).

Le constat s'impose que la surface de saturation varie avec la polarisation et la fluence (ce qui est déjà clairement visible dans les Figures 4-8 et 4-9).

Remarque : nous définissons la surface de saturation comme la surface atteinte à la fin du régime de saturation. Nous ne considérerons que cette surface dans cette section mais nous ferons remarquer que l'on pourrait aussi définir une surface « d'inflexion » marquant le passage du régime principal au régime de saturation.

Nous remarquons de plus que la surface de saturation est toujours nettement inférieure à la surface maximale précédemment évoquée correspondant à celle du faisceau sur échantillon. La valeur de cette surface varie avec l'angle d'incidence mais aussi selon la taille de faisceau prise pour référence à incidence nulle : pour un faisceau gaussien, on peut par exemple considérer la surface à  $1/e$  ou celle à  $1/e^2$ . Dans le cas du faisceau top-hat, il est possible de considérer soit la zone quasiment top-hat (carré de 150  $\mu\text{m}$  de côté, voir Figure 2-20) soit la tache centrale (carré de 230  $\mu\text{m}$  de côté, voir aussi Figure 2-20) soit la surface équivalente (carré de  $250 \pm 10 \mu\text{m}$  de côté étant donné que la surface équivalente est de  $(6,3 \pm 0,5) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ , voir section II.A.3). Le tableau 4-3 rassemble les valeurs possibles (arrondies) de la surface du faisceau sur échantillon selon ces trois dernières considérations et pour des angles d'incidence de 30° et 45° :

Surface du faisceau sur échantillon en $\mu\text{m}^2$ (surface maximale pour tout dommage)		Côté du carré top-hat considéré ( $\mu\text{m}$ )		
		150	230	250
AOI	30°	<b>26 000</b>	<b>61 000</b>	<b>73 000</b>
	45°	<b>32 000</b>	<b>75 000</b>	<b>89 000</b>

Tableau 4-3 : Différentes valeurs (arrondies) de la surface du faisceau top-hat sur échantillon (surface maximale pouvant être atteinte par un dommage) selon l'angle d'incidence (AOI) et le carré top-hat considéré à incidence nulle : carré de 150  $\mu\text{m}$  de côté (partie quasiment top-hat du faisceau), de 230  $\mu\text{m}$  de côté (tache centrale du faisceau) ou de 250  $\mu\text{m}$  de côté (carré de même surface équivalente).

Les surfaces de saturation visibles en Figure 4-20 sont ainsi bien inférieures aux surfaces possibles du faisceau sur échantillon répertoriées dans le tableau 4-3, même en considérant les plus petites d'entre elles (26 000 et 32 000  $\mu\text{m}^2$  à respectivement 30° et 45° d'incidence).

La présence du régime de saturation ne peut donc pas être expliquée seulement à travers des considérations géométriques autour de la surface du faisceau sur échantillon qui ne constitue en réalité que la plus haute valeur possible pour la surface de saturation. Nous estimons très probable que les différentes valeurs prises par la surface de saturation selon la polarisation et la fluence découlent des modulations de champ électrique (l'angle d'incidence aurait ainsi une influence double, à la fois au niveau de la répartition de l'EFI et au niveau de l'étalement géométrique du faisceau en surface). Le phénomène de saturation en croissance s'explique ainsi très probablement via les modulations du champ électrique, le tout dans les limites géométriques du faisceau sur échantillon. Des calculs numériques d'EFI en 3D seraient nécessaires pour le confirmer.

Enfin, la saturation des dommages en croissance ouvre des perspectives quant à l'énergie disponible sur cible dans les installations lasers de puissance. En effet, au lieu de fonctionner à une fluence inférieure au seuil de croissance, ces installations pourraient fonctionner à une fluence supérieure à ce seuil ce qui causerait de fait une croissance des dommages mais une croissance « acceptable » car limitée par saturation. Il conviendrait ainsi d'une part d'approfondir les études à propos de la saturation des dommages en croissance afin de mieux quantifier par exemple le ratio « surface de saturation/surface du faisceau sur échantillon » en fonction de la fluence et d'autre part de discuter de ce qui serait considéré comme une croissance (ratio) « acceptable » sur chaîne du point de vue des performances des composants optiques qu'il faut compromettre le moins possible.

## Conclusion du Chapitre IV

Dans ce chapitre, nous avons présenté les études concernant le phénomène de croissance des dommages lasers en régime d'impulsions courtes pour des miroirs diélectriques. Ces études ont été menées avec un faisceau spatialement top-hat et ont confirmé les principaux résultats obtenus avec un faisceau spatialement gaussien [13-14] à savoir qu'il existe une fluence seuil de croissance inférieure au LIDT et qu'il peut être fait l'approximation que la surface d'un dommage croît linéairement avec le nombre d'irradiations dès lors que le seuil de croissance est franchi. Le phénomène de croissance est alors caractérisé par un coefficient linéaire de croissance qui augmente avec la fluence d'irradiation. Également, nos études ont confirmé le rôle prépondérant des modulations du champ électrique dans la croissance des dommages.

Une étude paramétrique expérimentale nous a permis d'établir que le coefficient de croissance évolue lui-même linéairement avec la fluence ce qui nous a amené à établir une loi empirique (équation 4-1) pour ce coefficient qui fait également apparaître une dépendance temporelle avec la durée d'impulsion proche de celle constatée pour le miroir vierge. Des études supplémentaires restent nécessaires pour affiner ce résultat. Cette loi empirique fait également apparaître le seuil de croissance dont nous avons pu établir une expression (équation 4-2) en accord avec les résultats expérimentaux à l'aide d'un modèle numérique en deux dimensions permettant de calculer les modulations de champ présentes dans un miroir diélectrique comportant un dommage initial (amorçage) dans sa couche surfacique. Enfin, ce modèle en deux dimensions a été accompagné d'un modèle en trois dimensions qui ont tous deux permis d'expliquer les directions privilégiées de croissance en surface observées en polarisation S et P : ces directions sont à chaque fois orthogonales à la direction de polarisation et découlent de l'emplacement des plus fortes modulations de champ.

## Conclusion générale et perspectives

Durant cette thèse, nous nous sommes attachés à étudier la dépendance temporelle du phénomène d'endommagement laser dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde pour des miroirs diélectriques similaires à ceux employés sur PETAL, laser de puissance travaillant dans ces régimes temporels et installé sur le centre du CEA-CESTA. Pour ce faire, nous nous sommes appuyés sur le banc d'endommagement laser DERIC, installé sur le même centre. Nos travaux ont permis d'apporter un éclairage important sur la thématique de la dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque, de nouveaux éléments de réponse concernant celle de l'endommagement sur défauts et de premiers éléments de réponse sur celle de la croissance des dommages. Nous avons aussi été à l'initiative d'une inter-comparaison avec d'autres installations lasers travaillant avec des impulsions courtes qui a permis de renforcer la métrologie mise en place sur DERIC. Enfin, nos travaux ont aussi confirmé que l'endommagement laser de matériaux diélectriques dépend fortement de la répartition des modulations du champ électrique présentes au sein de ces matériaux et ce, pour chaque type de mécanisme d'endommagement en jeu (intrinsèque/défaut/croissance).

### Métrologie de l'endommagement laser en régime sub-picoseconde

Résultats obtenus :

- Étant donné le caractère déterministe de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes, il est attendu un unique résultat de tenue au flux pour un composant donné à une durée d'impulsion donnée. Lors d'une inter-comparaison que nous avons initiée et supervisée, nous avons pourtant constaté que pour des échantillons identiques et des consignes de tests identiques, en particulier une durée d'impulsion de 0,8 ps, des valeurs de LIDT différentes ont été obtenues dans différents laboratoires de recherche employant des installations lasers travaillant en régime d'irradiations courtes. Nous avons mené des études complémentaires vis-à-vis des mesures obtenues sur DERIC qui n'ont pas permis de remettre en cause leur validité : en particulier, nous avons montré que DERIC n'est pas sujet au phénomène d'autofocalisation et que les valeurs de LIDT obtenues sont cohérentes avec celles calculées numériquement à l'aide du modèle que nous avons développé et validé lors de nos études sur l'endommagement intrinsèque prenant en compte tout le profil temporel des impulsions. Les écarts entre les participants restent inexplicables à ce jour mais nous avons identifié trois pistes potentielles :
  - 1) Le profil temporel des impulsions utilisées pour cette inter-comparaison n'est pas connu pour l'ensemble des participants. Or, nous avons montré via notre modèle numérique d'endommagement que plusieurs profils temporels de formes légèrement différentes et ayant des largeurs à mi-hauteurs (durées d'impulsion) proches de 0,8 ps engendrent des écarts de tenue au flux non négligeables.
  - 2) À part pour DERIC où il n'est pas problématique, le contraste temporel de tous les autres participants est inconnu. Or, il faut s'assurer que les impulsions utilisées ne

présentent pas de pré-impulsions trop intenses par rapport au pic principal car de telles impulsions secondaires peuvent pré-endommager les composants et donc fausser les valeurs de LIDT déterminées (en les diminuant).

- 3) Bien que les indices optiques des échantillons aient été déterminés avant envoi aux différents partenaires et que nous n'ayons pas constaté sur DERIC d'influence de l'environnement de test (air ambiant ou air sec), les échantillons n'ont d'une part pas été testés dès réception et n'ont d'autre part pas été de nouveau caractérisés au niveau de leurs indices optiques avant test. Nous ne pouvons donc pas formellement écarter tout soupçon de modification d'indice dû au vieillissement des échantillons ce qui est problématique car cette grandeur est cruciale pour le calcul des modulations du champ électrique servant à interpréter les résultats d'endommagement [98].

#### Perspectives :

- Les métrologies des différents partenaires bénéficieraient grandement d'une nouvelle inter-comparaison similaire à celle que nous avons supervisée en accentuant cette fois l'effort sur la mesure du profil temporel et du contraste temporel des impulsions employées par chaque participant et sur celle de l'indice optique avant test. Tout l'enjeu est de connaître le plus précisément possible les propriétés des impulsions et de l'échantillon lors du test d'endommagement. Tant que des écarts de tenue au flux subsisteront, même en prenant en compte les barres d'erreur, ce sera à priori le signe que la métrologie est insuffisante.

#### Dépendance temporelle de l'endommagement laser intrinsèque

#### Résultats obtenus :

- Nous avons montré que la durée d'impulsion estimée par autocorrélation ne suffit pas à expliquer la dépendance temporelle du seuil d'endommagement intrinsèque (LIDT) d'un miroir diélectrique dans les régimes sub-picoseconde et picoseconde (entre 0,8 ps et 3,0 ps en considérant les durées d'impulsion estimées par autocorrélation). Cette dernière ne peut s'expliquer qu'en considérant tout le profil temporel de l'impulsion irradiante ce qui n'est possible qu'en disposant d'un diagnostic capable d'une telle caractérisation. Dans notre cas, nous nous sommes appuyés sur les mesures effectuées sur DERIC en 2016, avant le début de cette thèse, par le diagnostic SPIRITED [67] qui est capable de mesurer l'amplitude et la phase spectrales des impulsions et donc de reconstruire leurs profils temporels par transformée de Fourier. Nous avons fait l'acquisition d'un dispositif de type FROG qui sera prochainement installé sur DERIC afin d'y assurer de manière permanente la mesure du profil temporel des impulsions (le SPIRITED étant employé sur PETAL).
- La dépendance du LIDT avec le profil temporel impose par ailleurs une révision du concept de loi d'échelle temporelle qui a historiquement traduit la dépendance temporelle du LIDT d'un matériau diélectrique en régime d'irradiations courtes seulement à partir de la durée d'impulsion estimée par autocorrélation. Nous avons montré qu'une telle représentation peut conduire à la détermination de lois d'échelles temporelles différentes pour un même matériau diélectrique et une même gamme de

durée d'impulsion estimées par autocorrélation dès lors que varient les profils temporels des impulsions utilisées. Deux options sont ainsi possibles :

- 1) Si la dépendance temporelle du LIDT d'un matériau diélectrique est traduite par une loi d'échelle temporelle se basant sur les durées d'impulsion estimées par autocorrélation, alors il est nécessaire d'indiquer en plus avec quels profils temporels cette dernière a été établie (d'où à nouveau la nécessité de disposer d'un moyen de mesure de ces profils). Ce faisant, toute l'information temporelle utile sera disponible ce qui permettra à tout opérateur extérieur souhaitant utiliser cette loi d'échelle comme moyen de prédiction du LIDT de mieux juger de la précision de cette dernière (d'autant plus s'il connaît lui aussi les profils temporels avec lesquels il travaille). C'est dans cet esprit que nous avons établis numériquement des lois d'échelles temporelles dites de référence dans le sens où chacune n'emploie qu'un profil temporel idéal (gaussien, sécante hyperbolique carrée ou en courbe de Lorentz).
- 2) La seconde option consiste à utiliser un modèle numérique tel que celui que nous avons développé c'est-à-dire capable de remonter directement au LIDT d'un matériau à partir du profil temporel de l'impulsion qui l'irradie, ce qui impose toujours d'être capable de le mesurer au préalable. Le concept de loi d'échelle temporelle n'est dans ce cas pas nécessaire.

#### Perspectives :

- Nos travaux s'inscrivent dans un domaine temporel (entre 0,8 ps et 3,0 ps) où les deux principaux mécanismes électroniques que sont la photoionisation non-linéaire et l'avalanche électronique peuvent voir leurs rôles respectifs varier du fait de la forme du profil temporel des impulsions. Il serait doublement bénéfique pour la communauté de l'endommagement laser en régime d'impulsions courtes de déterminer le plus précisément possible le domaine temporel où il est nécessaire de prendre en compte le profil temporel des impulsions : tout d'abord, cela éclairerait sur la sensibilité respective à la forme du profil temporel des mécanismes de photoionisation non-linéaire (pour des durées d'impulsion d'au plus quelques centaines de femtosecondes) et d'avalanche électronique (pour des durées d'impulsions d'au moins quelques picosecondes). Ensuite, de manière plus pratique, cela permettrait aux installations laser travaillant avec des impulsions courtes (des bancs d'endommagement en laboratoire aux grandes installations de puissance) de mieux savoir à quel point elles doivent prendre en compte le profil temporel, notamment lorsqu'elles souhaitent utiliser une loi d'échelle temporelle pour prédire le LIDT d'un composant diélectrique donné.
- Le modèle numérique d'endommagement que nous avons développé en prenant en compte le profil temporel des impulsions peut servir à toute équipe de recherche de l'endommagement laser pour développer son propre modèle d'endommagement. L'association de tels modèles et de diagnostics capables de mesurer le profil temporel d'une impulsion courte devrait permettre à terme à la communauté de l'endommagement laser de maîtriser la dépendance temporelle de l'endommagement des matériaux diélectriques en régime d'irradiations courtes.

### Dépendance temporelle de l'endommagement laser sur défauts

Résultats obtenus :

- Nos travaux, via ici la procédure rasterscan, ont à la fois confirmé ceux de Sozet et al. [55] à savoir que l'endommagement sur défauts est une problématique pour des miroirs diélectriques irradiés par des impulsions sub-picosecondes et montré que cette problématique s'étend au régime picoseconde. Les morphologies de dommages observées indiquent que des nodules (introduits lors de la fabrication des composants) sont à l'origine de l'endommagement et que ce dernier a lieu pour des fluences d'irradiation bien plus basses que le LIDT (dès 40% dans notre cas).
- Dans le même temps, nous avons montré que les densités surfaciques de dommages induits sur défauts à la surface de miroirs diélectriques n'apparaissent pas affectées par la nature temporelle des impulsions irradiantes. Ce comportement s'explique en tenant compte des fortes modulations du champ électrique provoquées par un défaut qui font passer les changements de profil temporel à un effet de second ordre.

Perspectives :

- Nos travaux ayant montré qu'un endommagement sur défauts est possible sur miroirs diélectriques en régime sub-picoseconde et picoseconde, il sera nécessaire de rendre systématique l'utilisation de la procédure rasterscan pour qualifier en termes de densités surfacique de dommages induits sur défauts les nouvelles générations de miroirs qui seront installées sur PETAL.
- En plus des dommages induits sur nodules, plusieurs travaux [63,96] ont fait état d'au moins deux autres classes de dommages induits sur défauts pour des miroirs diélectriques en régime picoseconde (pour des durées d'impulsion comprises entre 2,5 ps et 100 ps). Il serait ainsi bénéfique d'étendre la fenêtre temporelle de fonctionnement de DERIC jusqu'au moins environ 10 ps, durée maximale à laquelle peut travailler PETAL. Ce faisant, et toujours à l'aide de la procédure rasterscan, la métrologie en base arrière sera à même de surveiller si les futures générations de miroirs seront sujets à ces différents types d'endommagement sur défauts et le cas échéant, capable d'en établir les densités surfaciques de dommages selon la fluence d'irradiation et éventuellement la nature temporelle des impulsions si certaines classes s'avèrent sensibles à cette dernière.

### Dépendance temporelle de la croissance des dommages

Résultats obtenus :

- Nous avons conduit des expériences de croissance de dommages lasers sur miroirs diélectriques avec un faisceau spatialement top-hat qui ont confirmé l'ensemble des résultats obtenus par Sozet et al. [14] avec un faisceau spatialement gaussien à savoir qu'il existe une fluence seuil de croissance, que cette dernière est inférieure au LIDT, que la surface endommagée croît de façon linéaire avec le nombre d'irradiations pour des fluences d'irradiation supérieures à ce seuil et enfin que le phénomène de croissance est directement lié aux modulations du champ électriques provoquées par la structure endommagée du miroir (ce qui rend la croissance notamment dépendante de la polarisation des impulsions en jeu).

- Nous avons montré que le coefficient de croissance traduisant l'évolution linéaire de la surface endommagée avec le nombre d'irradiations évolue lui-même linéairement avec la fluence d'irradiation.
- À partir de l'étude de la dépendance temporelle du phénomène de croissance, nous avons proposé une loi empirique du coefficient de croissance en fonction de la fluence d'irradiation et de la durée d'impulsion.
- Des calculs de modulations de champ électrique réalisés à partir de modèles COMSOL en deux dimensions ont d'une part permis de relier le seuil de croissance à la plus haute valeur de modulation générée par un dommage initial dans la couche du miroir faite du matériau le moins résistant en termes de tenue au flux laser et d'autre part d'expliquer la direction privilégiée de croissance en surface lors d'irradiations en polarisation S à partir de la localisation de cette plus haute surintensification. Des calculs de champ également réalisés sous COMSOL en trois dimensions ont confirmé ce dernier point et ont permis d'expliquer la direction privilégiée de croissance dans le cas d'irradiations polarisées P : dans les deux cas, la croissance en surface a lieu de manière privilégiée dans la direction orthogonale à celle de la polarisation.

Perspectives :

- La loi empirique que nous avons proposée pour le coefficient de croissance nécessite d'être affinée sur deux points :
  - 1) D'une part au niveau de l'exposant de la loi d'échelle temporelle du seuil de croissance. Cela nécessite des expériences de croissance plus résolues en fluence, en durée d'impulsion et avec un faisceau dont la surface équivalente possède une zone utile sur la caustique plus grande que celle du faisceau top-hat utilisé (au moins quelques millimètres ce qui est largement possible avec un faisceau gaussien). Ce faisant, il sera possible de valider ou d'infirmer notre prédiction basée sur le lien entre modulations du champ électrique et endommagement laser comme quoi le seuil de croissance d'un dommage suit la même loi d'échelle temporelle que le LIDT du miroir où apparaît ce dommage.
  - 2) D'autre part, il faudrait reproduire ces expériences de croissance pour d'autres configurations expérimentales que celle que nous avons employée (30° d'incidence en polarisation P) afin de déterminer les valeurs correspondantes des facteurs multiplicatifs des lois d'échelles temporelles du seuil de croissance et de la pente traduisant la linéarité du coefficient de croissance avec la fluence d'irradiation. Il serait intéressant de relier le plus possible les valeurs obtenues avec les modulations de champ propres à chaque configuration.
- Nos études ayant porté sur des miroirs diélectriques  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  de type quart d'onde, il serait bénéfique d'établir la loi de croissance pour d'autres miroirs diélectriques (dans les configurations expérimentales correspondant à leur future utilisation). De nouveau, cela permettrait de mieux quantifier l'impact des modulations du champ électrique dans la loi de croissance.
- Outre le régime principal de croissance où la surface endommagée croît linéairement avec le nombre d'irradiations, il serait très bénéfique d'étudier précisément l'établissement du régime saturation car nous avons constaté que la surface de saturation dépend de la fluence d'irradiation (la surface du faisceau incident ne

constitue que la plus grande valeur possible de la surface de saturation). En plus d'une étude expérimentale, il faudrait à nouveau étudier le phénomène de saturation en fonction des modulations du champ électrique causées par la structure endommagée du miroir. Une meilleure connaissance du régime de saturation permettra une estimation plus précise de la durée de vie des miroirs sur chaîne.

- Enfin, pour mieux mettre en relation expérience et théorie, il reste à développer un modèle numérique en trois dimensions de la croissance des dommages lasers sur miroir diélectrique. Ce modèle devrait être itératif et fait à l'image de celui développé par Sozet et al. [14] en deux dimensions qui détermine, à partir du calcul des modulations de champ provoquées par une structure endommagée, tous les points du domaine de calcul où l'endommagement surviendra lors de la prochaine irradiation.

**Annexe 1 : excitation et relaxation électroniques (complément)**

Nous détaillons dans cette annexe les termes utilisés dans le code numérique décrit au troisième chapitre ayant servi à évaluer l'impact du profil temporel sur le seuil d'endommagement intrinsèque de matériaux diélectriques.

1) Ionisation par impact

La probabilité d'ionisation par impact  $\tilde{\alpha}$  (en  $s^{-1}$ ) est donnée par [33] :

$$\tilde{\alpha} = \frac{\sigma \times I}{E_c}$$

Où

$I$  est l'intensité de l'impulsion ( $W/m^2$ )

$E_c$  est l'énergie critique (J) donnée par :

$$E_c = \frac{3}{2} \times \left( E_g + \frac{(e \times E_{\max})^2}{4m_{\text{eff}} \times (\omega_0)^2} \right)$$

Avec

$e$  : charge élémentaire électronique ( $e \sim 1,6 \times 10^{-19}$  A.s)

$\omega_0$  est la pulsation centrale de l'impulsion laser ( $s^{-1}$ )

$m_{\text{eff}}$  : masse effective d'un électron dans le matériau irradié (kg)

$E_g$  : énergie de bande interdite du matériau irradié (J)

$E_{\max}$  : valeur maximale du champ électrique de l'impulsion laser (V/m)

Et  $\sigma$  est la section d'absorption efficace d'un photon par un électron (en  $m^2$ ) :

$$\sigma = \frac{1}{c \times \epsilon_0 \times n \times m_{\text{eff}}} \times \frac{e^2 \times \tau_m}{1 + (\omega_0)^2 \times (\tau_m)^2}$$

Avec

$c$  : vitesse de la lumière dans le vide ( $299\,792\,458$  m.s $^{-1}$ )

$\epsilon_0$  : permittivité du vide ( $8,854187817 \times 10^{-12}$  A $^2$ .s $^4$ .kg $^{-1}$ .m $^{-3}$ )

$n$  : indice optique du matériau

$\tau_m$  : temps de relaxation moyen des électrons dans la bande de conduction (s)

2) Effet inverse Bremsstrahlung

La probabilité  $W_{1ph}$  (en  $s^{-1}$ ) avec laquelle un électron de la bande de conduction est susceptible d'absorber un photon par effet « inverse Bremsstrahlung » est donnée par [33] :

$$W_{1ph} = \frac{\tilde{\alpha}}{2^{\bar{k}} - 1}$$

Avec

$$k = \left[ \frac{E_c}{\hbar \times \omega_0} \right] + 1$$

Où

[x] désigne la partie entière de x. k est le nombre de niveaux d'énergie contenus dans la bande de conduction où a lieu l'effet « inverse Bremsstrahlung ».

$\hbar$  est la constante de Planck réduite ( $\hbar \sim 1,05 \times 10^{-34}$  J.s)

$\tilde{\alpha}$  est la probabilité d'ionisation par impact en  $s^{-1}$  (voir ci-avant)

$E_c$  est l'énergie critique en J (voir ci-avant)

## **Annexe 2 : mesures SPIRITED de profil temporel sur DERIC (complément)**

Les Figures A2-1 et A2-2 ci-après reprennent et complètent les exemples de profils temporels d'intensité donnés en Figure 2-14 et mesurés avec le diagnostic SPIRITED [67] décrit en section II.A.1.d.iii.

Nous rappelons que le compresseur de la source laser fournie par Amplitudes Systèmes comprend un réseau de compression fixe et un dièdre mobile placé sur une platine de translation contrôlée par l'opérateur. Régler la position du dièdre permet d'ajuster le déphasage introduit par le compresseur pour compenser celui introduit par l'étireur et ainsi de jouer sur la durée des impulsions. Il existe une position optimale du dièdre pour laquelle le compresseur compense au mieux l'étireur ; la durée d'impulsion est alors minimale. De part et d'autre de cette position, la compression est dérégulée et la durée d'impulsion augmente plus on s'en éloigne. Le compresseur possède donc deux plages, appelées plages 1 et 2 (voir Figure 2-13), chacune partant du minimum d'impulsion et s'arrêtant aux butées respectives de la course du dièdre où la durée d'impulsion est maximale. La Figure A2-1 donne ainsi des exemples de profils temporels de la plage 1 (le minimum d'impulsion  $y$  est intégré) et la Figure A2-2 des exemples de profils de la plage 2.

La plage 1 présente un caractère plus stable que la plage 2 dans le sens où le profil temporel  $y$  évolue de manière quasi-continu. La plage 2 présente une plus grande diversité de profils du fait de sa fin de course qui se caractérise par des variations plus fortes du profil temporel. Dans le deuxième chapitre, nous avançons l'hypothèse, simulations à l'appui, d'un léger désalignement entre l'étireur et le compresseur (d'autant plus marqué qu'on s'éloigne de l'optimum de compression) pour justifier ces différentes formes de profils temporels le long des deux plages. Néanmoins, cela ne suffit pas à expliquer les fortes disparités de profils pour la fin de la plage 2. Un autre élément à sûrement prendre en considération est la capacité même du diagnostic SPIRITED à produire des interférogrammes nets lorsque le compresseur est très dérégulé [22], typiquement pour des positions de platine inférieures à  $-4000 \mu\text{m}$  (plage 1) ou supérieures à  $4000 \mu\text{m}$  (plage 2) ce qui revient dans les deux cas à des durées d'impulsions supérieures à 3 ps. Ces configurations tendent en effet à brouiller les franges ce qui rend plus difficile le mesure de la phase et donc la reconstruction du profil temporel.

Enfin, comme rapporté dans le troisième chapitre, ces mesures de profils temporels réalisées en 2016 lors de la thèse de Martin Sozet [22] ont permis d'expliquer les résultats expérimentaux obtenus en 2017 lors de la présente thèse pour l'étude de l'endommagement intrinsèque ce qui montre la stabilité de la source laser sur cette période. Cependant, nous avons des raisons de croire que les profils temporels ont évolué depuis car nous avons constaté qu'au cours de l'année 2019, les amplitudes des plages 1 et 2 ont changé, passant de 0,8-3,7 ps à 0,8-4,2 ps pour la plage 1 et de 0,8-3,3 ps à 0,8-2,6 ps pour la plage 2. L'acquisition d'un dispositif FROG, qui sera prochainement installé, permettra une mesure permanente du profil temporel des impulsions de DERIC.

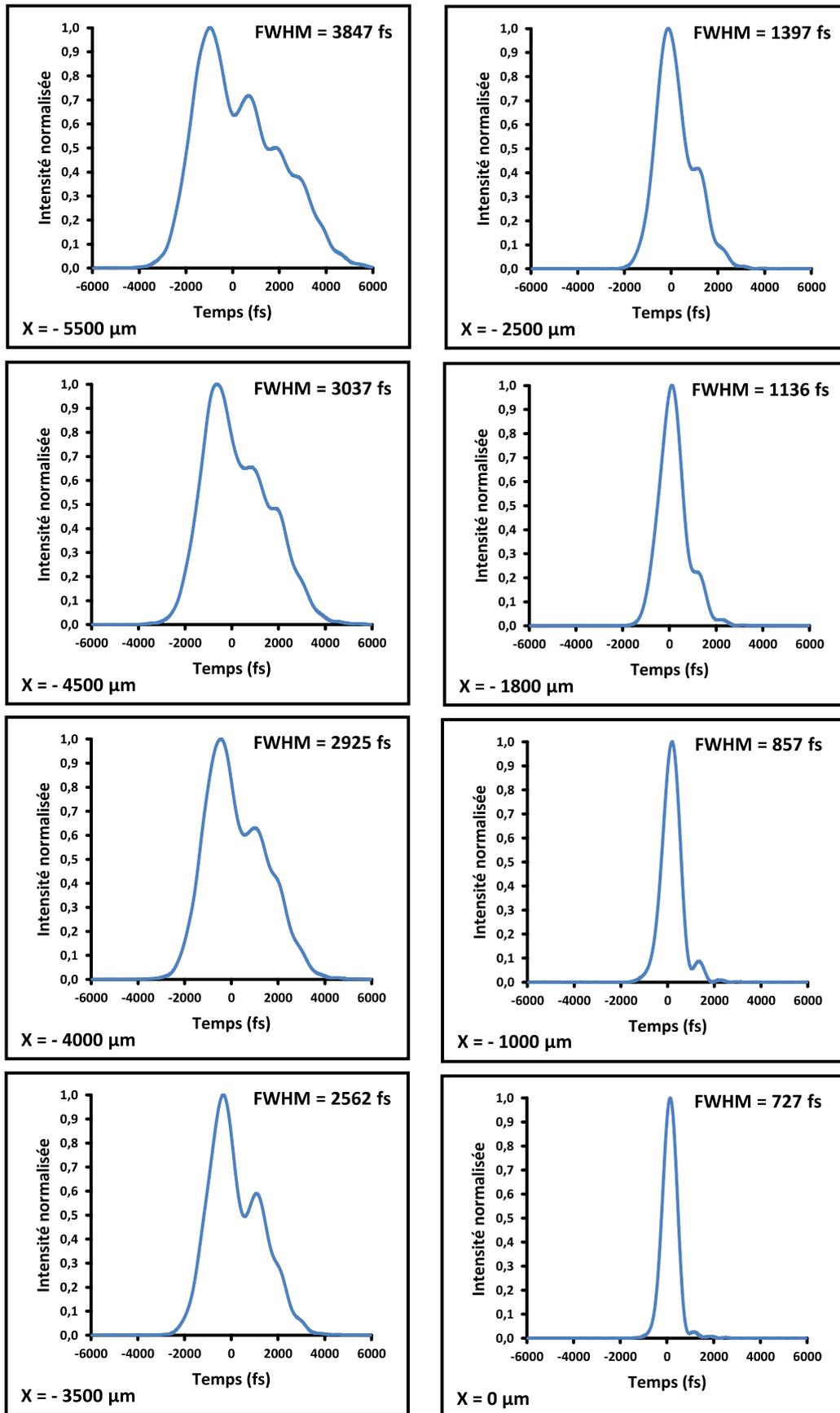


Figure A2-1 : exemples de profils temporels mesurés via le diagnostic SPIRITED sur la page 1 de la source laser de DERIC. Pour chaque profil sont indiqués respectivement en bas à gauche et en haut à droite la position de platine et la largeur à mi-hauteur correspondantes. Les profils sont rangés en deux colonnes par position de platine croissante de haut en bas pour chacune d'elle et de gauche à droite.

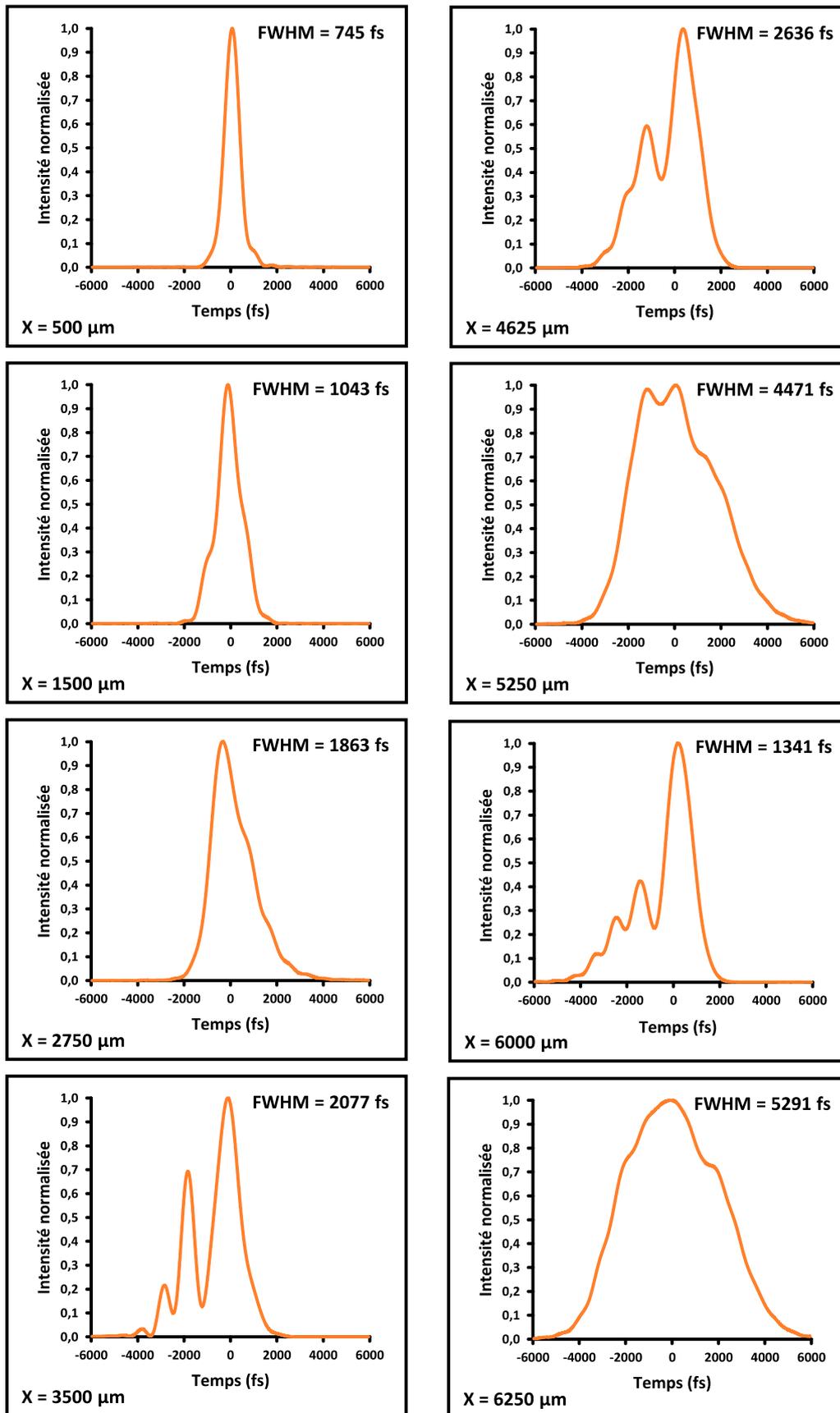


Figure A2-2 : exemples de profils temporels mesurés via le diagnostic SPIRITED sur la page 2 de la source laser de DERIC. Pour chaque profil sont indiqués respectivement en bas à gauche et en haut à droite la position de platine et la largeur à mi-hauteur correspondantes. Les profils sont rangés en deux colonnes par position de platine croissante de haut en bas pour chacune d'elle et de gauche à droite.

### Annexe 3 : reconstruction numérique du profil temporel des impulsions DERIC

Cette annexe détaille les simulations numériques présentées en section II.A.1.d.iv ayant servi à reconstruire numériquement sous Matlab les profils temporels d'intensité des impulsions délivrées par la source laser de DERIC.

Le profil temporel  $I(t)$  est donné par  $I(t) = |\mathbf{E}(t)|^2$  où  $\mathbf{E}(t)$  est le vecteur champ électrique temporel, ce dernier se calculant à partir de la transformée de Fourier du champ électrique spectral selon l'équation 2-5 donnée au deuxième chapitre que nous rappelons ici :

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} B(\omega - \omega_0) \times e^{i\varphi(\omega - \omega_0)} \times e^{i(\omega - \omega_0)t} d\omega$$

Où  $B(\omega - \omega_0)$  est l'amplitude spectrale de l'impulsion centrée à la pulsation  $\omega_0$  et  $\varphi(\omega - \omega_0)$  la phase spectrale de l'impulsion.

Pour nos simulations, nous avons fait l'hypothèse d'une phase spectrale limitée à l'ordre trois dans son développement en série de Taylor (dont l'usage est valide dans notre cas comme montré en section II.A.1.d.iv). En notant  $\Omega = \omega - \omega_0$ , on a donc :

$$\varphi(\Omega) = T_1 \times \Omega + \frac{1}{2} \times T_2 \times \Omega^2 + \frac{1}{6} \times T_3 \times \Omega^3$$

Où  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  sont respectivement les dérivées selon  $\omega$  au premier, deuxième et troisième ordre de la phase évaluées en  $\omega_0$ .  $T_1$  est plus communément appelé le retard de groupe,  $T_2$  le retard de phase quadratique et  $T_3$  le retard de phase du troisième ordre.  $T_1$  ne participe pas à la forme du profil temporel (juste à une translation du profil dans le temps), nous ne le considérerons donc pas dans nos simulations.

Concernant l'amplitude spectrale, nous avons fait l'hypothèse que les impulsions présentent un profil spectral gaussien (ce n'est pas tout à fait le cas en réalité, voir Figure 2-3). Il existe trois principales façons de décrire un tel profil, données en Figure A3-1 :

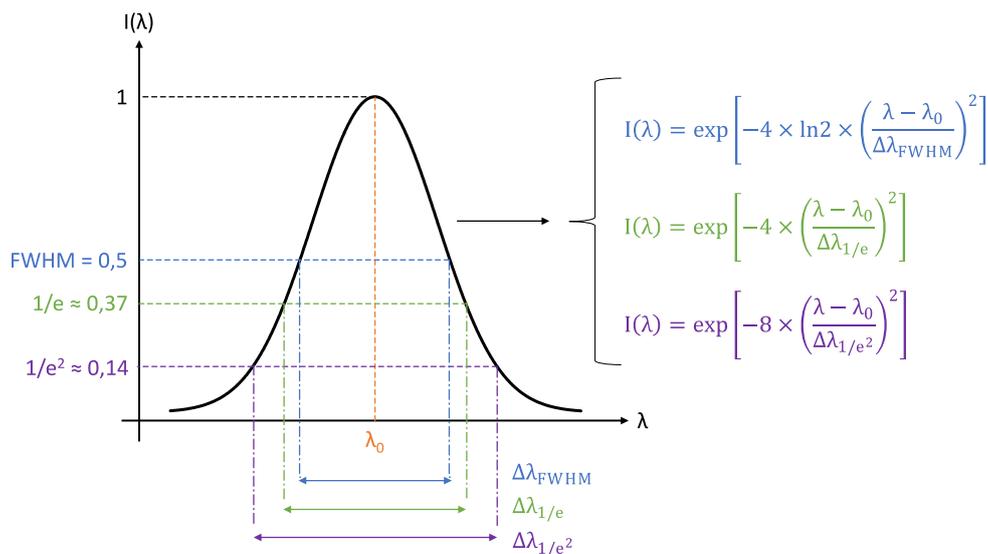


Figure A3-1 : Expressions possibles d'un profil spectral gaussien. FWHM signifie Full Width at Half Maximum (largeur à mi-hauteur).

Nous avons choisi de considérer la description à mi-hauteur (FWHM). Il faut ensuite passer d'une description en longueur d'onde à une description en pulsation du spectre :

$$\Omega = \omega - \omega_0 = 2\pi \times c \times \left( \frac{1}{\lambda} - \frac{1}{\lambda_0} \right) = 2\pi \times c \times \frac{\lambda_0 - \lambda}{(\lambda_0)^2}$$

En faisant l'approximation que  $\lambda \times \lambda_0 \approx (\lambda_0)^2$ .

On en déduit :

$$(\lambda_0)^4 \times \Omega^2 = (2\pi \times c)^2 \times (\lambda - \lambda_0)^2$$

Cela permet d'exprimer l'intensité du spectre selon  $\Omega$  :

$$I(\Omega) = \exp \left[ - \frac{\ln 2 \times (\lambda_0)^4}{(\pi \times c \times \Delta\lambda_{FWHM})^2} \times \Omega^2 \right]$$

On obtient ainsi l'expression en amplitude du spectre selon  $\Omega$  :

$$B(\Omega) = \exp(-a \times \Omega^2) \quad \text{avec} \quad a = \frac{1}{2} \times \frac{\ln 2 \times (\lambda_0)^4}{(\pi \times c \times \Delta\lambda_{FWHM})^2}$$

Finalement, l'expression du champ électrique donnée au début se décline comme suit :

$$\mathbf{E}(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{\Omega_1}^{\Omega_2} \exp(-a \times \Omega^2) \times \exp \left[ -i \times \left( \frac{T_2}{2} \times \Omega^2 + \frac{T_3}{6} \times \Omega^3 \right) \right] \times \exp(i \times \Omega \times t) \, d\Omega$$

$\Omega_1$  est la pulsation correspondant à la longueur d'onde  $\lambda_1 = 1070$  nm et  $\Omega_2$  celle correspondant à la longueur d'onde  $\lambda_2 = 1040$  nm. Nous avons choisi ces bornes de manière à encadrer la partie utile du spectre gaussien centré à  $\lambda_0 = 1054$  nm au vu du spectre réel (Figure 2-3). Également, nous avons  $\Delta\lambda_{FWHM} = 2,5$  nm (voir Figure 2-3 de nouveau).

Le compresseur temporel de la source laser de DERIC utilisant des réseaux parallèles, nous avons utilisé les expressions suivantes pour  $T_2$  et  $T_3$  [69] :

$$T_2 = -G \times \frac{N^2 \times \lambda_0^3}{2\pi \times c^2 \times \cos^3(\alpha_0)}$$

$$T_3 = 3G \times \frac{N^2 \times \lambda_0^4 \times [1 + \sin(i) \times \sin(\alpha_0)]}{4\pi^2 \times c^3 \times \cos^5(\alpha_0)}$$

Où

$N$  : densité de traits des réseaux ( $m^{-1}$ )

$i$  : angle d'incidence sur les réseaux (rad)

$\alpha_0$  : angle de diffraction au premier ordre de la longueur d'onde centrale (rad)

$G$  : distance normale entre les deux réseaux (m)

$c$  : vitesse de la lumière dans le vide (299 792 458 m/s)

$T_2$  et  $T_3$  s'expriment respectivement en  $s^{-2}$  et  $s^{-3}$ .

Dans notre cas, nous avons  $N = 1785 \times 10^3 \text{ m}^{-1}$  et  $i = 70^\circ$ . L'angle  $\alpha_0$  s'obtient à partir de la loi des réseaux (en transmission pour nous) :  $\sin(i) + \sin(\alpha_0) = N \times \lambda_0$ .

La Figure A3-2 donne un schéma de compresseur à réseaux parallèles en transmission :

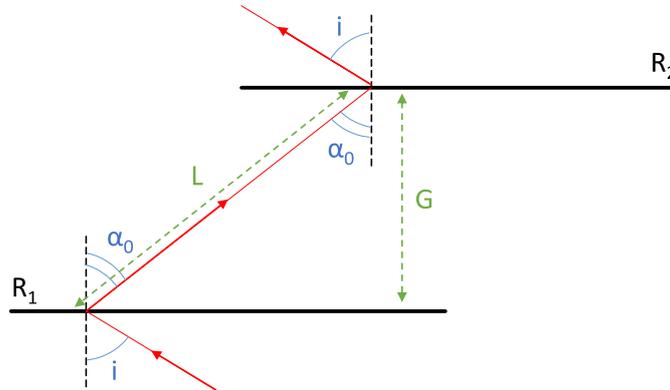


Figure A3-2 : Schéma d'un compresseur temporel à réseaux parallèles fonctionnant en transmission. L est la distance parcourue par l'impulsion entre les deux réseaux R1 et R2.

Nous voyons d'après la Figure A3-2 que  $G = L \times \cos(\alpha_0)$ .

L'étireur de la source laser de DERIC fonctionne sur le même schéma que le compresseur. Les réseaux de l'étireur sont donc séparés d'une distance normale  $G_{\text{étireur}}$  et ceux du compresseur d'une distance normale  $G_{\text{compresseur}}$ . C'est cette dernière qui est réglable pour ajuster la durée d'impulsion. La meilleure compression où la durée d'impulsion est à son minimum est atteint lorsque  $\Delta G = G_{\text{compresseur}} + G_{\text{étireur}} = 0$  (en tenant compte algébriquement du sens de parcours opposé de la lumière dans le compresseur par rapport à l'étireur).

On a alors  $\Delta T_2 = T_{2\_compresseur} + T_{2\_étireur} = 0$  et  $\Delta T_3 = T_{3\_compresseur} + T_{3\_étireur} = 0$  (le compresseur compense exactement le déphasage introduit par l'étireur). Dès que l'on s'écarte de cette position de compression optimale, on a  $\Delta G \neq 0$  et par conséquent  $\Delta T_2 \neq 0$  (ce qui étire temporellement l'impulsion) et  $\Delta T_3 \neq 0$  (ce qui introduit des rebonds dans l'impulsion).

Dans notre cas, le compresseur de la source laser est constitué d'un seul réseau et d'un dièdre se déplaçant en translation faisant faire un aller-retour à l'impulsion. Le réseau joue ainsi le rôle de R1 et R2 dans la Figure A3-2 et la distance L vaut deux fois celle entre le réseau et le dièdre que nous noterons  $L_d$ . Nous avons donc dans notre cas  $G = 2L_d \times \cos(\alpha_0)$ . En notant  $L_{d\_optimum}$  la distance pour laquelle la compression est optimale et  $\Delta L_d = L_d - L_{d\_optimum}$  tout écart par rapport à cette position, on a ainsi d'après les notations précédentes  $\Delta G = 2\Delta L_d \times \cos(\alpha_0)$ .

La course du dièdre est limitée par deux butées mécaniques. La position de meilleure compression se situe environ à mi-course et les butées à environ  $6000 \mu\text{m}$  de celle-ci. Nos simulations ont donc été menées entre  $\Delta L_d \approx -6000 \mu\text{m}$  et  $\Delta L_d \approx 6000 \mu\text{m}$ . Dans l'ensemble, nous avons obtenu des ordres de grandeurs de  $10^{-24} \text{ s}^2$  pour  $\Delta T_2$  (ce qui est attendu pour des impulsions de l'ordre de  $10^{-12} \text{ s}$ , le cas de celles de DERIC) et de  $10^{-37} \text{ s}^3$  pour  $\Delta T_3$ .

Enfin, comme expliqué en section II.A.1.d.iv du deuxième chapitre, ces simulations nous ont permis de reproduire numériquement les formes de profils temporels mesurées sur DERIC en introduisant une quantité résiduelle  $\delta T_3$  de phase cubique non compensée qui est la traduction probable d'un léger désalignement du compresseur. Des exemples de profils temporels reconstruits numériquement via ces simulations sont donnés en Figure 2-15.

### **Annexe 4 : traitement du bruit sur les acquisitions du profil spatial**

Cette annexe détaille le traitement de bruit mis en place sur DERIC pour traiter les acquisitions du profil spatial des impulsions tel que visible en Figure 2-16 et 2-20.

Ces travaux d'analyse du bruit ont été menés par Saaxewer Diop dans le cadre de son stage de fin d'étude.

Le modèle de caméra utilisé possède un capteur de résolution  $1600 \times 1200 \text{ px}^2$  pour une taille de  $8,8 \times 6,6 \text{ mm}^2$  (les pixels sont carrés de  $5,5 \text{ }\mu\text{m}$  de côté). Or, le faisceau n'occupe qu'une faible portion du capteur (voir Figure A4-1) ce qui expose énormément au bruit sur ce dernier. Le faisceau étant toujours placé au centre du capteur, le bruit est calculé à partir de la moyenne faite sur quatre zones rectangulaires partant des quatre coins du capteur. Une analyse a montré que ce bruit moyen ne reste pas constant en augmentant progressivement la taille de ces zones (voir Figure A4-1 et A4-2(a)). Le capteur n'étant ainsi pas homogène dans sa totalité en termes de bruit, nous avons réduit la taille du capteur utilisé à une fenêtre de  $400 \times 300 \text{ px}^2$ , le faisceau étant toujours au centre de la fenêtre utilisée. Le bruit moyen s'est dans ce cas montré homogène (Figure A4-2(b)).

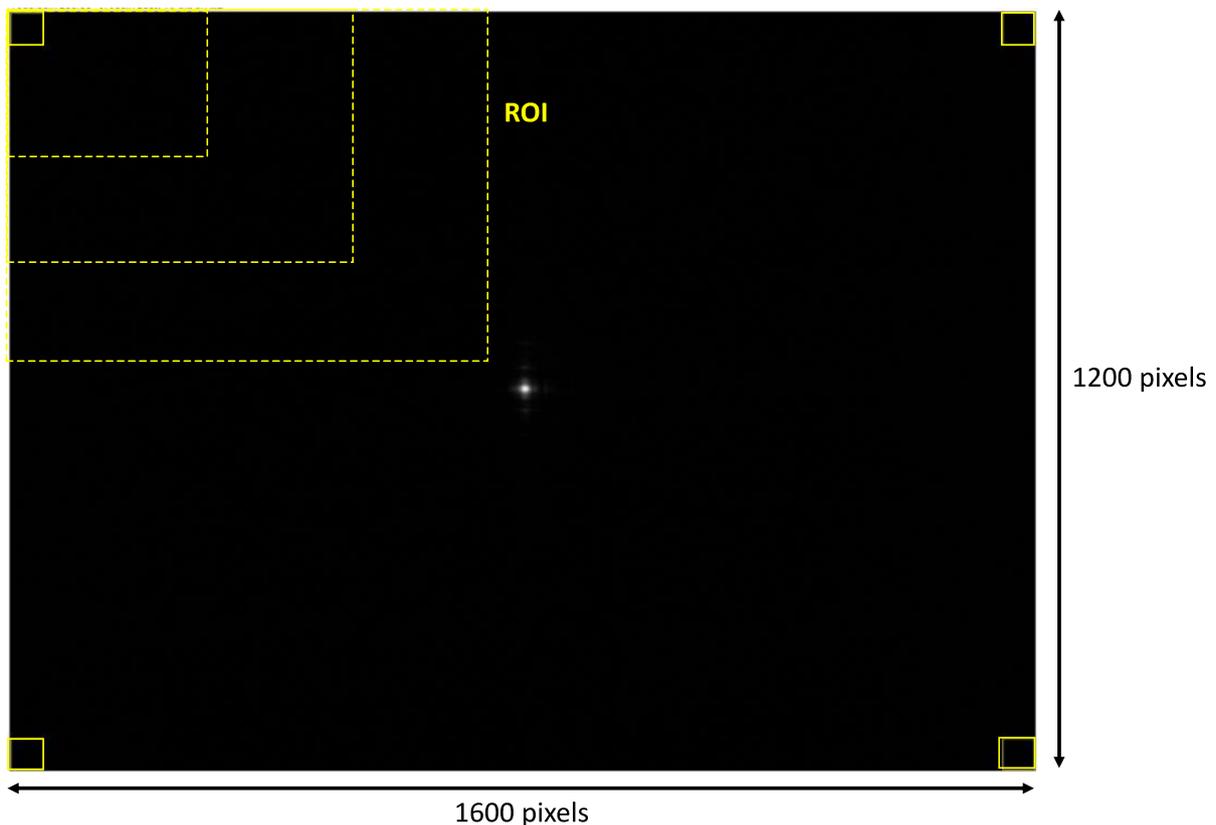


Figure A4-1 : Acquisition du profil spatial (en blanc au centre) sur la taille maximale du capteur de  $1600 \times 1200 \text{ px}^2$ . En augmentant progressivement la taille des quatre zones rectangulaires (ROI en jaune pour Region Of Interest) pour le calcul du bruit moyen, il est révélé que ce dernier ne reste pas constant (voir Figure A4-2(a)).

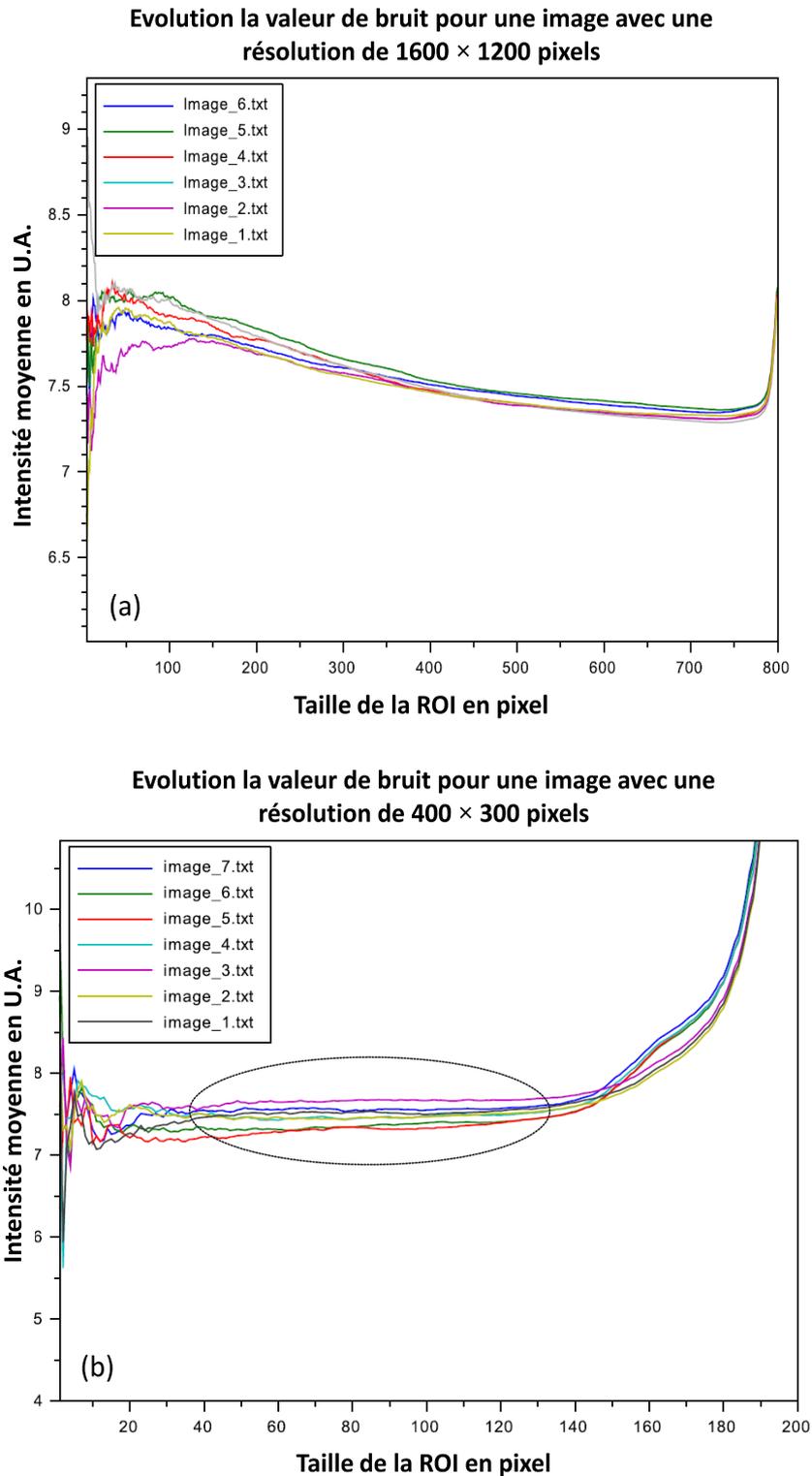


Figure A4-2 : Évolution du bruit moyen calculé dans quatre zones rectangulaires (ROI) situées aux quatre coins du capteur lorsqu'est considérée une taille de fenêtre sur ce capteur de (a)  $1600 \times 1200$  px<sup>2</sup> (taille maximale) et (b)  $400 \times 300$  px<sup>2</sup>. L'abscisse représente la longueur horizontale en pixels de chaque ROI. Le bruit moyen se révèle hétérogène dans le cas (a) et homogène dans le cas (b). Dans les deux cas, les fluctuations pour les plus petite tailles de ROI traduisent l'inhomogénéité du bruit aux quatre coins du capteur (des ROI de petites tailles ne sont par nature pas représentatives du bruit dans son ensemble et sont donc plus sensibles aux variations de ce bruit). Pour les ROI de plus grandes tailles, la hausse du bruit moyen signifie que le faisceau entre dans le champ de calcul. Les analyses sont répétées pour plusieurs acquisitions identiques (correspondant aux différentes images indiquées dans les encarts en haut à gauche des cas (a) et (b)).

C'est donc avec une taille de capteur de  $400 \times 300 \text{ px}^2$  que nous travaillons pour garantir l'homogénéité du bruit. Ce bruit est calculé en faisant la moyenne du bruit obtenu dans quatre zones carrées de  $60 \times 60 \text{ px}^2$  situés aux quatre coins de la fenêtre. Plusieurs tailles sont possibles au vu de la stabilité du bruit sur cette fenêtre (voir zone entourée en noir en Figure A4-2(b)). Il est montré en Figure A4-3 que le bruit est bien traité de la même manière dès lors que les ROI de calculs de bruit ont des tailles se situant dans la région de stabilité.

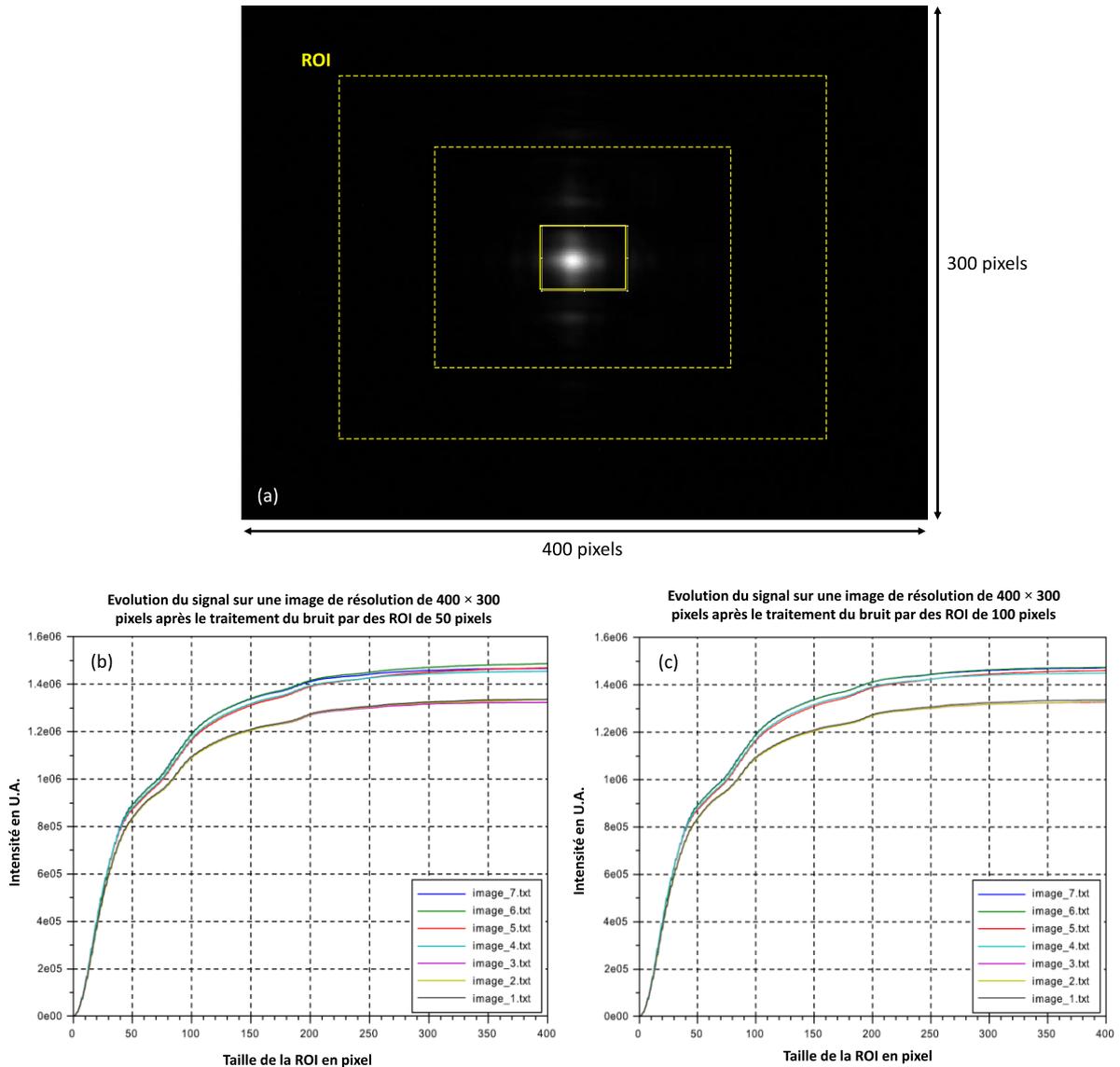


Figure A4-3 : Évolution de l'intensité après traitement du bruit sur une fenêtre de  $400 \times 300 \text{ px}^2$  en augmentant progressivement depuis le centre la ROI considérée (en jaune dans le cas (a), le faisceau étant visible en blanc). Le traitement de bruit a été effectué à partir de zones carrées de (b) 50 pixels de côté et (c) 100 pixels de côté.

Aucun changement n'est constaté. Également, la saturation du signal prouve que la fenêtre de  $400 \times 300 \text{ px}^2$  contient tout le faisceau. Certaines acquisitions ont été faites avec des réglages en intensité différents d'où les paliers de saturation différents.

## **Annexe 5 : caustique de la voie top-hat de DERIC & rôle de la lame de phase**

Cette annexe se divise en deux parties. Dans la première partie, nous présentons plus en détail la caustique de la voie top-hat de DERIC (dont une représentation est donnée en Figure 2-21 au deuxième chapitre) et mettons en avant les fortes disparités de répartition d'énergie entre les différents profils spatiaux en jeu. Dans la deuxième partie, nous expliquons, simulations à l'appui, la formation de ces différents profils spatiaux constituant la caustique.

### 1<sup>ère</sup> partie : caustique détaillée de la voie top-hat de DERIC

Sont données ci-après en Figure A5-1 plusieurs acquisitions (réalisées grâce à une caméra numérique de la marque Basler, modèle avA1600) du profil spatial du faisceau se propageant le long de l'axe optique de la voie top-hat de DERIC après avoir traversé la lentille de focalisation. En sortie de source laser, le faisceau est spatialement gaussien ; son passage à travers une lame de phase (située avant la lentille, voir Figure 2-1) modifie son profil spatial, ce dernier ne cessant ensuite d'évoluer au cours de sa propagation. Le faisceau dit top-hat ne constitue que l'un des profils spatiaux disponibles.

Ces profils spatiaux très diversifiés sont aussi caractérisés par des niveaux d'intensités (ou fluences) très différents comme le montre la Figure A5-2. La fluence locale maximale reste relativement faible dans la zone « matrice » située entre la lentille et le faisceau top-hat avant d'augmenter très nettement dans la zone « étoile ». Ces hautes fluences disponibles constituent une opportunité pour l'étude de l'endommagement laser comme nous le montrons dans le quatrième chapitre lors de l'étude de la croissance des dommages lasers. Du fait de leurs faibles fluences, les profils contenus dans la zone « matrice » ne sont quant à eux utiles que pour les composants optiques s'endommageant le plus facilement (typiquement, les miroirs et réseaux diélectriques utilisés à de faibles angles d'incidence).

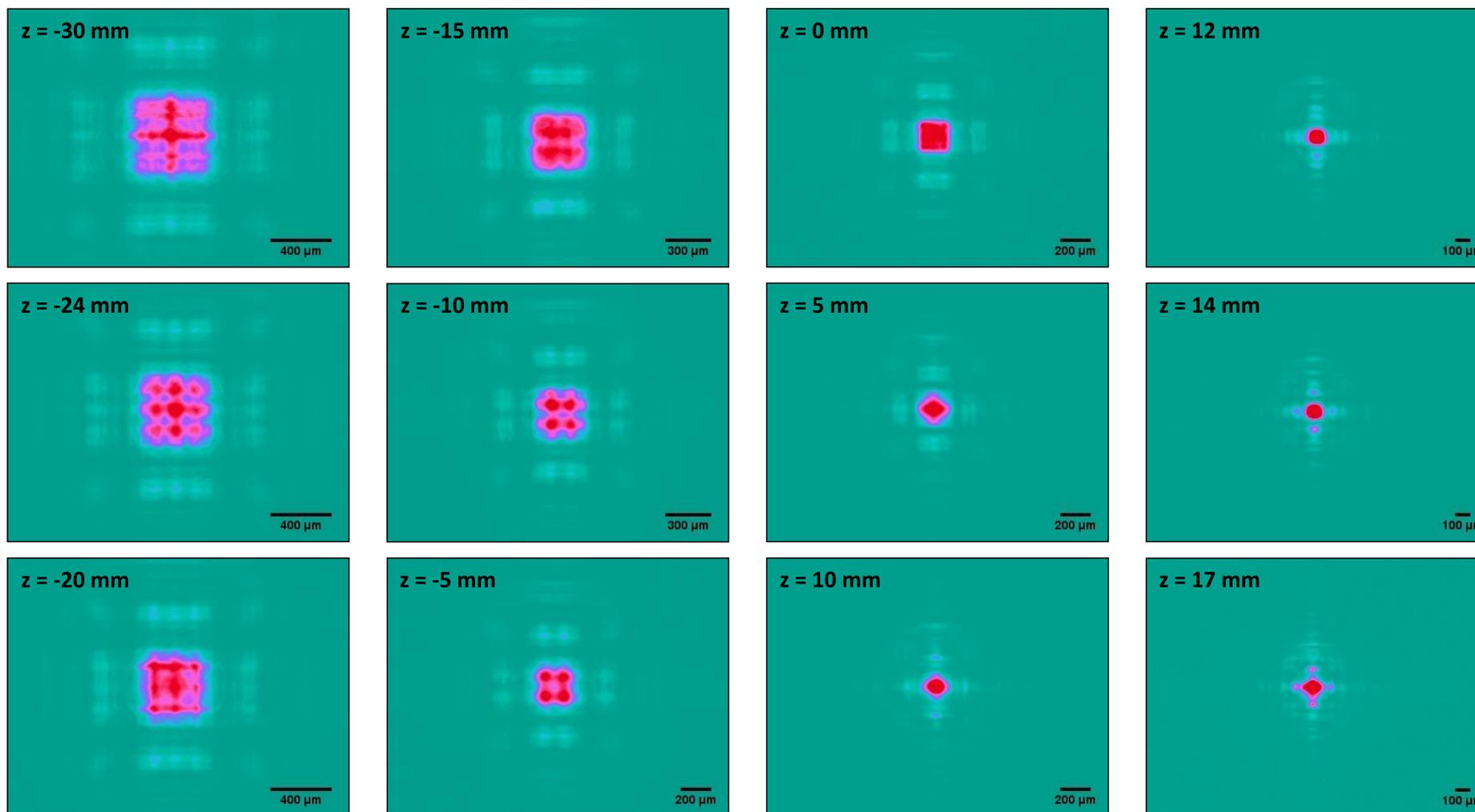


Figure A5-1 : caustique détaillée de la voie top-hat de DERIC. Le faisceau top-hat est arbitrairement placé à  $z = 0$  mm ( $z$  représentant le déplacement le long de l'axe optique). Un déplacement négatif (resp. positif) en  $z$  signifie un rapprochement (resp. éloignement) par rapport à la lentille de focalisation (voir Figure 2-1). Toutes les images sont contenues dans un champ de  $2,2 \times 1,65$  mm<sup>2</sup>. Chaque image dispose de sa propre échelle d'intensité car les différences sont trop importantes entre les différents profils pour tous les visualiser correctement avec une échelle unique (voir Figure A5-2 pour la comparaison des niveaux de fluences entre différents profils).

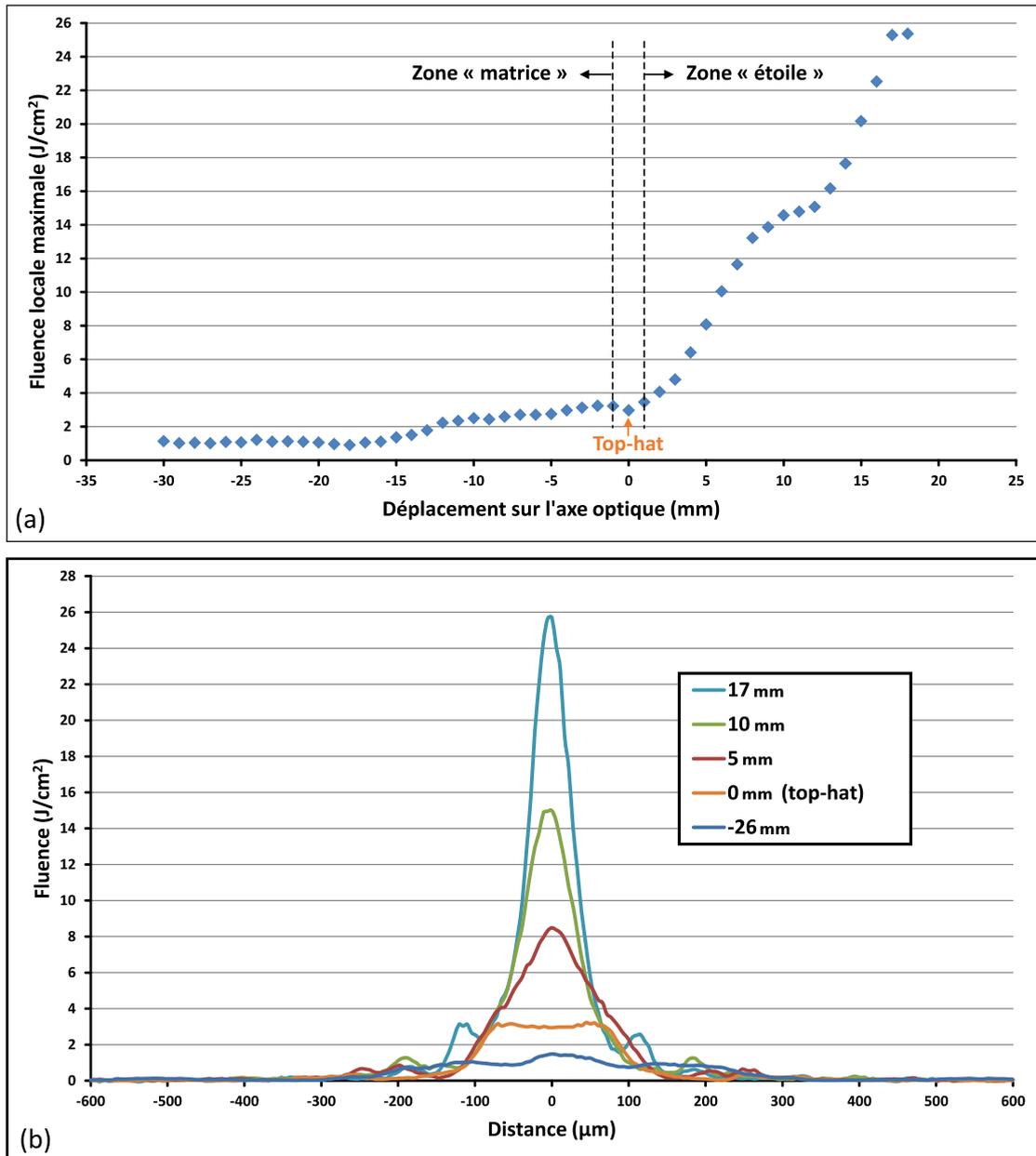


Figure A5-2 : (a) Évolution de la fluence locale maximale à travers les différents profils spatiaux formés le long de la voie top-hat de DERIC (après la lentille de focalisation). Le faisceau top-hat (placé à 0 mm en abscisse) se situe entre deux grandes familles de profils, nommées « matrice » et « étoile ». Le déplacement en abscisse correspond à celui de la Figure A5-1. (b) Coupe horizontale (d'après l'orientation des images en Figure A5-1) passant par la plus haute fluence locale de différents profils spatiaux, ces derniers étant nommés dans la légende selon leur repérage en (a) qui correspond également au repérage dans la Figure A5-1.

2<sup>ème</sup> partie : rôle de la lame de phase dans la formation des différents faisceaux

C'est en modifiant la phase d'un faisceau qu'il est possible de modifier son profil spatial. Comme son nom l'indique, la lame de phase influe donc sur la phase du faisceau la traversant. Mais ce composant n'est pas le seul élément à prendre en compte ; la lentille contribue également à déphaser le faisceau tout comme sa propagation dite en espace libre (dans l'air) entre la lame de phase et la lentille puis après cette dernière. Nous détaillons ci-dessous (dans l'ordre induit par le sens de propagation du faisceau) les contributions de chacun de ces éléments sur la phase. Comme illustré en Figure A5-3, nous passons par une géométrie cylindrique ( $r, \theta, z$ ) pour le repérage dans l'espace. Le faisceau est décrit selon un terme de phase et d'amplitude : le terme d'amplitude est gaussien (faisceau délivré par la source laser) et seule la phase spatiale est prise en compte par souci de simplification (la phase temporelle n'est ici pas pertinente). La lame de phase est réduite à sa gravure d'épaisseur  $e$ .

On pose  $z = 0$  dans le plan correspondant à la sortie de la lame de phase et le plan  $z = -e$  est considéré comme plan d'origine des phases. Enfin, le faisceau est centré sur la gravure et sur la lentille de focalisation.

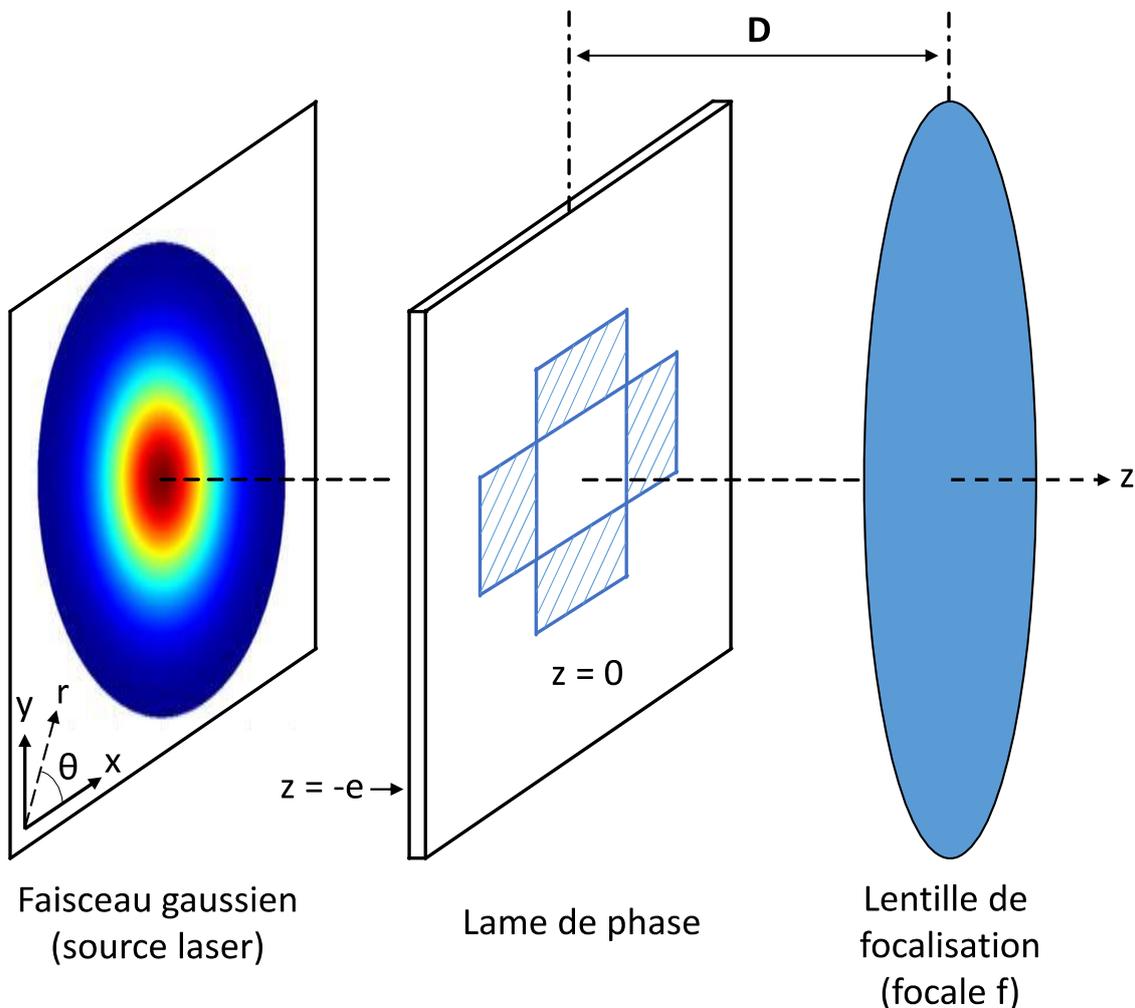


Figure A5-3 : cadre géométrique utilisé dans cette partie. Seuls les éléments influençant la phase sont représentés : le motif de gravure (hachuré en bleu) d'épaisseur  $e$  de la lame de phase et la lentille (le synoptique complet de la voie top-hat est donné en Figure 2-1).

- Au plan  $z = -e$ , le faisceau (normé et représenté par une fonction  $U$ ) est décrit comme suit :

$$U(r, -e) = \exp \left[ -\frac{r^2}{w_0^2} \right]$$

Où  $w_0$  est le waist du faisceau à  $1/e^2$  avant focalisation (1,625 mm, le diamètre à  $1/e^2$  valant 3,25 mm, voir section II.A.1.b).  $r$  est la distance correspondant au module du vecteur position (Figure A5-3), devant être exprimée avec la même unité que  $w_0$ .

- La lame de phase diffracte ensuite le faisceau en introduisant un déphasage  $\Delta\varphi$  entre les rayons passant dans la gravure et ceux n'y passant pas (voir Figure A5-4).

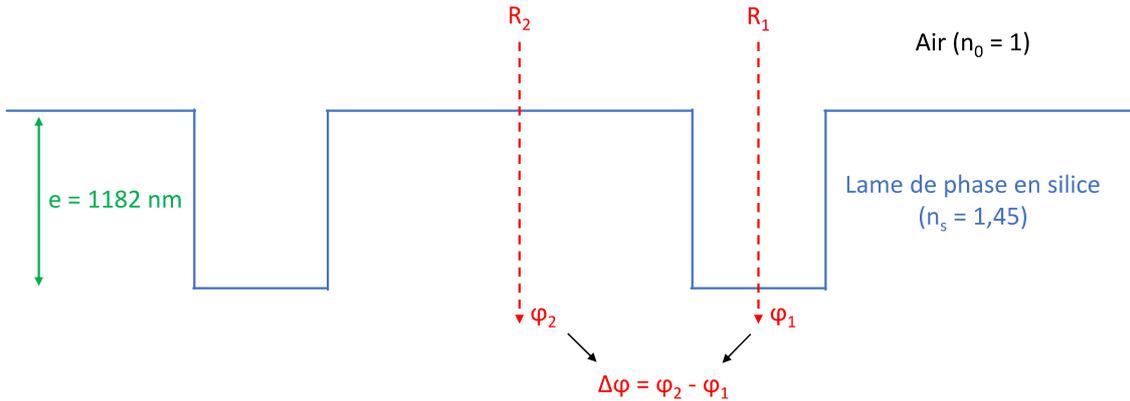


Figure A5-4 : schéma du motif de gravure de la lame de phase (faite de silice), responsable d'un déphasage  $\Delta\varphi$  entre un rayon passant dans la gravure ( $R_1$ ) et un autre n'y passant pas ( $R_2$ ). Les indices de l'air et la silice sont pris égaux à 1 et 1,45 à 1054 nm (voir remarque ci-après).

Dans la Figure A5-4, les chemins optiques des rayons  $R_1$  et  $R_2$  valent respectivement  $n_0 \times e$  et  $n_s \times e$ . Les phases  $\varphi_1$  et  $\varphi_2$  accumulées par ces rayons s'expriment alors comme suit :

$$\varphi_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \times n_0 \times e \quad \text{et} \quad \varphi_2 = \frac{2\pi}{\lambda} \times n_s \times e$$

Où  $\lambda$  est la longueur d'onde centrale du faisceau (m).

On a donc :

$$\Delta\varphi = \varphi_2 - \varphi_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \times (n_s - n_0) \times e$$

La lame de phase utilisée sur la voie top-hat de DERIC est une lame commerciale en silice massive qui a été gravée de manière à introduire un déphasage  $\Delta\varphi$  de  $\pi$  à 1064 nm. C'est pourquoi l'épaisseur  $e$  de la gravure vaut 1182 nm comme indiqué en Figure 2-19 (application numérique de la formule précédente avec  $n_0 = 1$  et  $n_s = 1,45$ ).

L'utilisation de cette lame à 1054 nm (longueur d'onde centrale du faisceau de DERIC, voir Figure 2-3) n'est ici pas problématique puisque le déphasage introduit varie de moins de 1% par rapport au cas nominal à 1064 nm.

Remarque : rigoureusement parlant, la silice massive et l'air sont des matériaux dispersifs si bien que leurs indices varient entre 1054 nm et 1064 nm mais ces variations sont tellement faibles (un pour dix mille dans la silice, un pour un milliard dans l'air) que nous les négligeons et considérons comme valeur unique d'indice 1,45 pour la silice et 1 pour l'air.

Dans le plan  $z = 0$ , on a alors :

$$U(r, 0) = \exp\left[-\frac{r^2}{w_0^2}\right] \times \exp[i \times \Delta\varphi(r)]$$

Où  $\Delta\varphi(r)$  représente le déphasage introduit par la lame de phase (valant  $\pi$  ou 0).

- Le faisceau diffracté se propage ensuite dans l'air entre la lame de phase et la lentille, toutes deux séparées d'une distance  $D$  (Figure A5-3). Cette propagation dite en espace libre introduit à son tour un déphasage dont la valeur est donnée par la fonction de transfert en espace libre. Cette fonction, notée  $H$ , donne le déphasage introduit sur une distance  $z$  selon la formule suivante [99] :

$$H_z(u, v) = \exp[i \times k \times z] \times \exp[-i \times \pi \times \lambda \times z \times (u^2 + v^2)]$$

Où  $k$  est le module du vecteur d'onde ( $k = 2\pi/\lambda$  en  $m^{-1}$ ),  $u = \alpha/\lambda$  et  $v = \beta/\lambda$  ( $\alpha$  et  $\beta$  étant ici les cosinus directeurs du vecteur d'onde  $\vec{k}$  avec les vecteurs unitaires  $\vec{x}$  et  $\vec{y}$  [99])

Dans le plan  $z = D$  avant passage dans la lentille, on a alors :

$$U(r, D) = \exp\left[-\frac{r^2}{w_0^2}\right] \times \exp[i \times \Delta\varphi(r)] \times H_D(u, v)$$

- En assimilant la lentille à un objet plan contenu dans le plan  $z = D$ , cette dernière se comporte comme un objet de phase qui introduit le déphasage  $\Delta\varphi_L$  suivant :

$$\Delta\varphi_L(r) = \frac{\pi \times r^2}{\lambda \times f}$$

Où  $f$  est la distance focale de la lentille (m).

Dans le plan  $z = D$  après passage dans la lentille, on a alors :

$$U(r, D) = \exp\left[-\frac{r^2}{w_0^2}\right] \times \exp[i \times \Delta\varphi(r)] \times H_D(u, v) \times \exp\left[-i \times \frac{\pi \times r^2}{\lambda \times f}\right]$$

- Enfin, la propagation du faisceau après traversée de la lentille se caractérise à nouveau via la fonction de transfert en espace libre. L'ensemble des profils spatiaux pouvant être formés dans cette zone constitue la caustique (donnée en Figure A5-1). Pour tout faisceau se trouvant à la position  $Z$ , on a finalement :

$$U(r, Z) = \exp\left[-\frac{r^2}{w_0^2}\right] \times \exp[i \times \Delta\varphi(r)] \times H_D(u, v) \times \exp\left[-i \times \frac{\pi \times r^2}{\lambda \times f}\right] \times H_{Z-D}(u, v)$$

Remarque : dans l'expression précédente, la distinction est volontairement faite entre la fonction de transfert en espace libre entre la lame de phase et la lentille ( $H_D$ ) et celle entre la lentille et une position donnée  $Z$  sur l'axe optique ( $H_{Z-D}$ ). En toute rigueur, on a  $H_D \times H_{Z-D} = H_Z$ . L'intérêt de cette décomposition est de faire apparaître la part constante (entre lame de phase et lentille séparées d'une distance fixe) et celle variable (selon la distance parcourue depuis la lentille) de la propagation en espace libre.

Le profil spatial d'intensité du faisceau ainsi diffracté est donné par  $I(r,Z) = |U(r,Z)|^2$ . Plusieurs exemples de profils spatiaux ont été simulés sous Matlab à partir des formules ci-dessus en reprenant les paramètres de la voie top-hat :

- $w_0 = 1,625$  mm
- $\Delta\varphi = \pi$  ou 0 selon le passage dans la gravure en créneau de la lame de phase (gravure d'épaisseur  $e = 1182$  nm ; lame en silice d'indice  $n_s = 1,45$ )
- $D = 12$  cm
- $\lambda = 1054$  nm
- $f = 20$  cm

La Figure A5-5 rassemble plusieurs exemples de ces profils spatiaux simulés avec les mesures équivalentes réalisées sur la voie top-hat de DERIC.

Les simulations ont été réalisées par Florian Tournemenne.

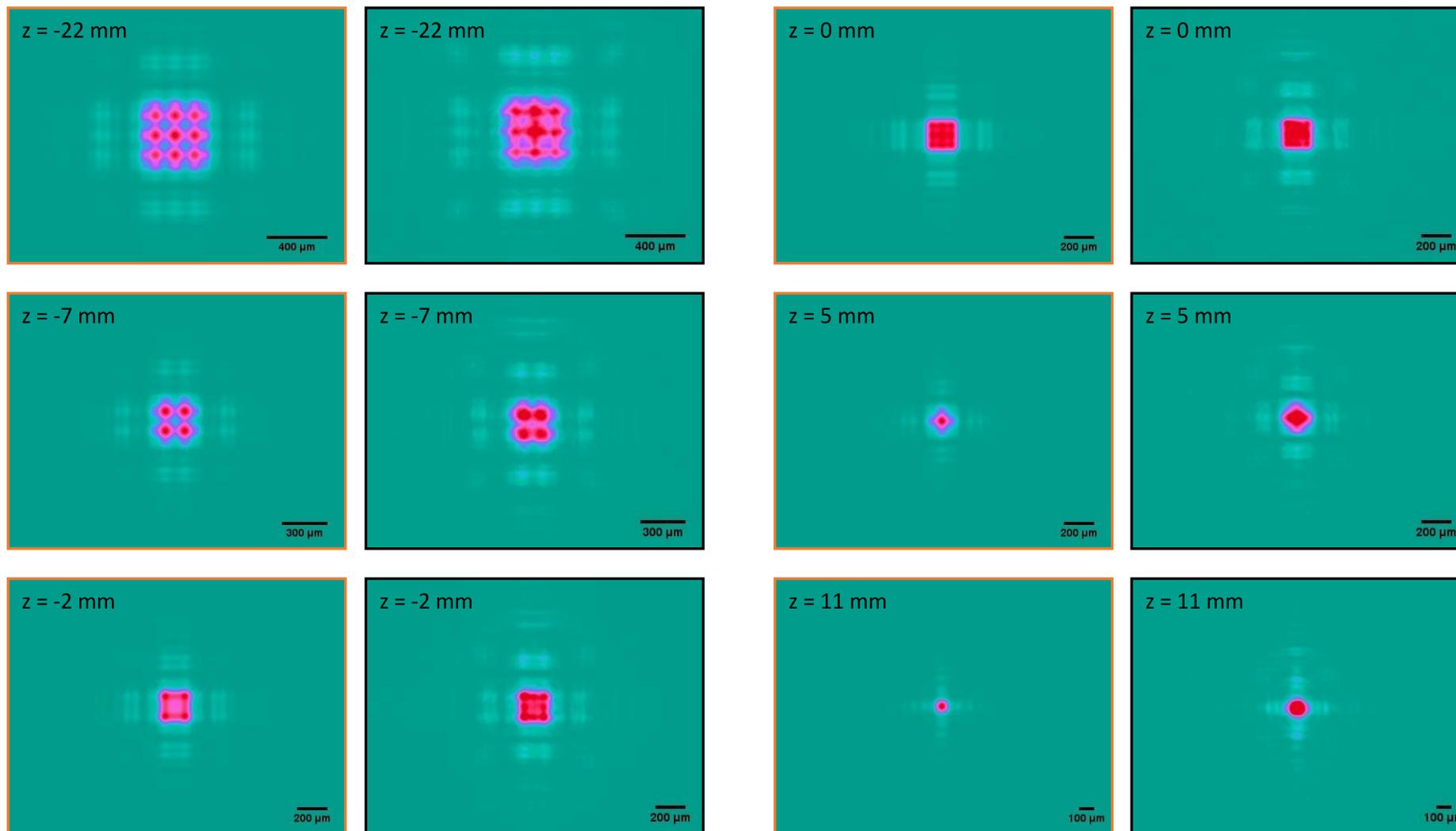


Figure A5-5 : exemples de différents profils spatiaux constituant la caustique de la voie top-hat de DERIC (images à contour noir) accompagnés de leurs équivalents simulés sous Matlab (images à contour orange). Toutes les images sont comprises dans un champ de  $2,2 \times 1,65$  mm<sup>2</sup>. Chaque image dispose de sa propre échelle d'intensité (voir Figure A5-2 pour la comparaison des intensités entre profils). Le repérage en  $z$  est identique à celui des Figures A5-1 et A5-2, le faisceau top-hat étant placé à  $z = 0$  mm.

Également, nous donnons en Figure A5-6 l'abaque constructeur de la lame de phase actuellement employée sur DERIC. Cet abaque représente la caustique attendue pour un faisceau gaussien centré à 1064 nm, de diamètre 3 mm à  $1/e^2$  traversant la lame de phase avant d'être focalisé par une lentille dont la distance focale est de 25 cm. Nous constatons que la caustique prévue par le constructeur (Figure A5-6) est quasi-confondue avec celle effectivement mesurée sur la voie top-hat (Figure A5-1) ce qui témoigne de la bonne robustesse de la lame de phase employée puisque le faisceau gaussien délivré par la source laser de DERIC n'a pas exactement les mêmes caractéristiques (longueur d'onde centrale de 1054 nm et diamètre à  $1/e^2$  de 3,25 mm) que celui prévu par le constructeur (voir ci-avant) et que la lentille utilisée sur la voie top-hat possède une focale de 20 cm.

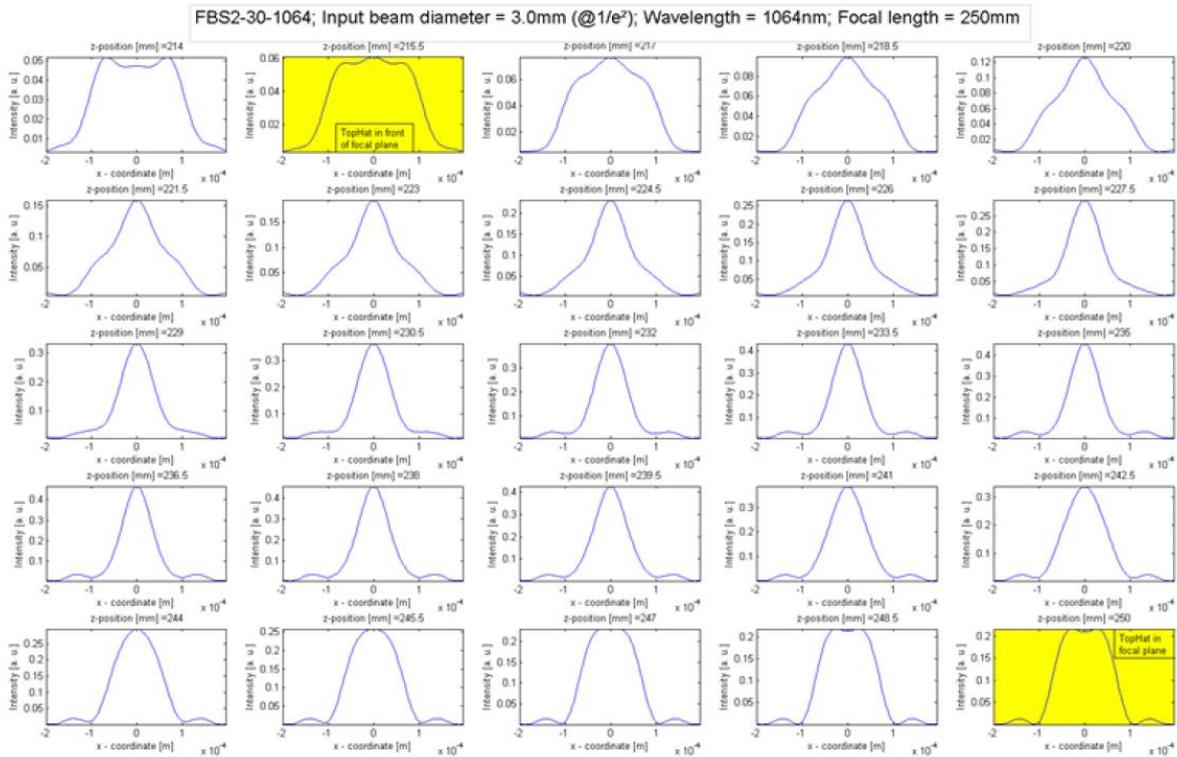


Figure A5-6 : Abaque (données constructeur) de la lame de phase employée sur la voie top-hat de DERIC. Deux faisceaux « top-hat » sont en réalité disponibles (en jaune). Nous utilisons le plus large des deux (en haut à gauche sur l'abaque) pour accroître la plage d'étude lors des expériences de croissance des dommages lasers.

## **Annexe 6 : mesures complémentaires dans le cadre de l'inter-comparaison**

Les deux parties de cette annexe sont reliées aux mesures complémentaires données en section II.B.3.c concernant l'inter-comparaison présentée au deuxième chapitre.

### 1<sup>ère</sup> partie : tenue au flux laser sous air ambiant et sous air sec

En cherchant à quantifier l'impact d'un changement de l'environnement de test sur la tenue au flux de composants diélectriques, nous avons déterminé le LIDT de monocouches de SiO<sub>2</sub> et de HfO<sub>2</sub> sous air ambiant (degré d'hygrométrie de 45%) et sous air sec (4%). Les résultats, donnés dans le tableau 2-7, sont rappelés ici dans le tableau A6-1 où nous donnons également les résultats obtenus dans les mêmes conditions pour un miroir diélectrique HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> de type quart d'onde (il s'agit du même type de miroir que celui utilisé au quatrième chapitre), les monocouches étant représentatives des couches du miroir.

Composant	F <sub>int</sub> ± σ (J/cm <sup>2</sup> )	
	Air sec	Air ambiant
Monocouche SiO <sub>2</sub>	2,86 ± 0,18	3,03 ± 0,04
Monocouche HfO <sub>2</sub>	2,06 ± 0,02	2,11 ± 0,06
Miroir HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub>	1,91 ± 0,05	2,15 ± 0,02

Tableau A6-1 : Comparatif air sec / air ambiant pour des monocouches de SiO<sub>2</sub> et de HfO<sub>2</sub> et d'un miroir constitué de ces couches. Les résultats sont exprimés en termes de fluence intrinsèque. Les valeurs pour le miroir sont similaires à celles pour la monocouche de HfO<sub>2</sub> car il s'agit du matériau limitant sur le miroir.

Des écarts respectifs de 6%, 3% et 12% sont constatés pour les monocouches de SiO<sub>2</sub>, HfO<sub>2</sub> et le miroir avec, pour l'ensemble des composants, une tenue au flux plus faible en air sec qu'en air ambiant. Un passage sous air sec a donc ici plus d'effet sur un miroir que sur une monocouche diélectrique au niveau de sa tenue au flux. Néanmoins, comme expliqué au deuxième chapitre, cela ne permet pas d'expliquer les écarts constatés lors de l'inter-comparaison (qui concerne les monocouches).

### 2<sup>ème</sup> partie : impact du profil temporel sur la tenue au flux

Comme détaillé dans la première partie du troisième chapitre, la durée d'impulsion estimée par autocorrélation ne suffit pas à expliquer à elle seule la dépendance temporelle du LIDT d'un matériau diélectrique. Cela n'est possible qu'en considérant tout le profil temporel de l'impulsion irradiante. Face à ce constat, nous avons alors cherché à quantifier, à partir du modèle numérique que nous avons développé et décrit au troisième chapitre, l'écart pouvant être causé par une variation du profil temporel dans le cas des mesures effectuées sur DERIC dans le cadre de l'inter-comparaison. La consigne était que la durée d'impulsion mesurée par autocorrélation soit de 0,8 ps. Or, les mesures de profil temporel réalisées par le diagnostic SPIRITED (voir section II.A.1.d.iii du deuxième chapitre) sur DERIC ont montré que différents profils temporels peuvent correspondre à une durée d'impulsion de 0,8 ps qui est la valeur minimale de durée d'impulsion atteignable sur DERIC. Or, pour le dièdre servant à réguler la largeur temporelle des impulsions, il existe une certaine plage de positions possibles correspondant au minimum d'impulsion (quelques centaines de micromètres sur une course totale d'environ 1 cm). Au gré des expériences menées durant cette thèse, il a été nécessaire de quitter plusieurs fois la position de dièdre correspondant au minimum de durée

d'impulsion puis de s'y replacer. Il n'est donc pas possible de garantir que le profil temporel ait toujours été le même à la meilleure compression. Nous rassemblons en Figure A6-1 les trois profils temporels mesurés au SPIRITED dont la durée d'impulsion estimée par autocorrélation est très proche de 0,8 ps.

Remarque : l'autocorrélateur employé sur DERIC estime les durées d'impulsion en supposant que les profils temporels ont une forme idéale en sécante hyperbolique carrée. Les véritables profils n'ayant pas tout à fait cette forme, les durées d'impulsions ainsi estimées ne correspondent pas exactement aux largeurs à mi-hauteur des profils (ce qui serait le cas si ces derniers étaient vraiment en forme de sécantes hyperboliques carrées).

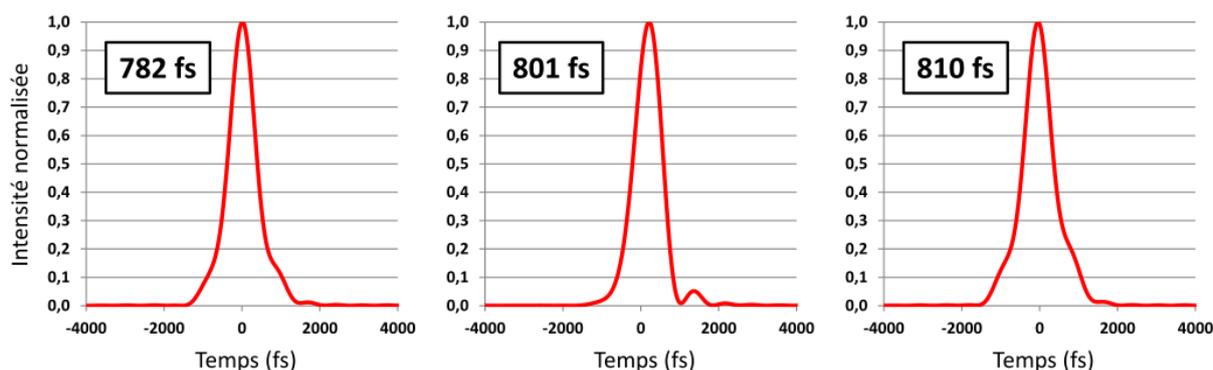


Figure A6-1 : Trois profils temporels mesurés sur DERIC à l'aide du diagnostic SPIRITED. Ces profils présentent des largeurs à mi-hauteur (encadrées en haut à gauche de chaque image) très proches de 0,8 ps, la consigne de durée d'impulsion lors de l'inter-comparaison.

Nous rassemblons dans le tableau A6-2 les valeurs numériques de LIDT obtenues à l'aide du modèle décrit au troisième chapitre pour l'ensemble des configurations demandées lors de l'inter-comparaison et les deux matériaux testés en monocouches ( $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$ ).

LIDT <sub>numérique</sub> (J/cm <sup>2</sup> )		Monocouche $\text{SiO}_2$			Monocouche $\text{HfO}_2$		
		AOI 0°	AOI 45°		AOI 0°	AOI 45°	
			Polarisation P	Polarisation S		Polarisation P	Polarisation S
FWHM (fs)	782	4,94	6,14	6,24	4,47	5,80	6,61
	801	4,67	5,80	5,90	4,36	5,66	6,44
	810	5,11	6,34	6,45	4,59	5,96	6,80

Tableau A6-2 : Valeurs de LIDT déterminées numériquement pour les trois profils temporels donnés en Figure A6-1 dans le cas des matériaux  $\text{SiO}_2$  et  $\text{HfO}_2$  déposés monocouches et pour toutes les configurations de test de l'inter-comparaison. Les profils sont désignés par leur largeur à mi-hauteur (FWHM, Full Width at Half Maximum). AOI correspond à l'angle d'incidence (Angle Of Incidence).

Nous constatons des écarts de tenue au flux de 9% avec  $\text{SiO}_2$  et de 5% avec  $\text{HfO}_2$ . Nous avons réalisé une étude similaire dans le cas d'un des partenaires de l'inter-comparaison (le laboratoire LLE, Laboratory for Laser Energetics) qui a également pu mesurer les profils temporels avec lesquels il travaille. Un écart de 20% a été obtenu avec  $\text{SiO}_2$  et de 15% avec  $\text{HfO}_2$ . Cette étude suggère ainsi fortement que les écarts constatés lors de l'inter-comparaison sont en grande partie dus aux profils temporels employés par les différents participants. Afin d'être plus affirmatif, il faudrait effectuer une nouvelle inter-comparaison dans les mêmes conditions en s'assurant cette fois que sont mesurés les profils temporels lors des tests.

## Annexe 7 : nature et réflectivité d'un miroir diélectrique quart d'onde

L'appellation « quart d'onde » d'un miroir ou plus généralement d'une couche mince renvoie à son épaisseur qui est telle que des rayons issus de plusieurs réflexions internes ressortent en phase. Cette condition est nécessaire pour obtenir ensuite des miroirs réflectifs par empilement de couches quart d'ondes. Nous détaillons ci-dessous comment retrouver l'expression d'une telle couche. Nous considérons la Figure A7-1 suivante :

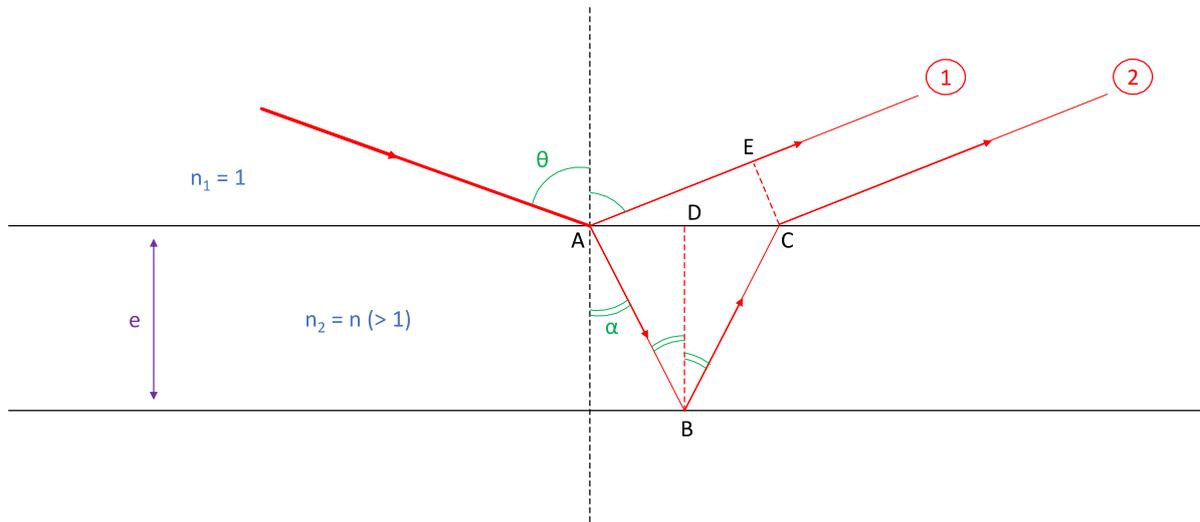


Figure A7-1 : Schéma de la traversée d'un rayon sur un dioptrisme air/matériau. L'indice de l'air vaut 1, celui du matériau vaut  $n$  avec  $n > 1$ .  $\theta$  est l'angle d'incidence et  $\alpha$  celui de réfraction.  $e$  est l'épaisseur du matériau. Les rayons ① et ② désignent les rayons issus des première et deuxième réflexions respectivement.

Les trajets des rayons ① et ② sont identiques jusqu'au point A et à partir des points E et C. Le déphasage entre ces rayons ne provient donc que des différences de chemin optique entre ces trois points. En notant  $L_2$  le chemin optique du rayon ② on a :

$$L_2 = n_2 \times (AB + BC) = 2 \times n \times AB = 2 \times n \times \frac{e}{\cos(\alpha)}$$

En notant  $L_1$  le chemin optique du rayon ① on a :

$$L_1 = n_1 \times AE - \frac{\lambda}{2} = AE - \frac{\lambda}{2}$$

Le déphasage en  $\lambda/2$  ( $\lambda$  étant la longueur d'onde du rayon incident) vient de la réflexion sur le matériau d'indice  $n$  supérieur à 1 (celui du milieu incident). Ce déphasage n'apparaît pas si la réflexion se fait sur un milieu d'indice inférieur à celui du milieu incident (et n'apparaît jamais dans le cas d'une transmission).

Dans le triangle AEC on a :  $\cos\left(\frac{\pi}{2} - \theta\right) = \frac{AE}{AC}$  d'où  $AE = 2 \times AD \times \sin(\theta)$

D'autre part, dans le triangle ADB on a :  $e \times \tan(\alpha) = AD$

La loi de Snell-Descartes donne par ailleurs :  $\sin(\theta) = n \times \sin(\alpha)$

On en déduit :

$$AE = 2 \times e \times \tan(\alpha) \times \sin(\theta) = 2 \times n \times e \times \frac{\sin^2(\alpha)}{\cos(\alpha)}$$

En notant  $\delta$  la différence de chemin optique (ou différence de marche) on a :

$$\delta = L_2 - L_1 = 2 \times n \times \frac{e}{\cos(\alpha)} - 2 \times n \times e \times \frac{\sin^2(\alpha)}{\cos(\alpha)} + \frac{\lambda}{2}$$

$$\delta = \frac{2 \times n \times e}{\cos(\alpha)} \times (\sin^2(\alpha) - 1) + \frac{\lambda}{2} = \frac{\lambda}{2} - 2 \times n \times e \times \cos(\alpha)$$

Les rayons ① et ② ressortent alors en phase (interférences constructives) seulement si  $\delta$  vaut un multiple entier de la longueur d'onde  $\lambda$  :  $\delta = m \times \lambda$  avec  $m$  entier.

La première solution est alors  $\delta = 0$  ( $m = 0$ ) ce qui donne :

$$n \times e \times \cos(\alpha) = \frac{\lambda}{4}$$

Une couche mince d'indice  $n$  est ainsi dite quart d'onde à la longueur d'onde  $\lambda$  pour un angle d'incidence  $\theta$  tel que  $\sin(\theta) = n \times \sin(\alpha)$  lorsque son épaisseur  $e$  respecte la condition ci-dessus. Un miroir quart d'onde est un empilement de couches minces quart d'ondes, classiquement une alternance entre une couche mince d'indice élevé (matériau d'indice haut, souvent  $\text{HfO}_2$ ) et une couche mince d'indice faible (matériau d'indice bas, souvent  $\text{SiO}_2$ ). L'aspect quart d'onde d'un miroir est une des conditions nécessaire à remplir pour assurer sa réflectivité (la différence ou contraste d'indice entre les matériaux haut et bas tout comme le nombre de couches utilisées sont également cruciaux).

Pour un miroir donné, sa réflectivité est aussi impactée par la polarisation de la lumière incidente ainsi que par l'angle d'incidence. Nous donnons en Figure A7-2 plusieurs exemples de courbes de réflectivité à différents angles et pour les polarisations S et P pour un miroir diélectrique dont la structure est la suivante :

$$[\text{UVFS} / (\text{HB})^{17} \text{H} 2\text{B} / \text{Air}]$$

où H désigne le matériau de haut indice ( $\text{HfO}_2$ ) et B celui de bas indice ( $\text{SiO}_2$ ). Il s'agit du même miroir que celui présenté en section III.A au troisième chapitre.

Le miroir est construit pour être réflectif à 1053 nm pour une incidence de  $45^\circ$  et une polarisation S. Nous voyons en Figure A7-2(a) que cela est bien le cas ( $R > 99,9\%$ ) et que le miroir est par ailleurs également réflectif pour la polarisation P à cet angle ( $R > 99\%$ ). Les Figures A7-2(a) et A7-2 (b) illustrent d'une part comment la gamme de réflectivité maximale est plus large en polarisation S qu'en polarisation P pour ce miroir pour toute incidence non nulle et d'autre part que cet écart est d'autant plus faible que l'angle d'incidence est petit (la gamme de réflectivité maximale en polarisation S diminue alors que celle en P augmente, les courbes de réflectivité se confondant à incidence nulle). Une diminution de l'angle d'incidence décale aussi la courbe de réflectivité vers les grandes longueurs d'onde comme l'illustre en particulier la Figure A7-2(c). Enfin, on peut remarquer que ce miroir reste réflectif à 1053 nm pour une large gamme d'angle d'incidence (au moins entre  $0^\circ$  et  $45^\circ$ ) et à chaque fois pour les polarisations P comme S.

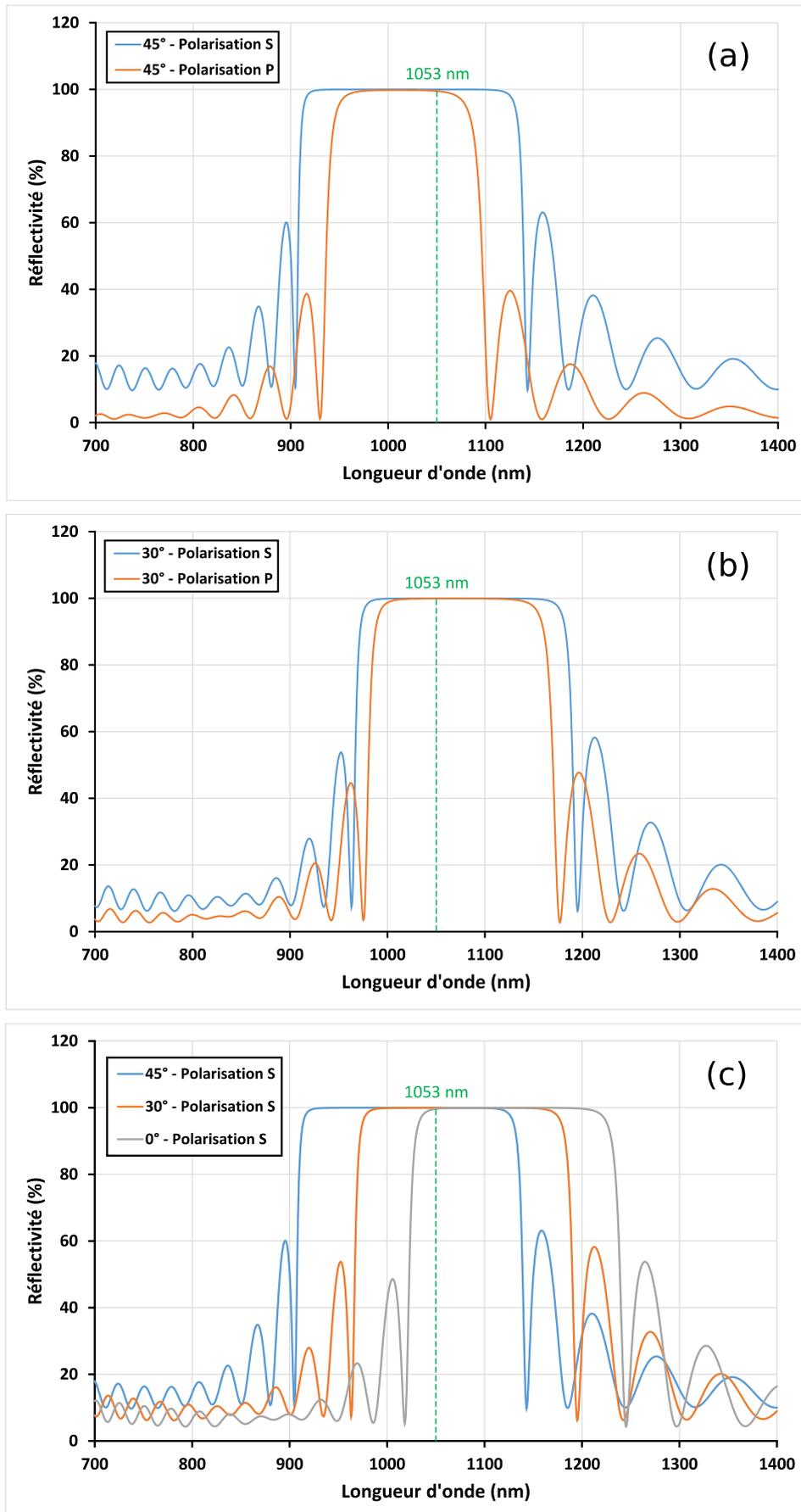


Figure A7-2 : Réflectivité du miroir considéré ci-dessus pour (a) une incidence de 45° en polarisation P et S, (b) une incidence de 30° en polarisation P et S et (c) des incidences de 0°, 30° et 45° en polarisation S.

Enfin, nous donnons en Figure A7-3 les courbes de réflectivité en polarisation P et S du type de miroir diélectrique utilisé au quatrième chapitre. La structure de ce type de miroir est :

[BK7 / (BH)<sup>15</sup> / Air]

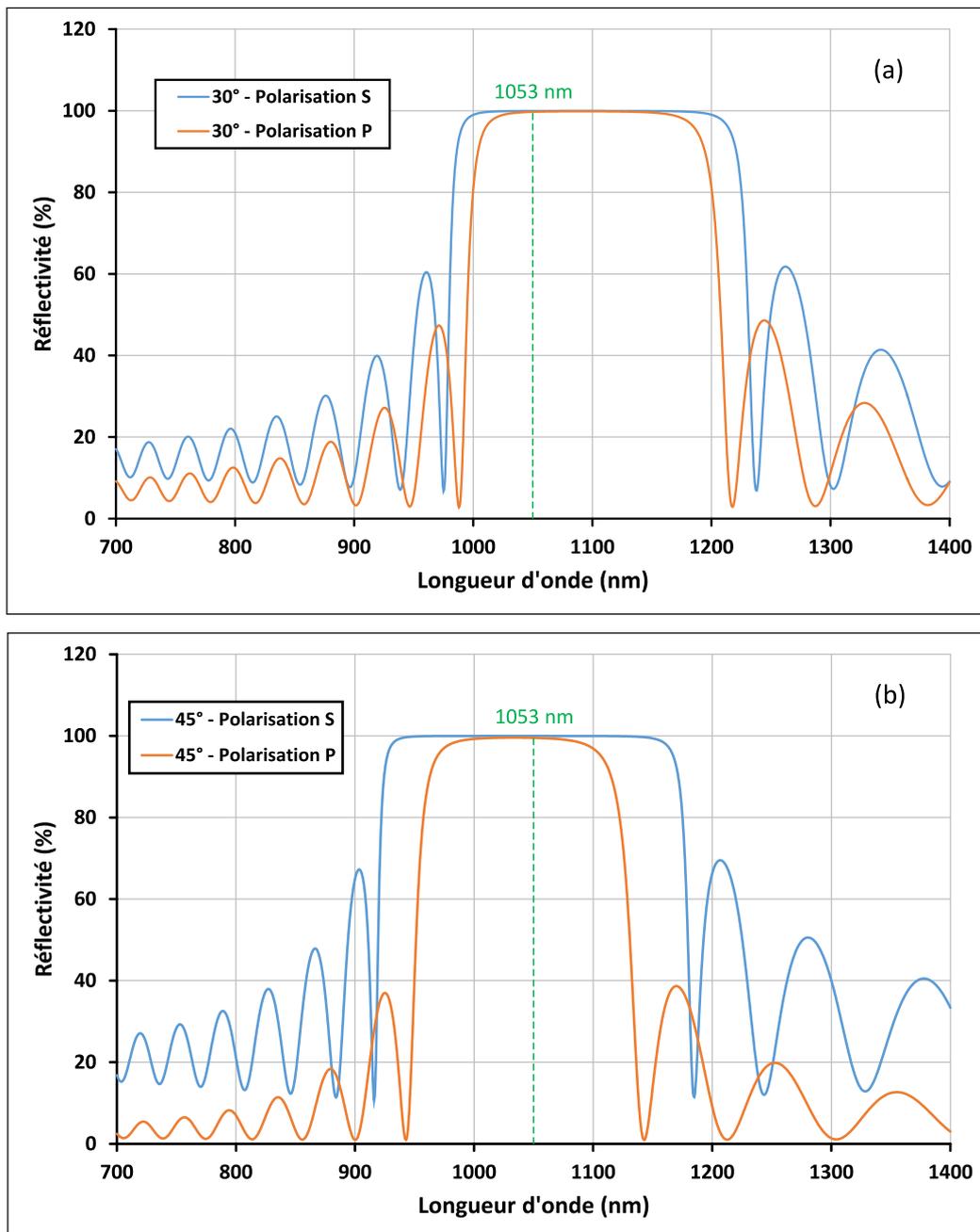


Figure A7-3 : Courbes de réflectivité des miroirs considérés au quatrième chapitre. (a) Incidence de 30°. (b) Incidence de 45°.

À 30° d'incidence et 1053 nm, la réflectivité est de 99,97% en polarisation S et de 99,77% en polarisation P. À 45° d'incidence et 1053 nm, la réflectivité est de 99,99% en polarisation S et de 99,51% en polarisation P.

## **Annexe 8 : éléments en lien avec l'étude de la croissance des dommages lasers sur la voie top-hat de DERIC**

Cette annexe se divise en trois parties dont toutes ont rapport aux études de croissance des dommages présentées au quatrième chapitre.

### 1<sup>ère</sup> partie : impact du taux de répétition

Le phénomène de croissance des dommages lasers impliquant un grand nombre d'irradiations, nous avons souhaité vérifier qu'un taux de répétition restant de l'ordre du Hz ou de la dizaine de Hz n'impacte pas ce phénomène. Nous avons donc comparé des séquences de croissance réalisées dans les mêmes conditions mis à part le taux de répétition qui est soit de 10 Hz soit de 0,5 Hz. Les résultats sont donnés en Figure A8-1.

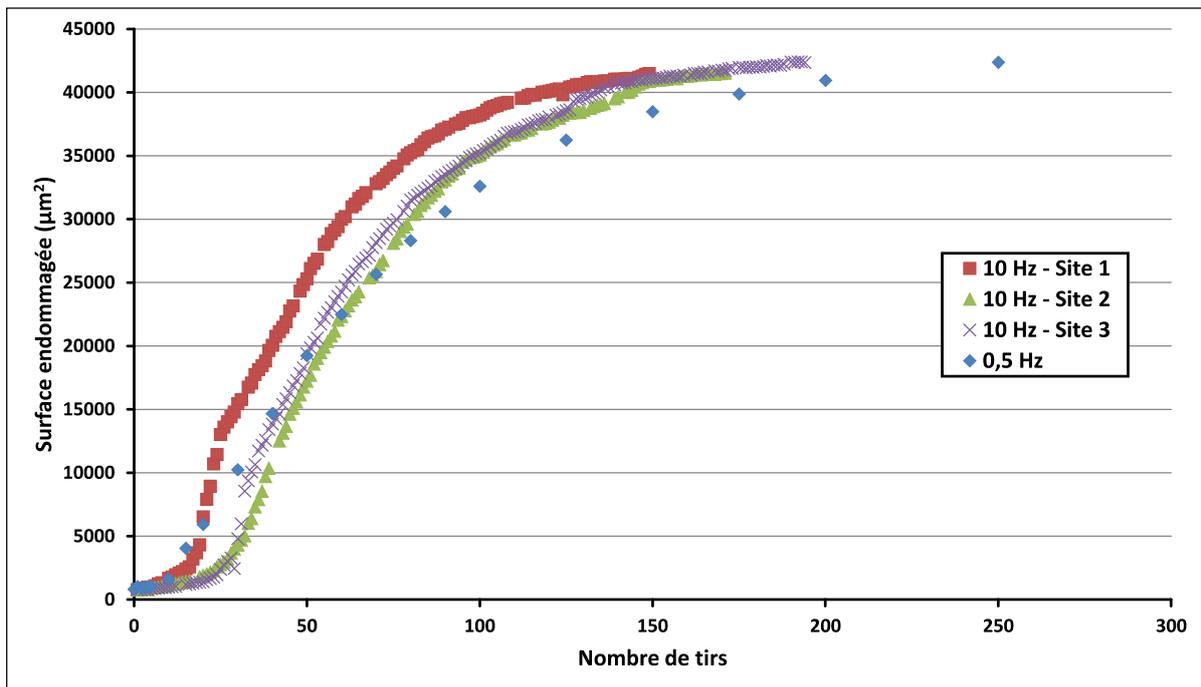


Figure A8-1 : Évolution de la surface endommagée d'amorces identiques et irradiés par un faisceau top-hat dont la fluence d'irradiation est à 90% du LIDT. Trois séquences de croissance ont été effectuées à 10 Hz et une à 0,5 Hz. Aucune différence n'est constatée.

Aucune différence notable n'est constatée. Ainsi, toutes les expériences de croissance présentées au quatrième chapitre ont été réalisées à 10 Hz.

### 2<sup>ème</sup> partie : positionnement relatif de l'amorce au sein de la surface irradiée

Le faisceau top-hat disponible sur DERIC n'est pas parfaitement homogène. De forme carrée, sa densité surfacique d'énergie est plus faible sur ses bords qu'en son centre. Nous avons mis en lumière cet effet pénalisant pour l'étude de la croissance (l'objectif étant d'étudier ce phénomène avec un faisceau aussi homogène que possible) en plaçant volontairement les amorces servant à initier la croissance à gauche, au centre et à droite de la surface irradiée par le faisceau top-hat. Les résultats sont donnés en Figure A8-2.

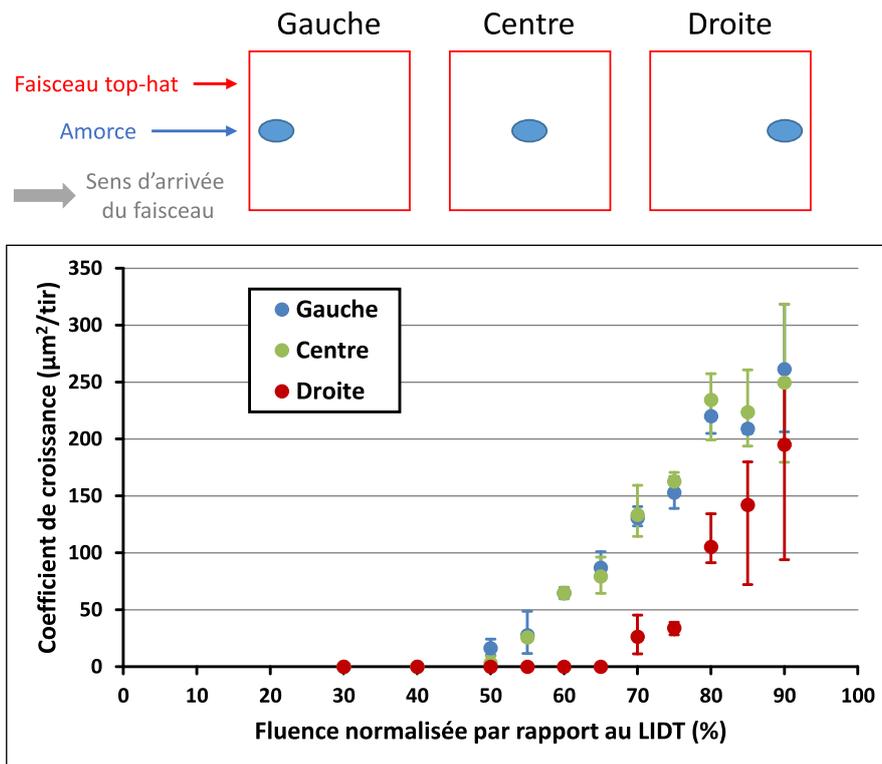


Figure A8-2 : Évolution du coefficient de croissance selon plusieurs fluences et selon un positionnement variable de l'amorce dans la surface irradiée par le faisceau top-hat.

La grandeur d'intérêt est ici la fluence seuil de croissance c'est-à-dire la fluence à partir de laquelle la croissance a lieu ce qui se traduit par un coefficient de croissance non nul. Si le faisceau top-hat était parfaitement homogène, le même seuil de croissance serait observé quel que soit le positionnement de l'amorce en particulier même si celle-ci est située sur la droite de la surface irradiée alors que le faisceau arrive par la gauche (cas schématisé en Figure A8-2). Or les résultats montrent bien que ce n'est pas le cas : la fluence seuil de croissance est plus élevée pour l'amorce située sur la droite ce qui montre que les bords du faisceau sont moins énergétiques que le centre. Le fait que les cas où l'amorce est située à gauche et au centre soient identiques illustrent que les bords en question où la densité surfacique est moins élevée restent assez étroits relativement à la taille du faisceau. La marge d'erreur de positionnement au centre reste ainsi confortable.

### 3<sup>ème</sup> partie : phénomène de défocalisation par changement de durée d'impulsion

Lors de l'étude de la dépendance temporelle du phénomène de croissance des dommages lasers, nous avons fait face à une difficulté propre à la voie top-hat : lorsque la durée d'impulsion est modifiée, une modification de la caustique du faisceau devient visible mais uniquement sur la voie échantillon. Cette modification ne modifie ni la nature ni l'ordre des profils spatiaux formés mais seulement les distances de focalisation auxquelles ils se forment. Ce phénomène spatio-temporel non-linéaire est appelé défocalisation et est illustré en Figure A8-3 où nous avons comparé les formes de dommages obtenues en surface de miroirs diélectriques lors de tirs Monoshot réalisés à incidence nulle pour trois énergies et trois positions d'échantillon données à 0,8 ps et 3,0 ps.

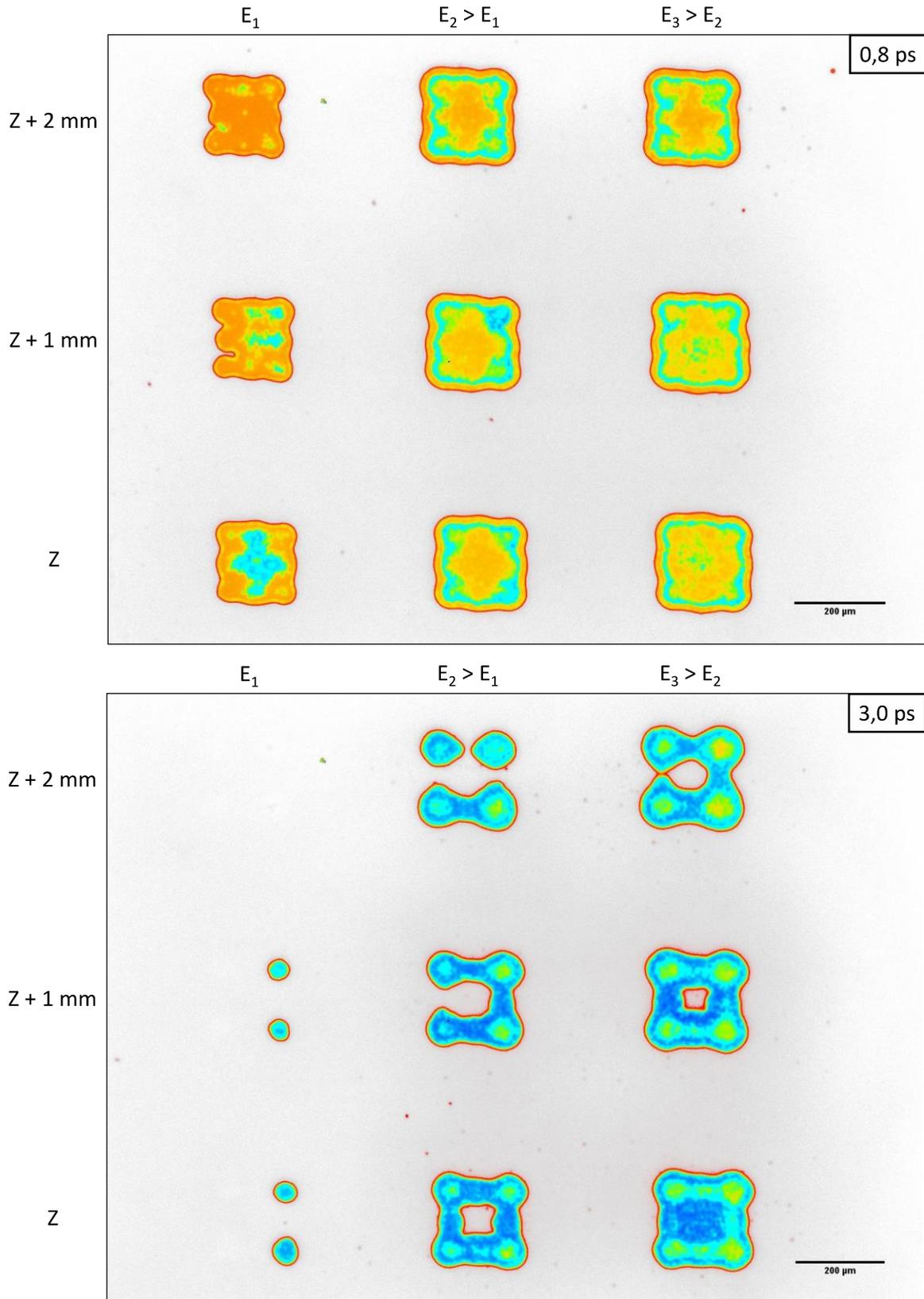


Figure A8-3 : Illustration du phénomène de défocalisation sur la voie top-hat de DERIC par changement de durée d'impulsion. Z désigne une position donnée de l'échantillon sur l'axe optique, un décalage de + 1 mm signifiant un déplacement de l'échantillon vers la lentille.  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $E_3$  désignent trois énergies données croissantes. Tous les tirs ont été effectués à incidence nulle pour bien imprimer le faisceau. En passant de 0,8 ps à 3,0 ps (tous les autres paramètres restant inchangés), on observe qu'à position et énergie données, le profil spatial du faisceau irradiant change.

Nous avons estimé que la défocalisation est d'environ 7 mm en passant de 0,8 ps à 3,0 ps sur la voie échantillon ce qui très problématique. Également, le sens de défocalisation se visualise bien en considérant par exemple l'évolution de la forme du dommage situé en bas à droite dans la Figure A8-3 ; on retrouve un profil type « top-hat » à 0,8 ps et type « matrice » à 3,0 ps. Or, comme illustré au deuxième chapitre en Figure 2-21, les profils type « matrice » sont les premiers à se former dans la zone de focalisation en suivant le sens de propagation du laser. La défocalisation a ainsi lieu de la manière suivante : plus la durée d'impulsion augmente, plus les profils spatiaux de la caustique se forment loin de la lentille de focalisation. Ce phénomène oblige à localiser de nouveau sur la voie échantillon les profils d'intérêt pour étudier la croissance des dommages (top-hat et étoile typiquement) dès que la durée d'impulsion est modifiée.

Comme indiqué précédemment, la défocalisation par changement de durée d'impulsion ne s'est manifesté de manière notable que sur la voie échantillon. De plus, la problématique de la défocalisation avait déjà été rencontrée sur la voie prélèvement tout comme sur la voie échantillon dès la mise en place de la voie top-hat en 2016 [22] : une première version de cette voie subissait ce phénomène à 0,8 ps par simple modification de la fluence de l'impulsion et ce, de manière équivalente entre les voies prélèvement et échantillon ce qui montrait que cette sensibilité à un changement de fluence venait des optiques situées avant la séparatrice. Une très forte atténuation de cette défocalisation en fluence (au moins au point de ne plus la détecter sur caméra) avait alors été constatée en plaçant la lame de phase entre la lame demi-onde et le polariseur servant à réguler l'énergie et donc la fluence sur échantillon : la lame de phase est ainsi toujours traversée par des impulsions de même fluence, à savoir la fluence maximale autorisée par la source laser, et le réglage en fluence sur échantillon est toujours possible. Cette nouvelle configuration correspond à celle utilisée durant cette thèse (voir Figure 2-1). Néanmoins, l'impact de la durée d'impulsion sur la défocalisation n'avait alors pas été étudié. Nos études montrent ainsi que ce phénomène y est également sensible et ce, de manière non-équivalente entre les voies échantillon et prélèvement. Cela montre que le problème vient pas ici des optiques situées avant la séparatrice et qu'il faut se pencher sur les différences entre les deux voies c'est-à-dire à partir de la séparatrice. Les deux voies se distinguent déjà par leurs niveaux d'énergies différents : sur la voie échantillon, l'énergie est par définition du même ordre de grandeur qu'en sortie de source à savoir de l'ordre du millijoule. En revanche, la voie prélèvement n'est, comme son nom l'indique, traversée que par une fraction de l'énergie délivrée par la source, de l'ordre de la dizaine de microjoule puis de la centaine de nanojoules une fois le faisceau prélevé passé à travers le couple demi-onde / polariseur de cette voie. Également, le faisceau allant sur la voie échantillon traverse la séparatrice alors que celui visualisé sur la voie prélèvement est directement issu de la réflexion en face avant de la séparatrice. Nous pensons donc que la défocalisation est sensible à l'intensité des impulsions et que ce phénomène est donc plus marqué sur la voie échantillon où les intensités sont plus importantes que sur la voie prélèvement. Des analyses restent cependant à mener pour être plus affirmatif à ce sujet. De manière plus pratique, il faudrait commencer par affiner la valeur de la défocalisation en fonction de la durée d'impulsion pour retrouver plus facilement le faisceau top-hat.

## Références bibliographiques

- [1] A. Einstein, « The Quantum Theory of Radiation », *Physikalische Zeitschrift*, vol. 18, p. 1-15, 1917.
- [2] T. H. Maiman, « Stimulated Optical Radiation in Ruby », *Nature*, vol. 187, p. 493-494, 1960.
- [3] A. Javan, W. R. Bennett, Jr., et D. R. Herriott, « Population inversion and continuous optical maser oscillation in a gas discharge containing a He-Ne mixture », *Physical Review Letters*, vol. 6, p. 106-110, 1961.
- [4] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, et R. O. Carlson, « Coherent Light Emission From GaAs Junctions », *Physical Review Letters*, vol. 9, p. 366, 1962.
- [5] C. K. N. Patel, « Continuous-Wave Laser Action on Vibrational-Rotational Transitions of CO<sub>2</sub> », *Physical Review*, vol. 136, p. A1187, 1964.
- [6] P. P. Sorokin et J. R. Lankard, « Stimulated Emission Observed from an Organic Dye, Chloro-aluminium Phthalocyanine », *IBM Journal of Research and Development*, vol. 10, 1966.
- [7] F. J. McClung et R. W. Hellwarth, « Giant Optical Pulsations from Ruby », *Journal of Applied Physics*, vol. 33, p. 828, 1962.
- [8] P. Moulton, « Ti-doped sapphire: tunable solid-state laser », *Optics News*, vol. 8, p. 9, 1982.
- [9] D. Strickland et G. Mourou, « Compression of amplified chirped optical pulses », *Optics Communications*, vol. 55, p. 447-449, 1985.
- [10] C. N. Danson, C. Haefner, J. Bromage, T. Butcher, J.-C. F. Canteloup, E. A. Chowdhury, A. Galvanauskas, L. A. Gizzi, J. Hein, D. I. Hillier, N. W. Hopps, Y. Kato, E. A. Khazanov, R. Kodama, G. Korn, R. Li, Y. Li, J. Limpert, J. Ma, C. H. Nam, D. Neely, D. Papadopoulos, R. R. Penman, L. Qian, J. J. Rocca, A. A. Shaykin, C. W. Siders, C. Spindloe, S. Szatmari, R. M. G. M. Trines, J. Zhu, P. Zhu et J. D. Zuegel, « Petawatt and exawatt class lasers worldwide », *High Power Laser Science and Engineering*, vol. 7, p. 1-54, 2019.

- [11] C. Danson, D. Hillier, N. Hopps, et D. Neely, « Petawatt class lasers worldwide », *High Power Laser Science and Engineering*, vol. 3, p. e3(14), 2015.
- [12] N. Blanchot, G. Béhar, J. C. Chapuis, C. Chappuis, S. Chardavoine, J. F. Charrier, H. Coïc, C. Damiens-Dupont, J. Duthu, P. Garcia, J. P. Goossens, F. Granet, C. Grosset-Grange, P. Guerin, B. Hebrard, L. Hilsz, L. Lamaignère, T. Lacombe, E. Lavastre, T. Longhi, J. Luce, F. Macias, M. Mangeant, E. Mazataud, B. Minou, T. Morgaint, S. Noailles, J. Neauport, P. Patelli, E. Perrot-Minnot, C. Present, B. Remy, C. Rouyer, N. Santacreu, M. Sozet, D. Valla et F. Laniesse, « 1.15 PW-850 J compressed beam demonstration using the PETAL facility », *Optics Express*, vol. 25, p. 16957-16970, 2017.
- [13] M. Sozet, J. Néauport, É. Lavastre, N. Roquin, L. Gallais, et L. Lamaignère, « Laser damage growth with picosecond pulses », *Optics Letters*, vol. 41, p. 2342-2345, 2016.
- [14] M. Sozet, S. Bouillet, J. Berthelot, J. Néauport, L. Lamaignère, et L. Gallais, « Sub-picosecond laser damage growth on high reflective coatings for high power applications », *Optics Express*, vol. 25, p. 25767-25781, 2017.
- [15] N. Blanchot, E. Bar, G. Behar, C. Bellet, D. Bigourd, F. Boubault, C. Chappuis, H. Coïc, 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*, vol. 18, p. 10088-10097, 2010.
- [16] E. Hugonnot, G. Deschaseaux, O. Hartmann, et H. Coïc, « Design of PETAL multipetawatt high-energy laser front end based on optical parametric chirped pulse amplification », *Applied Optics*, vol. 46, p. 8181-8187, 2007.
- [17] H. Coïc, J.-P. Airiau, N. Blanchot, E. Bordenave, et C. Rouyer, « Modeling of the petawatt PETAL laser chain using Miro code », *Applied Optics*, vol. 56, p. 9491-9501, 2017.
- [18] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, et G. Mourou, « Generation of Ultrahigh Peak Power Pulses by Chirped Pulse Amplification », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 24, p. 398-403, 1988.
- [19] E. B. Treacy, « Optical Pulse Compression With Diffraction Gratings », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 5, p. 454-458, 1969.
- [20] G. Cheriaux, P. Rousseau, F. Salin, J. P. Chambaret, B. Walker, et L. F. Dimauro, « Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification », *Optics Letters*, vol. 21, p. 414-416, 1996.

- [21] Amandine Renault, « Étude et réalisation de la pré-amplification d'impulsions à dérive de fréquence par amplification paramétrique optique », Thèse de Doctorat de l'École Polytechnique, 2006.
- [22] Martin Sozet, « Étude de l'endommagement laser de composants réfléchissants en régime sub-picoseconde », Thèse de l'Université d'Aix-Marseille, 2016.
- [23] Marine Chorel, « Étude des traitements multicouches utilisés dans un environnement à faible hygrométrie sur les installations laser de puissance », Thèse de l'Université de Bordeaux, 2019.
- [24] « ISO Standard Nos. 21254-1-21254-4 ». 2011.
- [25] L. Gallais et M. Commandré, « Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030 nm, 500 fs », *Applied Optics*, vol. 53, p. A186-A196, 2014.
- [26] Benoit Mangote, « Tenue au flux des couches minces optiques en régime subpicoseconde », Thèse de l'Université Paul Cézanne - Aix Marseille III, 2011.
- [27] G. Petite, « Mécanismes fondamentaux de l'ablation laser femtoseconde en "flux intermédiaire" ». *Lasers et Technologies Femtosecondes* ; édités par M. Sentis, O. Uteza (LP3, UMR 7341) et S. Mottin (LHC, UMR 5516), 2005.
- [28] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, et G. Simon, « Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses », *Physical Review B*, vol. 61, p. 11437-11450, 2000.
- [29] L. V. Keldysh, « Ionization in the field of a strong electromagnetic wave », *Soviet Physics JETP*, vol. 20, p. 1307-1314, 1965.
- [30] A-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Mumane, et G. Mourou, « Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration », *Physical Review Letters*, vol. 82, p. 3883-3886, 1999.
- [31] L. Gallais, « Endommagement laser des matériaux et composants optiques - Mécanismes physiques ». École Thématique du CNRS Laser & Applications en Emergence (Laser'ApE), 2017.
- [32] B. H. Christensen et P. Balling, « Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials », *Physical Review B*, vol. 79, p. 155424(10), 2009.

- [33] L. Gallais, D.-B. Douti, M. Commandré, G. Bataviciute, E. Pupka, M. Sciuka, L. Smalakys, V. Sirutkaitis et A. Melninkaitis, « Wavelength dependence of femtosecond laser-induced damage threshold of optical materials », *Journal of Applied Physics*, vol. 117, p. 223103(14), 2015.
- [34] B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, et G. Simon, « Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation », *Physical Review B*, vol. 65, p. 214303(11), 2002.
- [35] K. Starke, D. Ristau, H. Welling, T. V. Amotchkina, M. Trubetskov, A. A. Tikhonravov et A. S. Chirkin, « Investigations in the nonlinear behavior of dielectrics by using ultrashort pulses », *Proceedings of SPIE*, vol. 5273, p. 501-514, 2004.
- [36] P. Balling et J. Schou, « Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics: basics and applications for thin films », *Reports on Progress in Physics*, vol. 76, p. 036502(39), 2013.
- [37] 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*, vol. 79, p. 767-769, 2004.
- [38] 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*, vol. 71, p. 115109(7), 2005.
- [39] B. Rethfeld, O. Brenk, N. Medvedev, H. Krutsch, et D. H. H. Hoffmann, « Interaction of dielectrics with femtosecond laser pulses: application of kinetic approach and multiple rate equation », *Applied Physics A*, vol. 101, p. 19-25, 2010.
- [40] P. Martin, S. Guizard, Ph. Daguzan, G. Petite, P. D'Oliveira, P. Meynadier et M. Perdrix, « Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals », *Physical Review B*, vol. 55, p. 5799-5810, 1997.
- [41] 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*, vol. 53, p. 1749-1761, 1996.
- [42] B. Rethfeld, « Unified Model for the Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics », *Physical Review Letters*, vol. 92, p. 187401(4), 2004.
- [43] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek et F. Krausz, « Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics », *Physical Review Letters*, vol. 80, p. 4076-4079, 1998.

- [44] Nicolas Sanner, « Mise en forme programmable de faisceau laser femtoseconde pour le micro-usinage et la photoinscription de guides d'ondes. », Thèse de l'Université Jean Monnet - Saint-Étienne, 2005.
- [45] 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*, vol. 63, p. 045117(5), 2001.
- [46] 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*, vol. 62, p. 13167-13173, 2000.
- [47] Romain Diaz, « Métrologie de l'endommagement laser de composants optiques en silice en régime nanoseconde », Thèse de l'Université d'Aix-Marseille, 2015.
- [48] Matthieu Veinhard, « Endommagement surfacique de la silice avec des faisceaux laser type LMJ », Thèse de l'Université d'Aix-Marseille, 2019.
- [49] A. During, M. Commandré, C. Fossati, B. Bertussi, J.-Y. Natoli, J.-L. Rullier, H. Bercegol et P. Bouchut, « Integrated photothermal microscope and laser damage test facility for in-situ investigation of nanodefekt induced damage », *Optics Express*, vol. 11, p. 2497-2501, 2003.
- [50] « TFCalc software, <http://www.sspectra.com/> ».
- [51] M. Chorel, T. Lanternier, É. Lavastre, N. Bonod, B. Bousquet, et J. Néauport, « Robust optimization of the laser-induced damage threshold of dielectric mirrors for high power lasers », *Optics Express*, vol. 26, p. 11764-11774, 2018.
- [52] C. J. Stolz, R. J. Tench, M. R. Kozlowski, et A. Fournier, « A comparison of nodular defect seed geometries from different deposition techniques », *Proceedings of SPIE*, vol. 2714, p. 374-382, 1996.
- [53] 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*, vol. 53, p. A291-A296, 2014.
- [54] R. L. Acree, J. E. Heebner, M. A. Prantil, J. M. Halpin, T. S. Budge, L. A. Novikova, R. Sigurdsson et L. J. Pelz, « Pulse contrast measurement on the NIF Advanced Radiographic Capability (ARC) laser system », *Proceedings of SPIE*, vol. 10084, p. 1008406(6), 2017.

- [55] M. Sozet, J. Néauport, É. Lavastre, N. Roquin, L. Gallais, et L. Lamaignère, « Laser damage density measurement of optical components in the sub-picosecond regime », *Optics Letters*, vol. 40, p. 2091-2094, 2015.
- [56] C. J. Stolz, S. Hafeman, et T. V. Pistor, « Light intensification modeling of coating inclusions irradiated at 351 nm and 1053 nm », *Applied Optics*, vol. 47, p. C162-C166, 2008.
- [57] 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*, vol. 39, p. 1545-1548, 2014.
- [58] W. Ensinger, « Ion sources for ion beam assisted thin-film deposition », *Review of Scientific Instruments*, vol. 63, p. 5217-5233, 1992.
- [59] K. H. Guenther, « Microstructure of vapor-deposited optical coatings », *Applied Optics*, vol. 23, p. 3806-3816, 1984.
- [60] 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*, vol. 44(5), p. 051107(7), 2005.
- [61] 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*, vol. 108, p. 043523(7), 2010.
- [62] H. Varel, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, R. Hermann, F. Noack, et E. E. B. Campbell, « Laser-induced damage in SiO<sub>2</sub> and CaF<sub>2</sub> with picosecond and femtosecond laser pulses », *Applied Physics A*, vol. 62, p. 293-294, 1996.
- [63] R. A. Negres, C. W. Carr, T. A. Laurence, K. Stanion, G. Guss, D. A. Cross, P. J. Wegner et C. J. Stolz, « Laser-induced damage of intrinsic and extrinsic defects by picosecond pulses on multilayer dielectric coatings for petawatt-class lasers », *Optical Engineering*, vol. 56, p. 011008(9), 2016.
- [64] M. Raghuramaiah, A. K. Sharma, P. A. Naik, P. D. Gupta, et R. A. Ganeev, « A second-order autocorrelator for single-shot measurement of femtosecond laser pulse durations », *Sādhanā*, vol. 26, p. 603-611, 2001.
- [65] J. Collier, C. Hernandez-Gomez, R. Allott, C. Danson, et A. Hall, « A single-shot third-order autocorrelator for pulse contrast and pulse shape measurements », *Laser and Particle Beams*, vol. 19, p. 231-235, 2001.

- [66] J.-C. Diels et W. Rudolph, « Ultrashort Laser Pulse Phenomena ». Elsevier, 2006.
- [67] 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*, vol. 81, p. 053105(5), 2010.
- [68] M. Sozet, « Étude de l'endommagement laser de composants réfléchissants en régime sub-picoseconde ». Thèse de l'Université d'Aix Marseille, 2016.
- [69] C. Fiorini, C. Sauteret, C. Rouyer, N. Blanchot, S. Seznec, et A. Migus, « Temporal Aberrations Due to Misalignments of a Stretcher-Compressor System and Compensation », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 30, p. 1662-1670, 1994.
- [70] S. Reyné, « Études multi-longueurs d'onde de l'endommagement laser des cristaux de KDP en régime nanoseconde. » Thèse de l'Université d'Aix Marseille, 2011.
- [71] J. Néauport, E. Lavastre, G. Razé, G. Dupuy, N. Bonod, M. Balas, G. de Villele, J. Flamand, S. Kaladgew, F. Desserouer, « Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings », *Optics Express*, vol. 15, p. 12508-12522, 2007.
- [72] R. W. Boyd, S. G. Lukishova, et Y. R. Shen, *Self-focusing: Past and Present. Fundamentals and Prospects*, vol. 114. Springer, 2009.
- [73] T. A. Laurence, R. A. Negres, S. Ly, N. Shen, C. W. Carr, D. A. Alessi, A. Rigatti et J. D. Bude, « The role of defects in laser-induced modifications of silica coatings and fused silica using picosecond pulses at 1053 nm: II. Scaling laws and density of precursors », *Optics Express*, vol. 25, p. 15381-15401, 2017.
- [74] M. Sozet, J. Néauport, É. Lavastre, N. Roquin, L. Gallais, et L. Lamaignère, « Assessment of mono-shot measurement as a fast and accurate determination of the laser-induced damage threshold in the sub-picosecond regime », *Optics Letters*, vol. 41, p. 804-807, 2016.
- [75] S. M. Eaton, H. Zhang, P. R. Herman, F. Yoshino, L. Shah, J. Bovatsek et A. Y. Arai, « Heat accumulation effects in femtosecond laser-written waveguides with variable repetition rate », *Optics Express*, vol. 13, p. 4708-4716, 2005.
- [76] J. Hue, P. Garrec, J. Dijon, et P. Lyan, « R-on-1 automatic mapping: a new tool for laser damage testing », *Proceedings of SPIE*, vol. 2714, p. 90-101, 1996.
- [77] J. Hue, J. Dijon, et P. Lyan, « CMO YAG laser damage test facility », *Proceedings of SPIE*, vol. 2714, p. 102-113, 1996.

- [78] D. A. Alessi, C. W. Carr, R. P. Hackel, R. A. Negres, K. Stanion, J. E. Fair, D. A. Cross, J. Nissen, R. Luthi, G. Guss, J. A. Britten, W. H. Gourdin et C. Haefner, « Picosecond laser damage performance assessment of multilayer dielectric gratings in vacuum », *Optics Express*, vol. 23, p. 15532-15544, 2015.
- [79] R. Diaz, « Métrologie de l'endommagement laser de composants optiques en silice en régime nanoseconde ». Thèse de l'Université d'Aix Marseille, 2015.
- [80] L. Lamainière, 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*, vol. 78, p. 103105(9), 2007.
- [81] D. J. Kane et R. Trebino, « Characterization of Arbitrary Femtosecond Pulses Using Frequency-Resolved Optical Gating », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 29, p. 571-579, 1993.
- [82] A. Ollé, J. Luce, N. Roquin, C. Rouyer, M. Sozet, L. Gallais et L. Lamainière, « Implications of laser beam metrology on laser damage temporal scaling law for dielectric materials in the picosecond regime », *Review of Scientific Instruments*, vol. 90, p. 073001(12), 2019.
- [83] M. Mero, « Femtosecond Laser Induced Breakdown in Dielectric Films », *Thèse de l'Université de New Mexico*, 2005.
- [84] L. Yuan, Y. Zhao, C. Wang, H. He, Z. Fan, et J. Shao, « Effect of SiO<sub>2</sub> protective layer on the femtosecond laser-induced damage of HfO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> multilayer high-reflective coatings », *Applied Surface Science*, vol. 253, p. 3450-3454, 2006.
- [85] « Matlab software, <https://fr.mathworks.com/products/matlab.html> ».
- [86] B. Rethfeld, « Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics », *Physical Review B*, vol. 73, p. 035101(6), 2006.
- [87] Z. A. Weinberg, « On tunneling in metal-oxide-silicon structures », *Journal of Applied Physics*, vol. 53, p. 5052-5056, 1982.
- [88] Mark Mero, « Femtosecond Laser Induced Breakdown in Dielectric Films », *Thèse de l'Université de New Mexico*, 2005.
- [89] B. Mangote, « Tenue au flux des couches minces optiques en régime subpicoseconde », *Thèse de l'Université Paul Cézanne - Aix Marseille III*, 2011.

- [90] 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*, vol. 15, p. 17855-17862, 2007.
- [91] L. Englert, M. Wollenhaupt, L. Haag, C. Sarpe-Tudoran, B. Rethfeld, et T. Baumert, « Material processing of dielectrics with temporally asymmetric shaped femtosecond laser pulses on the nanometer scale », *Applied Physics A*, vol. 92, p. 749-753, 2008.
- [92] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, D. Puerto, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, et J. Solis, « Ad-hoc design of temporally shaped fs laser pulses based on plasma dynamics for deep ablation in fused silica », *Applied Physics A*, vol. 112, p. 185-189, 2012.
- [93] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. Ruiz de la Cruz, et J. Solis, « Surface structuring of fused silica with asymmetric femtosecond laser pulse bursts », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 30, p. 1352-1356, 2013.
- [94] L. Lamaignère, 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*, vol. 107, p. 023105(8), 2010.
- [95] S. Ly, N. Shen, R. A. Negres, C. W. Carr, D. A. Alessi, J. D. Bude, A. Rigatti et T. A. Laurence, « The role of defects in laser-induced modifications of silica coatings and fused silica using picosecond pulses at 1053 nm: I. Damage morphology », *Optics Express*, vol. 25, p. 15161-15178, 2017.
- [96] A. A. Kozlov, J. C. Lambropoulos, J. B. Oliver, B. H. Hoffman, et S. G. Demos, « Mechanisms of picosecond laser-induced damage in common multilayer dielectric coatings », *Scientific Reports*, vol. 9, p. 1-15, 2019.
- [97] G. Demésy, L. Gallais, et M. Commandré, « Tridimensional multiphysics model for the study of photo-induced thermal effects in arbitrary nano-structures », *Journal of the European Optical Society*, vol. 6, p. 11037(10), 2011.
- [98] M. Chorel, S. Papernov, A. A. Kozlov, B. N. Hoffman, J. B. Oliver, S. G. Demos, T. Lanternier, É. Lavastre, L. Lamaignère, N. Roquin, B. Bousquet, N. Bonod et J. Néauport, « Influence of absorption-edge properties on subpicosecond intrinsic laser-damage threshold at 1053 nm in hafnia and silica monolayers », *Optics Express*, vol. 27, p. 16922-16934, 2019.
- [99] J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*, Mc Graw-Hill Companies. New York, 1968.

## Résumé

Installé sur le centre du CEA-CESTA, le laser de puissance PETAL (PETawatt Aquitaine Laser) délivre des impulsions sub-picoseconde ou picoseconde pour des puissances crêtes de l'ordre du Petawatt. Afin que cette grande installation laser puisse pleinement exploiter son potentiel en générant des impulsions multi-petawatts, il est nécessaire d'étudier et de comprendre le phénomène d'endommagement laser des miroirs diélectriques de fin de chaîne qui limite la montée en énergie de l'installation. Cette thèse s'attache à étudier en particulier la dépendance temporelle de ce phénomène pour ces miroirs en régime sub-picoseconde et picoseconde en s'appuyant sur le banc d'endommagement laser DERIC fonctionnant dans ce régime temporel. Nous traitons ainsi des cas de l'endommagement laser intrinsèque, de l'endommagement laser sur défauts et de la croissance des dommages lasers. En confrontant expériences et simulations, nous montrons que la dépendance temporelle de l'endommagement intrinsèque ne s'explique non pas à l'aide de la durée d'impulsion seule mais à partir de tout le profil temporel d'intensité de l'impulsion. Ceci a notamment des conséquences importantes sur le concept de loi d'échelle temporelle du seuil d'endommagement intrinsèque de composants diélectriques, outil couramment utilisé par la communauté de l'endommagement laser pour la prédiction de ce seuil. Sur cette base et en tenant compte des fortes modulations du champ électrique causées par un nodule dans un miroir diélectrique, nous apportons ensuite des éléments de réponse pour expliquer la dépendance temporelle de l'endommagement sur défauts. Enfin, pour la croissance des dommages, nous plaçons l'étude de la dépendance temporelle au cœur d'une étude paramétrique expérimentale et numérique à partir de laquelle nous proposons une loi empirique de croissance qui prend notamment en compte la fluence d'irradiation, la durée d'impulsion et les modulations du champ électrique provoquées par tout dommage s'apprêtant à croître.

## Abstract

Located in CEA-CESTA, the laser facility PETAL (PETawatt Aquitaine Laser) delivers sub-picosecond to picosecond pulses with peak powers of the order of magnitude of one Petawatt. In order for this large facility to fulfill its potential with the generation of multi-petawatt pulses, the study of the laser damage occurring on dielectric mirrors at the end of PETAL chain is necessary as this phenomenon limits the energy available. Using the laser testing bench DERIC, this thesis deals specifically with the study of the temporal dependency of laser damage for dielectric mirrors irradiated by sub-picosecond or picosecond pulses. We thus tackle intrinsic laser damage, defect initiated laser damage and laser damage growth. By confronting experiments and simulations, we show that the temporal dependency of intrinsic damage is not fully explainable with the pulse duration alone but by taking into account the whole temporal profile of the pulse. In particular, this has important consequences on the concept of temporal scaling law of the Laser Induced Damage Threshold (LIDT) of dielectric components, a tool largely used by the laser damage community as a LIDT prediction means. Thanks to this study and by taking into account the high electric field modulations caused by a nodular defect within a dielectric mirror, we then bring answers to the temporal dependency of defect initiated damage. About damage growth, we lastly establish, thanks to an experimental and numerical parametric study, an empirical growth law which takes into account the fluence, the pulse duration and the electric field modulations generated by any initial damage prior to its growth.