



HAL
open science

Composants optiques en couches minces optiques pour lasers de forte puissance continue

Camille Petite

► **To cite this version:**

Camille Petite. Composants optiques en couches minces optiques pour lasers de forte puissance continue. Optique / photonique. Ecole Centrale Marseille, 2022. Français. NNT : 2022ECDM0002 . tel-03942866

HAL Id: tel-03942866

<https://theses.hal.science/tel-03942866>

Submitted on 17 Jan 2023

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 352 – Physique et Sciences de la Matière

THÈSE DE DOCTORAT

en vue d'obtenir le grade de

DOCTEUR de l'ÉCOLE CENTRALE de MARSEILLE

-

Par Camille PETITE

Composants optiques en couches minces pour lasers de forte puissance continue

Soutenue le 14 Avril 2022

Devant le jury composé de :

Rapporteur	Pierre BOURDON	Directeur de recherche – ONERA
Rapporteur	Laurent PINARD	Ingénieur de recherche – LMA
Examinatrice	Marine CHOREL	Ingénieure-chercheuse – CEA
Présidente	Patricia SEGONDS	Professeure – Institut Néel
Examinatrice	Hélène KROL	Ingénieure-Docteure – CILAS
Directeur de thèse	Julien LUMEAU	Directeur de recherche – Institut Fresnel
Directeur de thèse	Laurent GALLAIS	Professeur – Institut Fresnel

Cette thèse est dédiée à la mémoire de mon oncle Guillaume PETITE (1948-2022).

Résumé

Les lasers de forte puissance continue présentent un très vaste champ d'applications industrielles, militaires et scientifiques. La montée en puissance des lasers à fibres de silice dopée Ytterbium permet d'atteindre à l'heure actuelle des niveaux de puissance de l'ordre de plusieurs centaines de kilowatts à une longueur d'onde de 1 μm . Cependant, l'augmentation de la puissance de ces lasers nécessite le développement de composants optiques à haute tenue au flux laser.

Parmi les différents composants optiques d'un système laser, les filtres à base de couches minces optiques sont des éléments essentiels en raison du grand nombre de fonctions optiques réalisables : antireflets, miroirs, dichroïques... Malgré des niveaux d'absorption de l'ordre de la partie par million (ppm) dans les couches, les échauffements induits sous forte puissance laser constituent une limitation pour les performances laser, allant de la déformation de front d'onde jusqu'à éventuellement l'endommagement des optiques.

Pour répondre aux nouveaux besoins associés à l'emploi de lasers continus à très forte puissance, les mécanismes d'échauffement et par conséquent l'absorption des empilements de couches minces doivent être maîtrisés. Il en résulte la nécessité de développer une métrologie spécifique capable de fournir des mesures fiables à la ppm et en dessous.

Dans ce travail nous présentons le développement d'une méthode dite de thermographie synchronisée ou Lock-In Thermography (LIT), basée sur l'utilisation d'une technique de détection synchrone couplée à de la thermographie infrarouge afin d'imager les variations de température sur de grandes surfaces et d'en extraire des données locales d'absorption, par l'application d'une procédure d'étalonnage.

Cet instrument utilise sur un montage multi-passages permettant de recycler la puissance du faisceau laser et ainsi d'augmenter la puissance absorbée conduisant à une amélioration du rapport signal sur bruit. Nous avons appliqué ce système pour analyser différents échantillons (substrats, monocouches, miroirs et antireflets). Une adaptation de la LIT nous a également permis de réaliser une cartographie d'absorption des macro-défauts. Enfin des pistes de minimisation de l'absorption intrinsèque sont explorées.

Abstract

High power continuous wave lasers have a wide range of industrial, military and scientific applications. The increase in power of Ytterbium-doped fiber lasers allows to reach power levels of several hundred kilowatts at a wavelength of 1 μm . However, increasing the power of these lasers requires the development of optical components that handle these power levels.

Among the various optical components of a laser system, thin-film optical filters are essential elements because of the large number of optical functions that they offer: anti-reflection, mirrors, dichroic... Despite absorption levels in the order of parts per million (ppm) in the films, high power laser heating induced is a limitation for the laser performance, ranging from wavefront deformation to eventual damage of the optics.

To meet the new requirements associated with the use of very high power continuous wave lasers, the heating mechanisms and consequently the absorption of thin film stacks must be controlled. This results in the need to develop a specific metrology capable of providing reliable measurements at the ppm level and below.

In this work we present the development of a method called Lock-In Thermography, (LIT) that is based on the use of a synchronous detection technique coupled to infrared thermography in order to image the temperature variations on large surfaces and to locally extract absorption values, by applying a calibration procedure.

This instrument uses a multi-pass setup allowing to recycle the laser beam power and thus to increase the total absorbed power leading to an improvement of the signal to noise ratio. We have applied this system to analyze different samples (substrates, single layers, mirrors and antireflection coatings). A modification of the LIT set-up also allowed us to perform an absorption mapping of macro defects. Finally, ways to minimize the intrinsic absorption of thin-film optical components are explored.

Remerciements

Je veux d'abord remercier la société CILAS pour m'avoir permis de réaliser cette thèse, et en particulier GREZES-BESSET et Hélène KROL pour avoir suivi avec attention le déroulement de mes travaux et en me proposant nombre d'échantillons à mesurer permettant ainsi d'abreuverez manuscrit de nombreuses données expérimentales supplémentaire.

Je veux en suite exprimer toute ma gratitude à Laurent GALLAIS et Julien LUMEAU pour m'avoir dirigé durant cette thèse, d'avoir été disponible, bienveillant, et patient. J'ai eu plaisir à apprendre de vous. Cette thèse fut un réel plaisir, est et restera un bon souvenir et vous y êtes pour beaucoup.

Merci aux équipes ILM et RCMO auxquels je me suis intégré avec beaucoup de plaisir. Je veux particulièrement mentionner Antonin, Oliver et Cihan qui m'auront guidé dans de nombreuses expériences.

Ces expériences ont aussi été souvent réalisées par mes stagiaires/alternant, Rémi et Jeanne. Merci pour votre travail, sachez que ce fut un plaisir pour moi de vous accueillir.

Il me faut mentionner celles et ceux qui ont corrigé ma déplorable orthographe dans ce manuscrit : Sonia (ma mère qui m'a défendu lorsque j'étais trop petit pour le faire et sans qui je n'aurais jamais fait d'étude), Guillaume (mon oncle scientifique sans qui mon parcours universitaire aurait été bien différent), Stan, Marie, Mathieu 'Geekinshort' et Pierre-Côme. Merci à vous !

Je veux en suite exprimer ma gratitude à mes amis Fresneliens, trop nombreux pour tous les citer, mais je sais que vous vous reconnaitrez. Je ne mentionnerais que Paul et Faris pour leur aide inestimable en math et Kévin pour les nombreuses idées que nous avons partagé. Merci à tous d'avoir apporté de la joie dans ces trois ans qui furent pour tous au minimum 'compliqué' (oui on parle de toi 2020).

Je n'oublie évidemment pas le MEMO Student Chapter, les anciens et les nouveaux, continuez à faire vivre l'asso j'ai confiance en vous. Mention spéciale à Luis par qui tout est arrivé : des bisous mon Luis ! Et pour tous rendez-vous, le premier jeudi de chaque mois, une bière à la main.

Je ne peux pas oublier tous les gens du 'support' qui se rendent toujours si disponibles. Samia, Claire, Fred, Marco, Guylène, Fatima, Christina, Déborah, Ouissal, Julien... Sans vous rien ne se ferait au laboratoire.

Enfin je pense à tous mes amis et familles. Mes gadzarts venus en nombre à la soutenance (Z'merc les gars), les « semi-croustillant », les SCistes et Warhamistes, mes frères et sœurs (sans oublier Aurore ma petite crevette adorée de nièce), et tous les autres qui ne fond pas parti d'un groupe particulier : Merci à tous d'être simplement présent.

A tous : Cœur avec les doigts !

Liste des notations

α	Coefficient d'absorption	e	Epaisseur de la couche mince
β	Coefficient thermo-optique	f	Fréquence
ζ	Contraintes	h	Constante de Planck
ε	Emissivité	I	Intensité lumineuse
λ	Longueur d'onde	K	Conductivité thermique
ρ	Masse volumique	k	Nombre d'onde
σ_x	Ecart-type de la grandeur x	k_B	Constante de Boltzmann
σ_{Rx}	Ecart-type relatif de la grandeur x ($\sigma_{Rx} = \sigma_x/x$)	l	Longueur de propagation
τ	Temps	M	Emittance spectrale
ν_p	Coefficient de poisson	m	Masse
φ	Phase	N	Indice effectif
ω	Pulsation ($\omega=2\pi/\lambda$)	n	Indice de réfraction complexe
η_0	Impédance du vide	n'	Indice de réfraction
μ_r	Perméabilité relative du milieu	n''	Coefficient d'extinction optique
θ_j	Angle d'incidence dans le milieu j	P	Puissance
A	Absorption (définie comme la proportion de lumière incidente absorbée)	Q	Source volumique de chaleur
C_p	Capacité calorifique	R	Réflexion (définie comme la proportion de lumière incidente réfléchie)
c	Vitesse de la lumière	r	Coefficients de réflexion en amplitude
D	Diffusivité thermique	S	Signal LIT
D_S	Diffusion (définie comme la proportion de lumière incidente diffusée)	T°	Température
E	Champ électrique	T	Transmission (définie comme la proportion de lumière incidente transmise) t
E_S	Module d'Young	w	Waist

Liste des acronymes

APS : Advanced Plasma Source	LIT : Lock-In Thermography
CPI : Common-path Interferometry	LMA : Laboratoire des Matériaux Avancé
CRD : Cavity Ring Down	MEB : Microscope Electronique à Balayage
CVD : Chemical Vapor Deposition	NETD : Noise Equivalent Temperature Difference
DIBS : Dual Ion-Beam Sputtering	OIC : Optical Interference Coatings
EBD : Electron Beam Deposition	PIAD : Plasma Ion-Assisted Deposition
FEM : Finite Element Model	PTD : Photo-Thermal Deflection
FIB : Focused Ion Beam	PVD : Physical Vapor Deposition
FOV : Field Of View	SDK : Software Development Kits
IAD : Ion-Assisted Deposition	SNR : Signal to Noise Ratio.
IBS : Ion-Beam Sputtering	Sol-Gel Solution-gélification
IR : Infra Rouge	:
ISO : International Standard Organization	STL : Surface Thermal Lensing
LabTOP : Laboratoire de Traitement Optique des surfaces	TTF : Time To Failure
LIDT : Laser Induced Damage Threshold	UV : Ultraviolet
	UVFS : Ultraviolet Fused Silica

Liste des figures

Figure 1 : Schéma d'un empilement de couches minces optiques interférentielles.....	22
Figure 2 : Spectre de composants optiques réalisés à l'Institut Fresnel.....	25
Figure 3 : Schémas d'un canon à électrons	27
Figure 4 : Enceinte de dépôt type EBD avec IAD	27
Figure 5 : Machine de dépôt par pulvérisation ionique.....	28
Figure 6 : Machine de dépôt par pulvérisation magnétron.....	29
Figure 7 : Transmission mesurée par Corning pour deux de leurs silices fondues fournies....	33
Figure 8 : Principaux modes d'absorption intrinsèque en continu.....	34
Figure 9 : Influence d'une impureté sur le dépôt.....	34
Figure 10 : Vue d'ensemble des phénomènes thermiques	36
Figure 11 : Illustrations des conséquences des effets thermiques sur les propriétés optiques .	37
Figure 12 : Différence de déformation de front d'onde entre matériaux massif et couches minces.....	39
Figure 13 : Invariance de la longueur d'onde de centrage par contrôle des coefficients de variation de l'indice.....	40
Figure 14 : Illustration des dommages thermiques	41
Figure 15 : Dépendance du seuil de tenue au flux laser en fonction de la durée d'impulsion laser	43
Figure 16 : Time To failure pour un matériau absorbant et pour des défauts de surface.....	45
Figure 17 : Calorimétrie laser, schéma de principe.....	46
Figure 18 : Déflexion photo-thermique ou Photo-Thermal Deflection (PTD), schéma de principe.....	47
Figure 19 : Différence entre PTD et lentille thermique de surface ou Surface Thermal Lensing (STL)	48
Figure 20 : Common-path Interferometry (CPI), schéma de principe	48
Figure 21 : Automodulation de phase, schéma de principe	49
Figure 22 : Thermographie par détection synchrone, schéma de principe.....	50
Figure 23 : Miroir de l'expérience VIRGO mesuré par PTD	55
Figure 24 : Schéma de notation de l'équation de la chaleur dans le cas axisymétrique en milieu semi infini.....	59
Figure 25 : Schéma de notation de l'équation de la chaleur dans le cas gaussien en milieu semi infini.	60
Figure 26 : Comparaison entre la simulation aux éléments finis et le modèle semi analytique de la température de surface d'un échantillon au centre d'un faisceau laser gaussien	62
Figure 27 : Schéma de notation de l'équation de la chaleur dans le cas gaussien dans un substrat de dimension finie.	63
Figure 28 : Température atteinte en régime continu calculée avec un modèle analytique tiré de l'équation 26 en milieu infini et avec un modèle aux éléments finis (FEM)	64
Figure 29 : Comparaison entre les températures calculées par le modèle semi infini et le modèle aux éléments finis (FEM) en fonction de la taille du faisceau laser pour une irradiation continue	64
Figure 30 : Température atteinte calculée à partir de l'équation 28.....	66

Figure 31 : Comparaison entre les températures calculées par le modèle semi infini et le modèle aux éléments finis en fonction de la taille du faisceau laser	67
Figure 32 : Courbe d'émission du corps noir	69
Figure 33 : Spectre en transmission de l'atmosphère.....	70
Figure 34 : Limite de détection en température pour des caméra bolométriques et pour des caméras hautes performances.....	71
Figure 35 : Principe de la LIT	75
Figure 36 : Principe du recouvrement des faisceaux de sortie.....	76
Figure 37 : Schéma de l'installation LIT multi-passages.....	78
Figure 38 : Spectre en transmission du séparateur d'alignement du montage LIT	77
Figure 39 : Montage LIT multi-passages	79
Figure 40 : Spectre normalisé d'une réponse thermique simulée pour un substrat de silice fondue soumis à une irradiation laser modulée avec un signal carré.....	80
Figure 41 : Variation de température et dépendance du signal LIT en fonction de la fréquence	82
Figure 42 : Dépendance du bruit par rapport au temps de mesure.....	83
Figure 43 : Évolution du bruit sur l'image LIT avec la fréquence de modulation.....	83
Figure 44 : Constance du SNR de l'image LIT avec la fréquence de modulation.....	83
Figure 45 : Montage d'étalonnage thermique du banc de mesure LIT	85
Figure 46 : Courbe d'étalonnage thermique de l'instrument de mesure LIT.....	86
Figure 47 : Courbe issue du calcul numérique de la relation entre température et absorption	86
Figure 48 : Evolution mesurée du signal LIT en fonction de la puissance absorbée sur un jeu d'échantillons fortement absorbants.....	88
Figure 49 : Spectres de l'échantillon de référence	88
Figure 50 : Courbe d'étalonnage mesurée sur un échantillon de référence avec 2.4 % de pertes par absorption.....	89
Figure 51 : Evolution du facteur de correction de l'étalonnage en fonction du nombre de passages et de l'absorption de l'échantillon de référence.	91
Figure 52 : Banc de mesure pour la détermination de l'émissivité effective.....	93
Figure 53 : Mesures d'émissivité effective	94
Figure 54 : Variation simulée du signal LIT avec la stabilité du signal thermique	96
Figure 55 : Variation simulée de l'erreur du signal LIT calculée pour différents nombres de périodes	96
Figure 56 : Schéma d'une monocouche	102
Figure 57 : Évolution de l'absorption, de la réflexion et de la transmission dans une monocouche en fonction de l'épaisseur de la monocouche	104
Figure 58 : Évolution de la réflexion d'une monocouche en fonction l'épaisseur et de l'indice de réfraction.....	104
Figure 59 : Évolution de l'absorption dans une monocouche de SiO ₂ ou de Nb ₂ O ₅ déposée sur un substrat de silice en fonction de l'épaisseur et pour différentes valeurs du coefficient d'extinction.....	105
Figure 60 : Photo de l'intérieur de la machine de dépôt SYRUSpro présente à l'Institut Fresnel	108
Figure 61 : Schéma d'une APS	109
Figure 62 : Spectre d'une silice fondue pour différent temps de préparation.	111
Figure 63 : Evolution de l'absorption et de la diffusion lors de la préparation du substrat. ..	112

Figure 64 : Absorptions mesurées par LIT d'échantillons monocouches de Nb ₂ O ₅ de 300 nm déposés en même temps.	113
Figure 65 : Diffusions mesurées par CRD d'échantillons monocouches de Nb ₂ O ₅ de 300 nm déposés en même temps.	113
Figure 66 : Absorptions mesurées par LIT d'échantillons monocouches de Nb ₂ O ₅ de 300 nm fabriqués lors de dépôts consécutifs.....	114
Figure 67 : Diffusions mesurées par CRD d'échantillons monocouches de Nb ₂ O ₅ de 300 nm fabriqués lors de différents dépôts consécutifs	114
Figure 68 : Évolution de l'absorption en fonction du coefficient d'extinction.....	115
Figure 69 : Images LIT de monocouches de SiO ₂ réalisées par pulvérisation magnétron assistée par plasma et dépôt par évaporation par canons à électrons assistée par plasma.....	118
Figure 70 : Montage de cartographie de macro-défauts.....	120
Figure 71 : Profil spatial du faisceau.....	121
Figure 72 : Profil du faisceau top-hat.....	121
Figure 73 : Évolution du diamètre et des bords du faisceau top-hat	122
Figure 74 : Comparaison de cartographies LIT de défauts d'une monocouche de HfO ₂ réalisées pour deux fréquences de modulation différentes	123
Figure 75 : Mire de résolution 1951 USAF.....	124
Figure 76 : Cartographie LIT de la mire 1951 USAF	124
Figure 77 : Comparaison des cartographies LIT de défauts d'une monocouche de HfO ₂ réalisées pour différents temps d'intégration	125
Figure 78 : Comparaison de cartographies LIT de défauts d'une monocouche de HfO ₂ et de Nb ₂ O ₅	126
Figure 79 : Photo d'un tube APS après un dépôt	127
Figure 80 : Absorption mesurée par LIT d'échantillons monocouches de Nb ₂ O ₅ de 300 nm déposés lors de différents dépôts consécutifs en conservant le même tube APS.....	128
Figure 81 : Absorption mesurée par LIT d'échantillons monocouches de Nb ₂ O ₅ de 300 nm déposés avec différentes tensions de polarisation de l'APS.....	128
Figure 82 : Images LIT avec de nombreux défauts proches de la zone d'évaluation de l'absorption.....	129
Figure 83 : Effet de la température de recuit sur une couche de HfO ₂	131
Figure 84 : Évolution de l'absorption d'un filtre Rugate Ta ₂ O ₅ /SiO ₂ avec la température de recuit.....	133
Figure 85 : Phases d'une couche de TiO ₂ en fonction de la température du substrat et de l'énergie des matériaux au moment des dépôts.....	134
Figure 86 : Réponse spectrale en transmission d'une monocouche de Nb ₂ O ₅ amorphe et cristalin.....	135
Figure 87 : Évolution de la transmission avec l'indice à un minimum de transmission du spectre d'une monocouche	136
Figure 88 : Spectre en transmission de différents miroirs (HL) ⁿ H à 1070 nm.....	140
Figure 89 : Dépendance de l'absorption d'un miroir (HL) ⁿ H à son design	140
Figure 90 : Schémas des différentes configurations de miroirs HLH simulés.....	142
Figure 91 : Schémas de la configuration simulée pour les miroirs (HL) ² H et (HL) ³ H avec ouverture de la machine de dépôt.....	145
Figure 92 : Évolution l'absorption de composants (HL) ² H et (HL) ³ H avec l'absorption des interfaces correspondant à l'ouverture du bâti	145
Figure 93 : Intérieur du NovaWave LossPro	159

Liste des tableaux

Tableau 1 : Seuil de tenue au flux laser estimé sur le critère de fusion des matériaux	42
Tableau 2 : Seuil de tenue au flux laser calculé par rupture du matériau.....	42
Tableau 3 : Mesures d'absorption dans le visible	52
Tableau 4 : Mesures d'absorption à 1064 nm	52
Tableau 5 : Évolution de l'absorption due au progrès technologique dans les composants optiques en couches minces.	53
Tableau 6 : Mesures d'absorption sur des composants multicouches.....	54
Tableau 7 : Température et absorption atteintes avec différents niveaux de signal LIT.....	92
Tableau 8 : Mesure d'absorption sur les différents substrats étudiés.	107
Tableau 9 : Absorption mesurée sur des monocouches de HfO ₂ , Ta ₂ O ₅ , TiO ₂ et Nb ₂ O ₅ réalisées par dépôt par faisceau d'électrons assisté par plasma et pour différentes épaisseurs (300 et 600 nm).	116
Tableau 10 : Évolutions de l'indice de réfraction de couches minces suite à un recuit rapportées par la littérature.....	131
Tableau 11 : Évolutions de l'épaisseur de couches minces suite à un recuit rapportées par la littérature.	132
Tableau 12 : Évolutions de l'absorption de couches minces suite à un recuit rapportées par la littérature.	132
Tableau 13 : Températures de cristallisation des matériaux en couches minces rapportées par la littérature..	133
Tableau 14 : Variations de l'absorption pour différents temps de recuit (à 400 °C) de couches de 300 nm de Ta ₂ O ₅ , Nb ₂ O ₅ et SiO ₂	137
Tableau 15 : Variations de l'absorption pour différents temps de montée en température (à 400 °C) de couches de 300 nm de Ta ₂ O ₅ , Nb ₂ O ₅ et SiO ₂	138
Tableau 16 : Variations de l'absorption pour des recuits sous vide (à 400 °C) de couches de 300 nm de Ta ₂ O ₅ , Nb ₂ O ₅ et SiO ₂	138
Tableau 17 : Absorption simulée dans des miroirs HLH et (HL) ² H à 1070 nm ne prenant en compte que l'absorption dans la couche.	141
Tableau 18 : Absorption simulée dans des miroirs HLH et (HL) ² H à 1070 nm ne prenant en compte que l'absorption aux interfaces.....	142
Tableau 19 : Absorption simulée et mesurée pour des composants fonctionnels.....	143

Table des matières

Introduction	17
Chapitre I : Bibliographie et état de l'art	19
1. Introduction aux couches minces optiques.....	21
1.1. Quelques éléments de théorie	21
1.2. Techniques de dépôt	26
2. Absorption dans les couches minces optiques	31
2.1. Définitions.....	31
2.2. Origine de l'absorption	32
2.3. Localisation de l'absorption.....	35
3. Couches minces optiques soumises à de forts flux lasers continus.....	36
3.1. Effets thermiques	36
3.2. Tenue au flux laser continu	40
4. Mesure et quantification de l'absorption dans les couches minces optiques	45
4.1. Instruments de mesure	46
4.2. Absorption dans les couches minces.....	51
5. Conclusion.....	54
Chapitre II : Développement et caractérisation d'un banc de mesure d'absorption basé sur la technique de thermographie synchrone	57
1. Simulations thermiques de l'échauffement par un laser continu	59
1.1. Régime continu	60
1.2. Régime harmonique	65
2. Développement d'un montage de thermographie synchrone multi-passages	68
2.1. Quelques bases sur la thermographie.....	68
2.2. Principes de la thermographie synchrone	72
2.3. Développement expérimental	76
3. Étalonnage et caractérisation du banc	84
3.1. Étalonnage par corps noir	84
3.2. Étalonnage par échantillon de référence	87
3.3. Comparaison des méthodes d'étalonnage	91
3.4. Mesure des émissivités effectives	92
3.5. Estimation des incertitudes	95
4. Conclusion.....	99

Chapitre III : Étude de l'absorption des couches minces optiques diélectriques	100
1. Relation entre absorption et propriétés physiques de monocouches.....	102
2. Étude de l'absorption des substrats	106
2.1. Nature, préparation et propriétés des substrats	106
2.2. Effet de la source plasma sur l'absorption des substrats.....	108
3. Étude de l'absorption de monocouches diélectriques	112
3.1. Variation de l'absorption lors d'un dépôt	112
3.2. Variation de l'absorption entre dépôts successifs	113
3.3. Absorption de couches d'oxydes métalliques.....	115
4. Imagerie d'absorption pour la détection de défauts	118
4.1. Montage de thermographie synchrone top-hat pour la caractérisation de défauts.....	119
4.2. Caractérisation des défauts de monocouches.....	122
5. Optimisation des paramètres de dépôts de couches minces optiques	126
6. Recuits de couches minces optiques diélectriques	130
6.1. Etude bibliographique sur les recuits	130
6.2. Détermination des épaisseurs et des indices par la méthode des enveloppes	134
6.3. Mesure des effets de recuits.....	136
7. Etudes des composants multicouches	139
7.1. Miroirs quart d'onde	139
7.2. Mesures sur des composants fonctionnels	143
7.3. Effet de dépôts séquentiels sur l'absorption dans des empilements	144
8. Conclusion.....	146
Conclusion générale et perspectives	148
Annexes	152
A. Expression analytique de l'absorption dans une monocouche.....	152
B. Technique de Cavity Ring Down (CRD) pour la caractérisation de faibles pertes optiques.....	157
a. Présentation de la technique	157
b. Description du NovaWave LossPro	158

Introduction

Les capacités et les performances des lasers ont énormément évolué au cours de ces 20 ou 30 dernières années, les efforts se concentrant notamment sur trois grands axes. Le premier axe est la diminution de la durée d'impulsion, dans le cas du régime impulsionnel, qui permet aujourd'hui de disposer de lasers femtosecondes commerciaux voire attosecondes dans certains laboratoires (10^{-18} s). Un deuxième axe important de recherche concerne l'amélioration de la qualité des faisceaux laser, les effets thermiques pouvant notamment créer des distorsions de front d'onde conduisant à des dégradations du faisceau, caractérisé par une baisse du facteur M^2 , qui est un paramètre critique limitant la densité spatiale de puissance générée. Enfin, le troisième axe consiste à toujours augmenter plus fortement la puissance que ce soit en régime continu ou impulsionnel. C'est dans cet axe de l'augmentation de la puissance des lasers continus que cette thèse s'inscrit.

Les lasers de puissance continue sont largement présents dans l'industrie en tant que moyen de fabrication (pour la découpe, le perçage, le soudage, par exemple dans l'automobile). On les trouve également dans le domaine militaire pour la lutte anti-missile ou anti-drone par exemple, ou, plus récemment dans la mise en œuvre des télécommunications optiques spatiales, où les lasers continus permettent la transmission de données haut débit entre une station sol et un satellite.

En fonction des domaines de longueurs d'onde, les lasers de puissance continue peuvent atteindre plusieurs dizaines de kilowatts (en mode monomode) voire centaines de kilowatts (en mode multimode) et les puissances continuent à augmenter. Pour donner un exemple lorsque ce travail de thèse a débuté, il y a trois ans, le laser commercial le plus puissant était un laser de la société IPG Photonics à fibre dopé Ytterbium de 100 kW. À ce jour, le même constructeur propose un laser de 500 kW.

Une limitation importante des composants quand ils sont soumis à des lasers continus de forte puissance est la tenue au flux de ces composants optiques. Ces composants optiques peuvent absorber une partie du flux, même infime, générant une source de chaleur dans l'optique. L'élévation de température peut conduire à une modification des propriétés de l'optique, et dans des cas extrêmes, sa destruction. La modification peut par exemple correspondre à un changement d'indice et/ou une déformation de surface, perturbant le front d'onde et modifiant ainsi les propriétés du faisceau (tache focale par exemple). Cette limitation importante est due à l'absorption optique résiduelle des composants et est généralement corrigée en partie par un refroidissement actif des composants optiques.

Les couches minces optiques constituent un élément clé de la performance de ces systèmes lasers dans lesquels elles interviennent. Lors de la définition des empilements, l'utilisation de matériaux avec des épaisseurs correctement choisies permet en effet d'ajuster la réponse spectrale en réflexion, en transmission, tout en considérant les effets d'incidences et de polarisation. En tant qu'industriel fabricant de composants optiques, CILAS est très souvent amené à développer des composants dont les performances doivent être également maintenues pour des puissances laser incidentes élevées.

Le besoin en composants optiques toujours plus performants nécessite d'étudier et d'optimiser l'ensemble des procédés de fabrication. La conception, la fabrication et la

caractérisation de ces optiques font l'objet de recherches actives sur le plan académique et industriel, notamment au sein de l'Institut Fresnel et de CILAS. Les collaborations résultantes ont mené à la création en janvier 2014 du laboratoire commun LabTOP (Laboratoire de Traitement Optique des Surfaces) dans le cadre duquel s'inscrit cette thèse CIFRE.

L'étude de l'absorption des couches minces optiques est une activité historique du laboratoire, depuis les années 90 [1,2]. Les niveaux d'absorptions ont pu être quantifiés à quelques parties par million (voir ci-dessous) grâce à l'utilisation de techniques de déflexion photothermique, et des défauts absorbants inférieurs à 100 nm ont pu être résolus avec ces techniques. Ces techniques bien que performantes ont cependant des limitations dont nous discuterons. Une meilleure accessibilité des lasers de puissance et des caméras thermiques infrarouges nous a poussés à développer un nouvel instrument de mesure plus simple d'utilisation.

L'objectif de cette thèse était donc dans un premier temps, de développer ce nouvel instrument de mesure des faibles absorptions tirant parti des moyens laser et d'imagerie thermique commercialement disponibles. Dans un deuxième temps, cette thèse s'est intéressée à l'étude des niveaux d'absorption actuels des composants en couches minces optiques et puis à proposer des pistes de recherche pour l'optimisation de l'absorption dans ces composants.

Ce manuscrit de thèse débute par une revue de la bibliographie en commençant par une présentation du fonctionnement et des procédés de fabrication des optiques en couches minces. Cette revue se poursuit par la présentation de quelques bases théoriques sur l'absorption puis expose les causes de l'absorption dans ces couches. Les effets thermiques et leurs conséquences sont ensuite expliqués ainsi que les différentes méthodes de mesure de l'absorption. Enfin ce chapitre conclut sur un état de l'art des mesures obtenues sur différents matériaux en couches minces et composants optiques.

Dans un second temps, nous décrivons la solution que nous avons développée pour la mesure de faibles absorptions : la thermographie synchrone ou Lock-In Thermographie (LIT). Ce chapitre débute par la présentation de plusieurs modèles thermiques permettant de décrire l'élévation de température dans des milieux absorbants soumis à une irradiation laser continue ou modulée. Puis le principe de fonctionnement et le montage LIT sont présentés et optimisés. Enfin, une caractérisation du montage incluant la recherche de la solution d'étalonnage la plus adéquate et la détermination des incertitudes est présentée.

Dans le troisième et dernier chapitre, nous présentons les mesures réalisées avec ce montage. Une courte section présente les comportements de l'absorption simulés dans des monocouches, puis les substrats nus sont considérés tant du point de vue de leur absorption intrinsèque que des effets de leur préparation. Nous réalisons ensuite une étude de l'absorption dans des monocouches de plusieurs matériaux classiquement utilisés dans les couches minces. Cette étude nous amène à nous interroger sur la présence et l'influence de macro-défauts absorbants dans les couches et à proposer une adaptation du principe de la LIT dédiée à leurs cartographies. À partir de ces résultats, nous cherchons des voies d'optimisation de nos couches soit par les procédés de dépôts soit par post-traitement. Enfin nous présentons des mesures réalisées sur des composants multicouches.

Ce manuscrit se termine par une conclusion présentant les résultats majeurs obtenus pendant cette thèse ainsi que de nombreuses perspectives que ce travail a permis de générer.

Chapitre I : Bibliographie et état de l'art

« L'instrument le plus actif de ce babélisme menaçant, c'est l'abus de la bibliographie. Trop souvent on a enseigné aux jeunes gens, et la mode en est venue du dehors jusque chez nous, que lorsqu'ils veulent entreprendre une recherche, leur premier et d'abord unique soin doit être d'en réunir et d'en compiler la « Literatur ». Ce n'est que lorsqu'ils se seront farci la tête de tout ce qui a été écrit sur le sujet, et par conséquent de dix erreurs pour une vérité, lorsque de cet amalgame ils se seront composés une idée moyenne, nécessairement inexacte, et auront ainsi perdu toute fraîcheur d'impression, qu'ils seront admis à regarder les faits par eux-mêmes. Une telle méthode tend à nous ramener au bavardage livresque du Moyen Âge et à étouffer toute originalité. »

- Georges Friedel (1865-1933) ¹

¹ Minéralogiste spécialiste des états mésomorphes

Les couches minces optiques permettent de créer un grand nombre de composants et de contrôler finement leurs propriétés spectrales en contrôlant l'amplitude et la phase de l'onde dans le composant. Ces composants ont donc trouvé un grand nombre de domaines d'applications. On les trouvera ainsi dans des applications quotidiennes comme la fabrication de lunettes de vue (antireflet), des applications artistiques (packaging de parfumerie), dans la lutte contre la contrefaçon (billets de banque) et dans des applications spécialisées (astronomie et observation spatiale, spectrométrie, capteurs pour la biologie) dont bien sûr les lasers. Pour ce dernier domaine, les optiques en couches minces sont particulièrement intéressantes puisqu'elles permettent par exemple d'obtenir des composants passe-bande à la fréquence de pompe (dans le cas d'un pompage optique) mais hautement réfléchissants à la longueur d'onde du laser (pour constituer la cavité laser). Dans le cas particulier des lasers de puissance, leurs hautes performances en termes de pertes en font des composants idéaux pour la constitution de lignes laser. Pour fabriquer ces optiques, il existe différents procédés physiques et chimiques qui ont au cours du temps beaucoup évolué permettant de diviser par un facteur cent l'absorption dans certains cas. Cela permet d'améliorer la tenue au flux laser et contribue ainsi à augmenter la puissance des systèmes laser. On notera que lorsque l'on parle de tenue au flux de laser des composants en couches minces, on regroupe à la fois la limite de puissance tolérable par un composant avant sa destruction, mais également des pertes de performances induites par la température précédant cette destruction.

Dans ce premier chapitre, nous présentons les principes de fonctionnement de ces couches minces optiques ainsi que les techniques qui existent pour réaliser de tels composants. On se concentre en particulier sur les techniques de PVD (Physical Vapor Deposition) qui seront utiles dans la suite de ces travaux. Puis on présente les concepts de base permettant de comprendre l'absorption et ses origines. Cela nous permet d'étudier ensuite les effets de l'échauffement des optiques en couches minces, conséquences de l'irradiation par un laser de puissance continue. On termine par un état de l'art des mesures d'absorption dans les couches minces optiques, d'abord en s'intéressant à la métrologie des faibles absorptions, puis nous présentons un état de l'art des niveaux d'absorption atteints pour ce type de composants.

1. Introduction aux couches minces optiques

1.1. Quelques éléments de théorie

Les couches minces optiques sont obtenues par le dépôt successif de matériaux diélectriques ou métalliques différents et permettent le contrôle des propriétés spectrales d'un faisceau incident. L'alternance de deux (ou plus) matériaux d'indices différents conduit à l'apparition d'interférences à ondes multiples dans chacune des couches qui vont permettre de moduler spectralement l'intensité transmise et réfléchi par le composant. Pour obtenir la réponse spectrale voulue, on dispose donc de trois paramètres : l'épaisseur de chacune des couches, leurs indices de réfraction, et l'ordre (ou séquence) dans lequel on réalise cet empilement. Le choix de ces paramètres est opéré lors d'une première phase de l'étude appelée synthèse ou design et qui utilise comme gabarit de départ les coefficients de réflexion et de transmission spectraux requis pour l'application. Lors de cette étape, on utilise des outils de synthèse du type méthode des aiguilles [3], qui permettent d'obtenir un ensemble de solutions répondant à un cahier des charges donné.

On peut ainsi obtenir une vaste gamme de fonctions optiques tels que des antireflets ($R \rightarrow 0, T \rightarrow 1$), des miroirs à haute réflectivité ($R \rightarrow 1, T \rightarrow 0$), des filtres passe-bande, des filtres dichroïques, des polariseurs, des séparatrices...

Description d'un empilement

Pour traiter la propagation de l'onde électromagnétique dans un empilement, on peut décomposer un champ tangentiel \vec{E}_{tg} en une composante progressive a^+ et une composante rétrograde a^- telles que $\vec{E}_{tg} = a^+ + a^-$.

Les couches minces interférentielles sont constituées d'un empilement de matériaux d'indices différents. Le changement de matériaux et donc d'indice du milieu conduit sur chaque interface j à avoir une partie de l'onde incidente sur l'interface réfléchi et une transmise, tel qu'explicité sur la Figure 1.

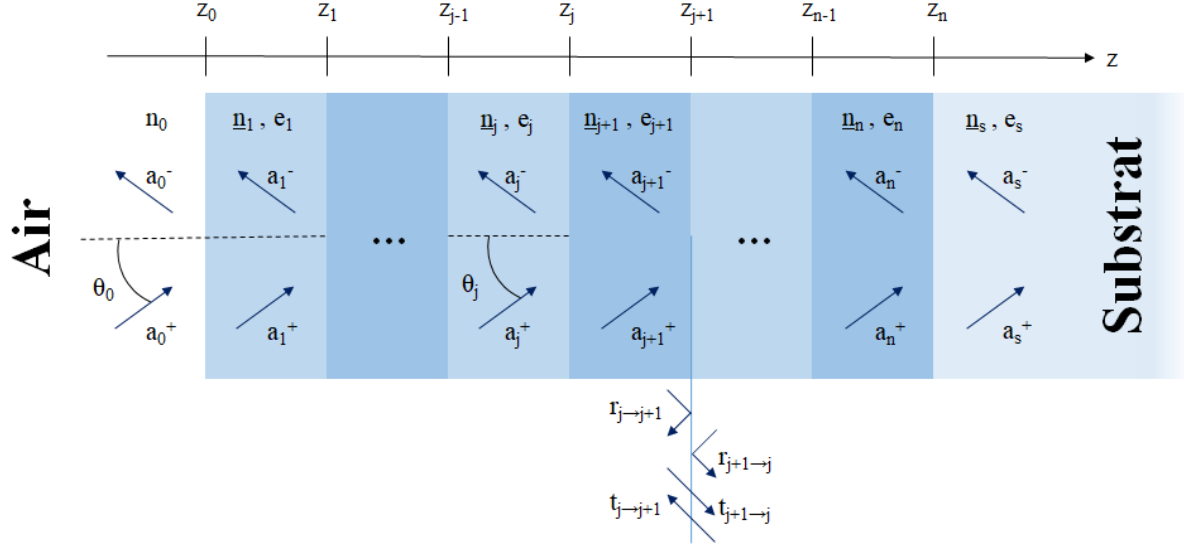


Figure 1 : Schéma d'un empilement de couches minces optiques interférentielles. Chaque couche j est définie par son indice de réfraction complexe \underline{n}_j et son épaisseur e_j . Le champ dans chaque couche est la somme de l'onde propagative a_j^+ et rétrograde a_j^- . Les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude sont appelés respectivement r_j et t_j [4].

Les coefficients de réflexion r_j et de transmission t_j aux interfaces, sont définis par les relations de Fresnel :

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

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

Où N_j est l'indice effectif de la couche j qui dépend de \underline{n}_j l'indice de réfraction complexe, θ_j l'angle d'incidence dans le milieu j et de la polarisation :

$$N_j = \frac{1}{\eta_0 \mu_r} \underline{n}_j \cos(\theta_j) \quad \text{en polarisation s} \quad (2)$$

$$N_j = \frac{1}{\eta_0 \mu_r} \frac{\underline{n}_j}{\cos(\theta_j)} \quad \text{en polarisation p}$$

Avec $\eta_0 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}}$ l'impédance du vide et μ_r la perméabilité relative du milieu.

Pour décrire les phénomènes interférentiels dans un empilement de couches minces, il faut considérer deux parties distinctes d'une couche : l'interface entre deux couches et la traversée de la couche.

Aux interfaces

Pour le dioptre de la j^{ieme} couche à la profondeur z_j , pour l'onde propagative après le dioptre (couche $j + 1$) on somme la partie transmise de l'onde progressive dans la couche j et la partie réfléchie de l'onde rétrograde de la couche suivante $j + 1$:

$$a_{j+1}^+(z_j) = t_{j \rightarrow j+1} \cdot a_j^+(z_j) + r_{j+1 \rightarrow j} \cdot a_{j+1}^-(z_j) \quad (3)$$

De la même façon pour l'onde rétrograde dans la couche j , on somme la partie transmise de l'onde rétrograde et la partie réfléchie de l'onde progressive.

$$a_j^-(z_j) = t_{j+1 \rightarrow j} \cdot a_{j+1}^-(z_j) + r_{j \rightarrow j+1} \cdot a_j^+(z_j) \quad (4)$$

Ces deux relations peuvent être synthétisées sous forme matricielle, ainsi :

$$\begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix} (z_j) = \begin{pmatrix} \frac{1}{t_{j \rightarrow j+1}} & -\frac{r_{j+1 \rightarrow j}}{t_{j \rightarrow j+1}} \\ \frac{r_{j \rightarrow j+1}}{t_{j \rightarrow j+1}} & \frac{r_{j \rightarrow j+1} \cdot r_{j+1 \rightarrow j}}{t_{j \rightarrow j+1}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{j+1}^+ \\ a_{j+1}^- \end{pmatrix} (z_j) = D_j \begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix} (z_j) \quad (5)$$

Dans les couches

Dans la couche j , l'amplitude des ondes propagatives et rétrogrades sont décrites par l'équation d'une onde plane :

$$a_j^+(z) = a_j^+(z_j) e^{2i\pi \frac{n_j \cos \theta_j (z-z_j)}{\lambda}}$$
(6)

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

On peut encore une fois synthétiser ceci sous forme matricielle :

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} a_j^+ \\ a_j^- \end{pmatrix} (z_{j-1}) &= \begin{pmatrix} e^{2i\pi \frac{n_j \cos \theta_j (z-z_j)}{\lambda}} & 0 \\ 0 & e^{-2i\pi \frac{n_j \cos \theta_j (z-z_j)}{\lambda}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_{j+1}^+ \\ a_{j+1}^- \end{pmatrix} (z_j) \\ &= C_j \begin{pmatrix} a_{j+1}^+ \\ a_{j+1}^- \end{pmatrix} (z_j) \end{aligned}$$
(7)

Ainsi, pour un empilement de couches, il est possible de calculer simplement l'amplitude des ondes propagatives et rétrogrades par simple multiplication des matrices des différentes couches et interfaces :

$$\begin{pmatrix} a_0^+ \\ a_0^- \end{pmatrix} = C_0 \prod_n^0 C_n D_n \cdot \begin{pmatrix} a_s^+ \\ a_s^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_s^+ \\ a_s^- \end{pmatrix}$$
(8)

Où n est le numéro de la couche, avec en C_0 l'interface entre le milieu extérieur et la première couche et en dernier l'interface entre le substrat et le milieu extérieur. Les coefficients de réflexion et de transmission de l'ensemble sont donc :

$$r = \frac{a_0^-}{a_0^+} = \frac{m_{21}}{m_{11}}$$
(9)

$$t = \frac{a_s^+}{a_0^+} = \frac{1}{m_{11}}$$

On a donc un moyen de créer des composants optiques permettant de contrôler r et t pour peu que l'on ait des méthodes appropriées. La conception de l'empilement de couches minces est une science qui ne sera que très peu abordée dans le présent travail. Mais il est utile de comprendre que des composants d'une grande complexité spectrale peuvent être fabriqués comme on peut le voir à gauche sur la Figure 2.

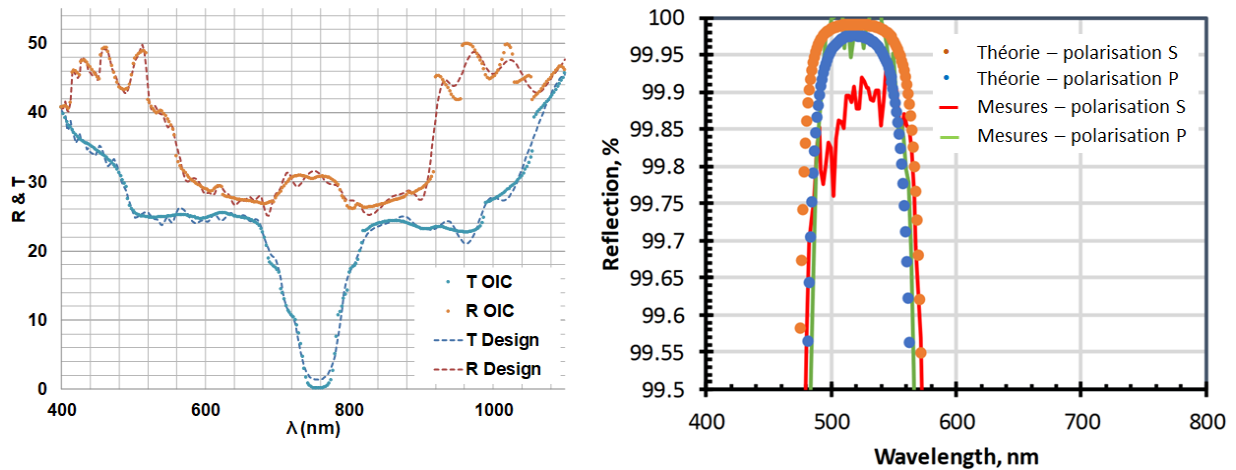


Figure 2 : Spectre de composants optiques réalisés à l'Institut Fresnel. A gauche composant développé sur les bases d'un gabarit proposé pour un concours de l'Optical Interference Coatings (OIC) [5]. À droite le spectre en réflexion d'un miroir où l'on peut voir l'écart entre design en orange et réalisation en rouge [6]. Ces écarts sont dus à des pertes dans le composant.

On remarquera sur le spectre de gauche de la Figure 2 que transmission et réflexion ne sont pas complémentaires, ce qui implique que ce composant induise également des pertes. Dans le cas du premier spectre (partie gauche) ces pertes sont utilisées pour obtenir la non-complémentarité entre transmission et réflexion, mais dans le cas du second spectre (partie droite) ces pertes, composées de diffusion et d'absorption, représentent un écart entre le design et le miroir réalisé. L'absorption peut être une limitation lorsque ce type de composant est utilisé avec des lasers de hautes puissances. La puissance absorbée conduit alors à des échauffements qui engendrent à leur tour des modifications de propriétés optiques voire à des dommages irréversibles.

1.2. Techniques de dépôt

Les couches minces sont des couches de matériaux de l'ordre du nanomètre à quelques centaines de nanomètres et utilisées dans divers domaines (optique, électronique, *etc.*). Pour réaliser de telles couches, plusieurs familles de procédés existent : dépôts physiques en phase vapeur (PVD), dépôts chimiques en phase vapeur (CVD), Solution-gélification (Sol-Gel). Pour la technologie CVD, un flux de gaz est injecté dans une chambre et par réaction avec le substrat donne naissance à une couche de l'espèce voulue. Pour les procédés Sol-Gel, on va utiliser une solution liquide et obtenir chimiquement le matériau désiré. Les couches minces optiques interférentielles (CMI) qui nous intéresseront dans la suite de ce travail sont produites par PVD. L'idée générale consiste à arracher des atomes/molécules d'un matériau contenu dans un creuset ou une cible. Ces atomes/molécules viennent se déposer sur un substrat placé face à la source de matière dans une chambre à vide, éventuellement en se recombinaut avec d'autres espèces.

L'évaporation et la pulvérisation sont deux techniques permettant de réaliser des composants optiques en couches minces. Il existe toutefois de multiples façons de procéder dont certaines sont présentées ci-après.

Electron Beam Deposition (EBD) ou évaporation par faisceau d'électron

L'EBD ou e-beam est un procédé d'évaporation qui consiste à envoyer directement sur la cible un flux d'électrons. L'utilisation d'un canon à électrons, dont le schéma de principe est visible sur la Figure 3, permet de ne chauffer directement que le matériau contenu dans le creuset et pas ce dernier. Cela présente l'avantage d'éviter la contamination du dépôt par le creuset et d'obtenir un meilleur contrôle de la température de chauffe [4].

Sur la Figure 4 on peut voir qu'il est possible d'ajouter une source ionique (IAD) permettant d'apporter de l'énergie aux atomes déposés et de garantir une bonne densité des couches.

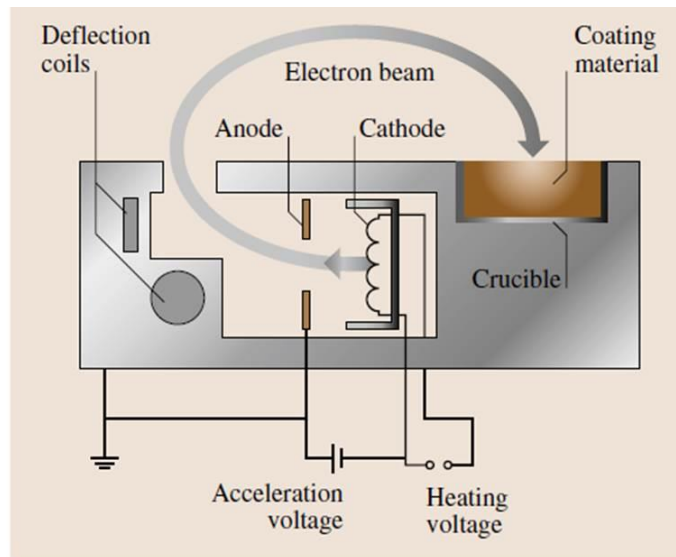


Figure 3 : Schémas d'un canon à électrons. Les électrons sont produits et accélérés par un système anode/cathode puis dirigés par déflection jusqu'au creuset. Le contrôle de la déflection permet de contrôler la position des électrons dans le creuset. En pratique, le flux d'électron est déplacé sur la surface de la matière pour obtenir l'élévation de température souhaitée et l'homogénéiser [7].

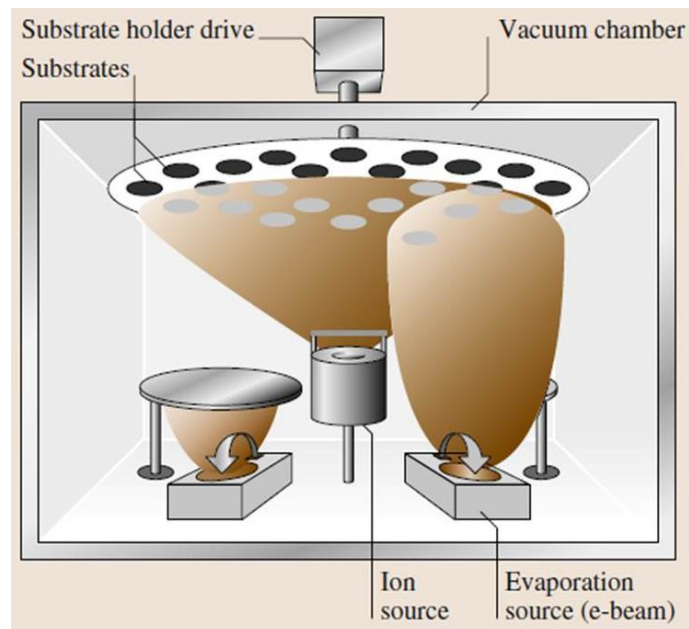


Figure 4 : Enceinte de dépôt type EBD avec IAD. L'enceinte contient deux couples canon à électrons/creuset afin de pouvoir changer simplement d'espèce à déposer, ce qui est indispensable pour les couches minces optiques interférentielles [7].

Ion-Beam Sputtering (IBS), dépôt par pulvérisation ionique

L'IBS consiste à diriger un faisceau d'ions vers une cible d'un matériau donné pour obtenir sa pulvérisation (Figure 5). Comme pour l'évaporation il est possible d'ajouter une assistance ionique (on parle alors de Dual Ion-Beam Sputtering ou DIBS) et de l'oxygène pour améliorer la qualité du dépôt [5]. En revanche la vitesse de dépôt de cette technique est plus faible.

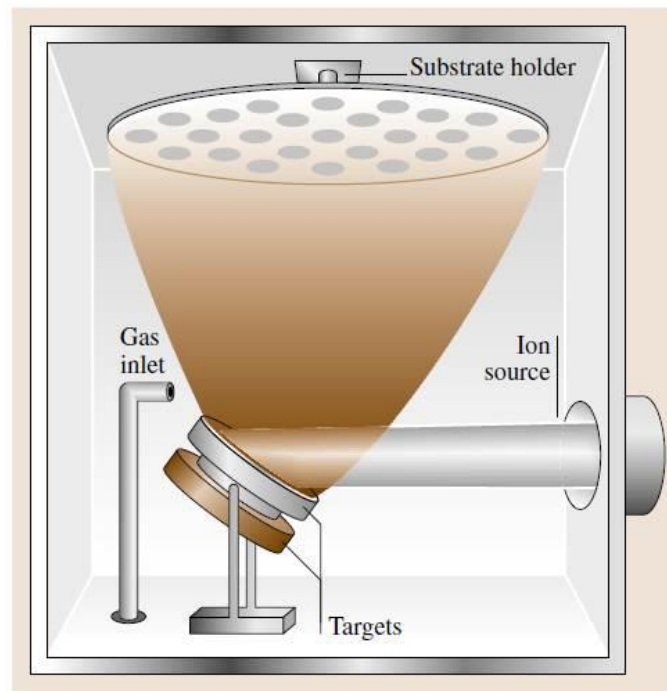


Figure 5 : Machine de dépôt par pulvérisation ionique [7].

Ces méthodes de dépôts sont utilisées pour réaliser des composants optiques de grande qualité, car ils permettent d'obtenir des couches denses et peu lacunaires. Cela conduit à une minimisation des pertes jusqu'à des ordres de grandeurs de l'ordre de quelques parties par millions.

Magnetron Sputtering (MS) ou pulvérisation magnétron

Dans le cas de la pulvérisation magnétron (MS), un plasma est créé et confiné autour des cibles. Les atomes électriquement chargés de ce plasma sont accélérés vers les cibles au moyen d'un champ électrique ce qui va mener à la pulvérisation des matériaux de la cible Le

confinement du plasma à l'aide de magnétons permet de réduire l'interaction entre plasma et substrat. Par ailleurs, la pulvérisation arrache également des électrons aux matériaux qui vont renforcer l'ionisation du plasma. La Figure 6 présente le principe fonctionnement de ce type de technologie de dépôt.

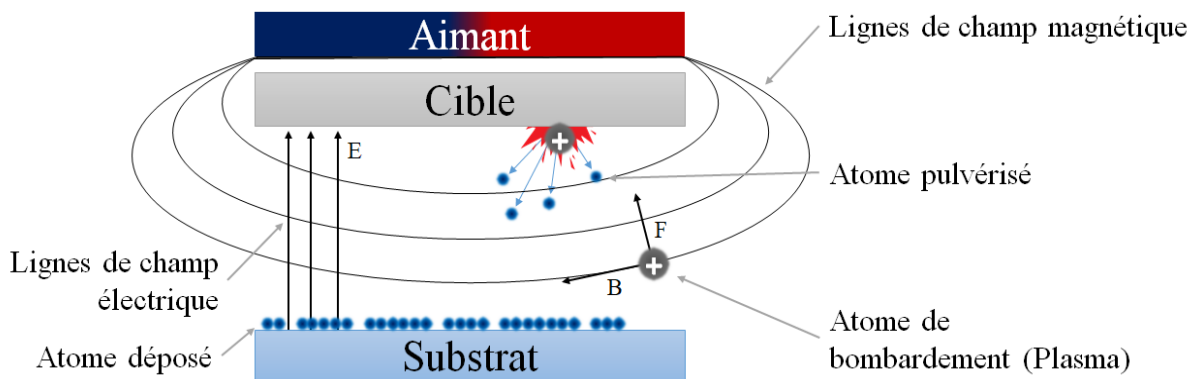


Figure 6 : Machine de dépôt par pulvérisation magnétron.

Enceinte à vide

Les éléments sont déposés sur le substrat grâce à l'énergie cinétique acquise lors de la vaporisation ou de la pulvérisation. La présence d'air ou de particules réduira le flux atteignant le substrat, il est donc nécessaire de procéder aux dépôts dans une chambre à vide. Ce vide permet également d'évaporer les espèces à des températures plus basses. Les gaz résiduels jouent aussi un rôle lors de la coalescence des matériaux déposés. La quantité de molécules qui atteint un substrat à chaque seconde v est telle que [9] :

$$v = \frac{1}{4} n_{mol} \sqrt{\frac{8k_B T^\circ}{\pi m}} \quad (10)$$

Avec n_{mol} le nombre de molécules considérées par unité de volume, m la masse, k_B la constante de Boltzmann et T la température. On peut relier n_{mol} proportionnellement à la température et inversement proportionnellement à la pression grâce à la loi des gaz parfaits. Pour maximiser la quantité de matériaux sur le substrat, il est donc préférable de maximiser la

température et de minimiser la pression. Il est à noter que ce modèle néglige les interactions entre particules déposées qui peuvent être importantes.

Contrôle de dépôts

Pour contrôler l'épaisseur des couches déposées sont principalement utilisées deux stratégies, le contrôle par microbalance à quartz et le contrôle optique. La première méthode consiste à introduire dans l'enceinte une microbalance utilisant un cristal de quartz qui lorsqu'il est soumis à une excitation électrique alternative, va présenter une fréquence de résonance inversement proportionnelle à sa masse. On peut donc déduire la masse m à partir de la fréquence de résonance f :

$$2 \frac{\Delta f}{f} = - \frac{\Delta m}{m} \quad (11)$$

On peut remonter à l'épaisseur de la couche avec la connaissance de la masse volumique de l'espèce déposée et de la surface du cristal déposée.

La seconde méthode consiste à utiliser les propriétés d'interférences dans les couches minces pour contrôler l'épaisseur. Comme nous le verrons dans le chapitre 3, la transmission monochromatique dans une couche évolue périodiquement avec l'épaisseur (cela prend une forme proche d'une sinusoïde). La période de cette variation intervient pour une épaisseur optique du matériau correspondant à $\frac{1}{2}$ de la longueur d'onde. On peut donc remonter à l'épaisseur réelle avec la connaissance de l'indice de réfraction du matériau déposé. Lors du dépôt de composant multicouches, les paramètres que l'on veut contrôler étant la transmission ou la réflexion du composant il est possible de procéder à une compensation des erreurs *in-situ* pendant le dépôt. C'est cette méthode que nous utiliserons lors de tous nos dépôts au cours de cette thèse.

2. Absorption dans les couches minces optiques

2.1. Définitions

L'absorption en optique désigne un processus physique par lequel l'énergie électromagnétique est couplée dans le matériau. On résume les différentes interactions possibles à la traversée d'un milieu faiblement émissif par la relation :

$$R + T + D_S + A = 1 \quad (12)$$

Où R est la proportion de lumière incidente réfléchiée, T la proportion de lumière incidente transmise, D_S la proportion de lumière incidente diffusée, et A la proportion de lumière incidente absorbée. La conservation de l'énergie implique que la somme de ces termes soit égale à 1.

Lors de la propagation d'une onde plane dans un matériau absorbant, l'amplitude du champ électrique décroît lors de la propagation. En exprimant l'indice de réfraction complexe d'un matériau tel que $\underline{n} = n' + n''i$, avec n'' le coefficient d'extinction, l'expression de l'onde plane se propageant est :

$$E(\tau, l) = E_0 e^{-i\omega\tau} e^{ikl} = E_0 \cdot e^{-i\omega\tau} \cdot e^{i\frac{2\pi}{\lambda}n'l} \cdot e^{-\frac{2\pi}{\lambda}n''l} \quad (13)$$

Avec $k = \frac{2\pi}{\lambda} \underline{n}$ le nombre d'onde, E le champ électrique, E_0 l'amplitude du champ en entrée, et l la longueur de propagation. L'avant dernier terme traduit le déphasage à la propagation et le dernier terme l'atténuation à la propagation. Le coefficient d'absorption α est lié au coefficient d'extinction optique n'' et la longueur d'onde de la radiation incidente λ par la relation :

$$\alpha = \frac{4\pi}{\lambda} n'' \quad (14)$$

Notons que pour l'intensité $I = \langle E^2 \rangle$ On retrouve alors la loi de Beer-Lambert à partir de l'équation (13) :

$$A = \frac{I}{I_0} = e^{-\alpha l} \quad (15)$$

Avec I l'intensité lumineuse transmise et I_0 l'intensité incidente et l la longueur de propagation dans le milieu considéré. Mais notons que cette définition est valable dans le seul cas où l'on néglige la diffusion et en l'absence d'effets interférentiels.

2.2. Origine de l'absorption

De façon générale, on peut différencier deux types d'absorption : intrinsèque et extrinsèque. La première est due à la nature même du matériau, alors que la seconde trouve son origine dans des imperfections et défauts consubstantiels à la fabrication.

L'absorption intrinsèque dans un diélectrique est due d'une part à l'absorption moléculaire (ou absorption liée à l'excitation de niveaux vibrationnels) qui se situe dans le domaine infrarouge comme illustré dans la Figure 7.

D'autre part la structure électronique de bande des matériaux entraîne une absorption des photons dont l'énergie est supérieure à l'énergie de bande interdite (ex. : SiO₂ avec un bandgap de 9 eV [10] absorbe théoriquement au-dessus de 138 nm). L'absorption peut aussi provenir de défauts existants dans le matériau, comme des défauts de maille qui créent des niveaux électroniques dans la bande interdite, qui autorisent une absorption pour des longueurs d'onde plus longues que pour l'absorption interbande. Certains de ces défauts peuvent être créés par l'irradiation laser elle-même, avec des durées de vie variables : défauts transitoires qui ne se maintiennent que durant le temps de cette irradiation ou très stables qui ont une durée de vie longue. Enfin, il est possible que des électrons libres dans la bande de conduction contribuent à l'absorption. Ces électrons peuvent transmettre leur énergie par voie thermique à d'autres

électrons et ainsi les envoyer eux aussi dans la bande de conduction où ils pourront eux aussi participer à l'absorption. Il existe aussi d'autres effets non linéaires électromagnétiques, mais ces derniers étant absents pour des sources laser continues, nous ne les décrivons pas plus avant [11]. Les trois modes d'absorption intrinsèque sont résumés dans la Figure 8.

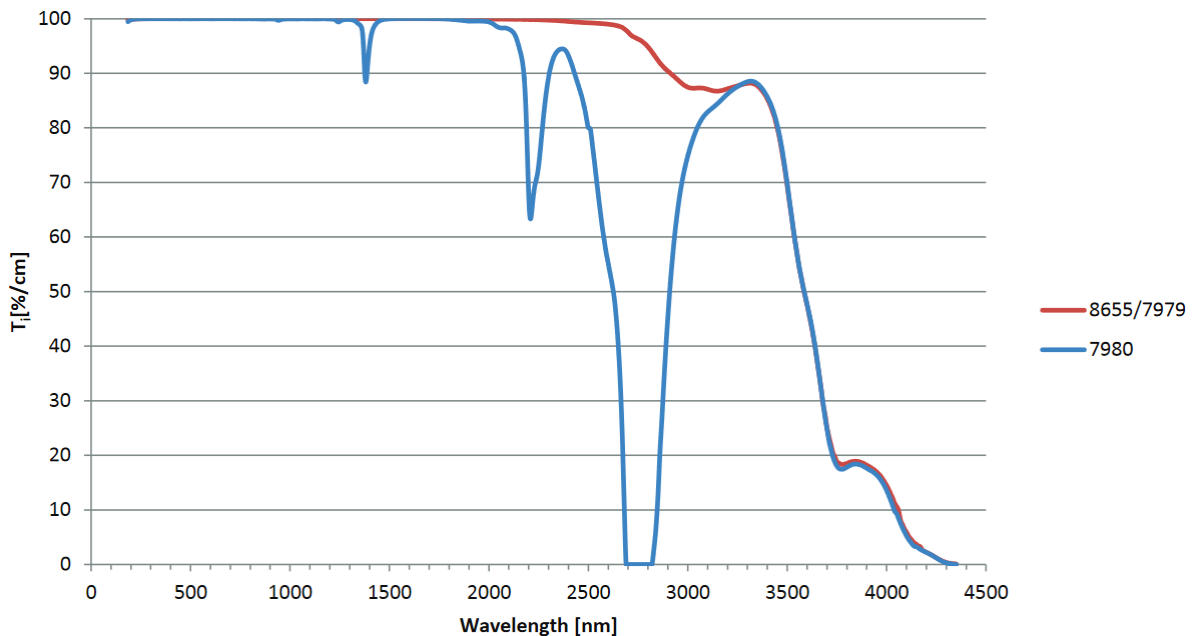


Figure 7 : Transmission mesurée par Corning pour deux de leurs silices fondues fournies. Les bandes d'absorption dans le proche infrarouge s'expliquent par la présence plus importante d'ions OH- dans les substrats de Corning 7980, mais toutes les silices absorbent fortement à partir de 3500 – 4000 nm [13].

L'absorption extrinsèque est quant à elle causée par des défauts dûs aux procédés de fabrication. La plus évidente est la pollution extérieure par des particules absorbantes. Dans le cas d'un dépôt de couches minces, il peut s'agir d'un contaminant dans la cible, d'un résidu du lavage, *etc.* comme on peut le voir sur la Figure 9. De plus, lors de l'utilisation du composant optique, on peut voir apparaître des phénomènes de contamination dans le temps, créant de l'absorption extrinsèque [12].

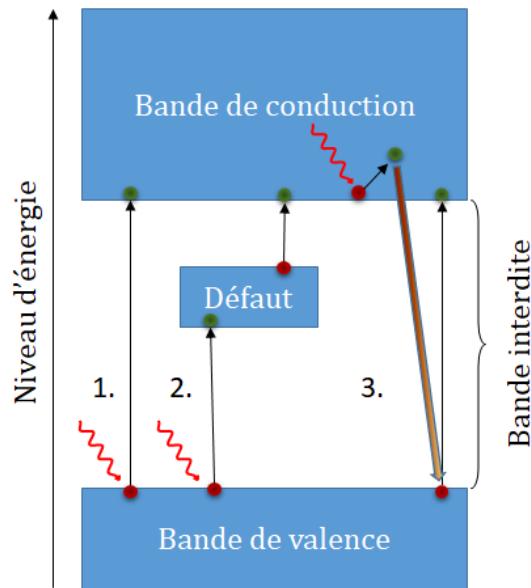


Figure 8 : Principaux modes d'absorption intrinsèque en continu. L'absorption peut intervenir lorsque 1. L'énergie de la radiation incidente dépasse la différence d'énergie entre bande de valence et de conduction, 2. Lorsque cette énergie est suffisante pour atteindre, depuis la bande de valence, un niveau créé par un défaut dans le matériau massif (ou du défaut vers la bande de conduction), 3. Directement par un électron dans la bande de conduction, ce qui peut mener à des phénomènes non linéaires.

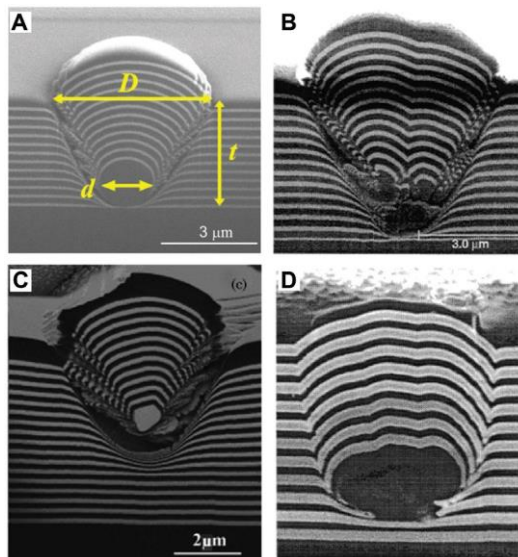


Figure 9 : Influence d'une impureté sur le dépôts. Lors d'un dépôt de couches minces, impuretés et résidus de fabrications peuvent sévèrement altérer la géométrie du dépôt et/ou de la structure du matériau, créant des sites d'absorption plus importants que celui du matériau « idéal » [14].

2.3. Localisation de l'absorption

Ces différentes causes impliquent que l'absorption peut ne pas être uniforme sur la surface du composant, mais localisée. Il peut s'agir de la localisation de sites d'absorption, qui est un sujet régulièrement traité [15,16]. Les travaux menés se sont surtout concentrés sur la résolution spatiale des instruments de mesure, permettant de détecter des particules absorbantes de quelques nanomètres, mais la plupart du temps elles ignorent la précision sur la valeur de l'absorption. L'absorption peut être localisée soit :

- à l'intérieur du substrat ou des couches
- aux interfaces entre deux milieux

Dès 1979, Temple propose une technique pour distinguer et discriminer les différentes sources de l'absorption, décrites ci-dessus [17]. Il réalise pour cela une monocouche de As_2Se_3 sur un substrat de CaF_2 . Le dépôt est réalisé de sorte qu'une partie du substrat ne soit pas recouvert et que la couche mince quant à elle voie son épaisseur augmenter de façon linéaire. Ainsi, il est possible de mesurer l'absorption du substrat nu là où il n'y a pas de dépôt. De plus, il est possible de distinguer l'absorption air/couche et couche/substrat en considérant que la pente entre les points de mesure d'absorption à $n \times \frac{\lambda}{2}$ (où n un entier naturel et λ la longueur d'onde absorbée) est due à l'absorption dans la couche et en mesurant cette absorption à plusieurs longueurs d'onde. Toutefois, cette technique n'est valable que pour des monocouches et nécessite l'utilisation de masques lors du dépôt. Roche *et al.* [2] ont développé une autre stratégie consistant à déduire l'absorption aux interfaces en considérant que :

- l'absorption dans la couche est homogène,
- deux mesures sont réalisées avec une illumination par les faces avant et arrière de l'optique étudiée,
- la longueur d'onde d'étude est telle que les couches considérées sont demi-onde pour cette longueur d'onde.

Il est alors possible de distinguer l'absorption provenant des interfaces. Cette technique convient pour des dépôts de multicouches classiques, mais elle nécessite que la condition sur l'absorption à l'intérieur des couches soit vérifiée et impose d'importantes limitations expérimentales.

3. Couches minces optiques soumises à de forts flux lasers continus

3.1. Effets thermiques

Une des propriétés importantes lorsque l'on étudie la tenue au flux laser en régime continu est que les phénomènes physiques mis en jeu sont essentiellement de nature thermique. La première étape est donc de définir les différents effets thermiques qui peuvent apparaître. Ceux-ci sont résumés dans la Figure 10.

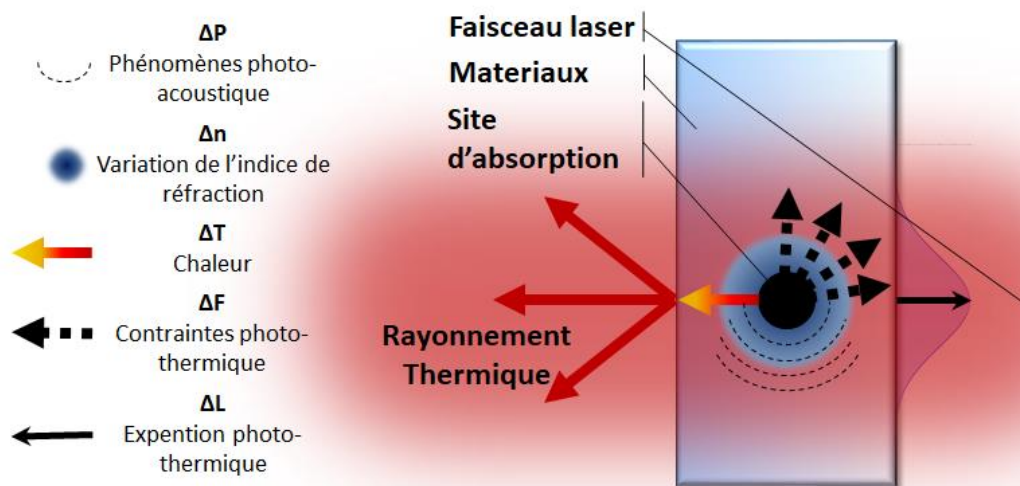


Figure 10 : Vue d'ensemble des phénomènes thermiques. Ici on considère un site d'absorption (défaut, contaminant) qui entraîne une montée en température locale. Les effets induits par cette élévation de température sont mécaniques ou optiques.

L'absorption par un défaut dans le matériau va entraîner une élévation locale de la température. Il s'ensuit que le matériau va se dilater (ou se rétracter selon le coefficient de dilatation du matériau) et l'indice de réfraction augmenter (ou diminuer selon le coefficient de variation d'indice du matériau) proportionnellement à la température. Il y aura aussi en surface une émission de rayonnement infrarouge. La dilatation du matériau aura pour conséquence la déformation de l'échantillon, mais également une modification de l'indice associée aux effets photo-élastiques. Il est à noter que, dans le cas où le rayonnement absorbé est modulé ou pulsé,

les contraintes en se propageant dans le matériau donnent naissance à une onde acoustique. Tout cela est valide pour un matériau massif, les couches minces posent des problématiques spécifiques bien que les phénomènes soient fondamentalement les mêmes. Une illustration de ces phénomènes est présentée dans la Figure 11.

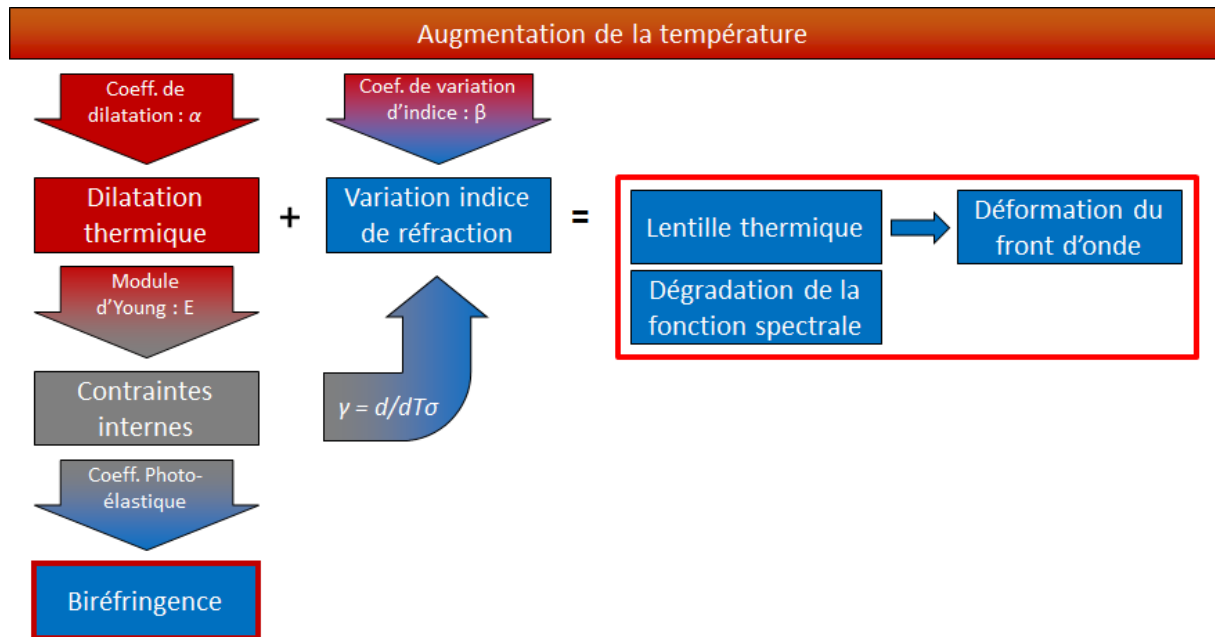


Figure 11 : Illustrations des conséquences des effets thermiques sur les propriétés optiques. Ces effets sont observés et modélisés dans les matériaux massifs. Mais pour les couches minces les modèles peuvent être différents, et les effets bien plus importants ou au contraire négligeables.

Du point de vue mécanique, le coefficient de dilatation thermique est différent entre les différentes couches déposées. Cette différence engendre des contraintes supplémentaires liées à l'échauffement lors de l'irradiation par rapport à celles préexistantes entre les différentes couches. Firth et Srinivasan proposent un modèle simplifié de ces contraintes ζ [18] :

$$\zeta = E_S \cdot \Delta T^\circ \cdot (\alpha_{\text{Substrat}} - \alpha_{\text{couche}}) \quad (16)$$

Où E_S est le module d'Young (ou élastique), T° la température et α_{couche} et $\alpha_{Substrat}$ sont (uniquement dans cette sous-partie) les coefficients de dilatation linéaire de la couche et du substrat. Dans sa thèse, où il s'intéresse à la détermination des coefficients thermo-optiques dans les couches minces, des modèles plus complets sont détaillés par Sébastien Michel [19]. On trouve dans la littérature d'autres modèles adaptés à différentes conditions d'irradiations [20].

Concernant la dépendance en température de l'indice de réfraction, celle-ci est linéaire en première approche [21]. Nous pouvons donc écrire que $\beta = \frac{\partial n}{\partial T}$, avec β le coefficient thermo-optique décrivant la variation de l'indice de réfraction n en fonction de la variation de température. Quant à la dépendance aux contraintes, elle s'exprime à l'aide d'un tenseur [22] ou de coefficients élasto-optiques [19] selon les modèles.

Les contraintes et la variation d'indice de réfraction entraînent une variation du chemin optique δ et l'apparition d'une lentille thermique de focale f_{th} [23] :

$$\delta = \int_0^L [\alpha(n_0 - 1) + \Delta n_T + \Delta n_\sigma] \quad (17)$$

$$f_{th} = \frac{2\pi K}{1,3A\alpha L} \frac{w^2}{P} \quad (18)$$

Avec le coefficient de dilatation linéaire $\alpha = \frac{\Delta L}{L_0}$ où L_0 est la longueur initiale du matériau et ΔL l'élongation thermique. Δn_T et Δn_σ sont les différences d'indice induites par la température et les contraintes. La conductivité thermique est K , l'absorption optique A , w et P sont respectivement le waist du faisceau laser et sa puissance. Cette lentille thermique va entraîner une déformation du front d'onde. Dans le cas des couches minces, les effets thermiques peuvent entraîner des variations de phases plus importantes que dans le cas d'un matériau massif comme on peut le voir sur la Figure 12.

Pour comprendre ce comportement, il faut prendre en compte le fait que les composants en couches minces reposent sur des effets d'interférences à ondes multiples induits par les

réflexions sur les différentes interfaces. Une modification de l'épaisseur optique de la couche (thermique ou autre) peut alors mener à des amplifications des déformations du front d'onde réfléchi ou transmis par ces composants [24].

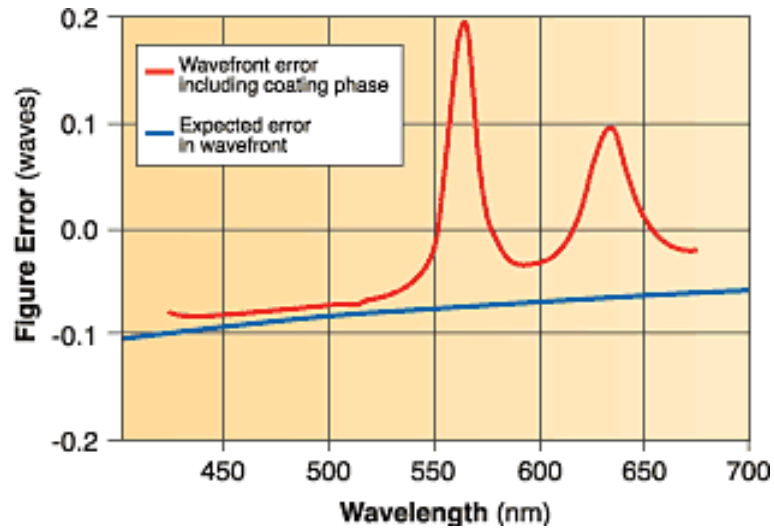


Figure 12 : Différence de déformation de front d'onde entre matériaux massif et couches minces. En raison des effets de phase, l'erreur de front d'onde calculée pour une erreur d'uniformité de 1 % (réduction d'épaisseur) dans un réflecteur à large bande à 27 couches pour la région visible varie considérablement de ce qui serait attendu de simples considérations d'uniformité [25].

Comme les propriétés des composants optiques en couches minces dépendent de l'épaisseur optique de chacune des couches d'un empilement, une modification de l'indice ou de l'épaisseur des couches impactera les propriétés spectrales des composants. Dans notre cas, l'échauffement peut notamment mener à un décalage de la longueur d'onde de centrage du composant (Figure 13). Comme on peut le voir dans l'équation (17), la différence de chemin optique dépend du coefficient de dilatation thermique α et du coefficient de variation thermique d'indice optique β . Stolberg-Rohr *et. al.* proposent une expression simplifiée, pour le cas de filtres Fabry-Perot, du décalage de la longueur d'onde de centrage par rapport à la température $d \frac{\lambda}{\lambda_0}$ [26] :

$$\frac{d \lambda}{dT \lambda_0} = S_{Low}(\alpha_{Low} + \beta_{Low}) + S_{High}(\alpha_{High} + \beta_{High}) \quad (19)$$

Où α_{Low} et β_{Low} sont respectivement les coefficients de dilatation linéaire et de variation d'indice pour le matériau bas indice et α_{High} et β_{High} les mêmes coefficients pour le matériau haut indice. S_{Low} et S_{High} sont ici des constantes dépendantes de la structure multicouche. On voit que ce décalage dépend de la formule d'empilement ainsi que des matériaux. Il est donc proposé d'utiliser des matériaux dont les coefficients α et β se compensent. Toutefois, il est difficile de trouver des matériaux avec des coefficients négatifs. Haruo Takashashi propose alors une autre approche ou les matériaux utilisés minimisent ces coefficients [27]. Il montre aussi que ces mêmes coefficients du substrat ont un impact sur la stabilité en température des filtres à bande étroite et que le choix de ce dernier est donc déterminant.

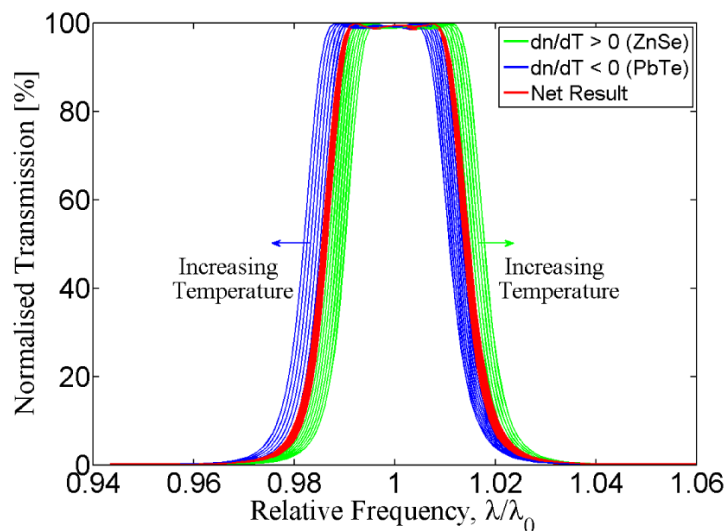


Figure 13 : Invariance de la longueur d'onde de centrage par contrôle des coefficients de variation de l'indice. Toutefois, Stolberg-Rohr et Hawkins montrent que selon la formule d'empilement optique ce contrôle peut entraîner une dépendance de la largeur de bande pour un filtre interférentiel [26].

3.2. Tenue au flux laser continu

En cas de trop forte montée de la température dans les matériaux (i.e. puissance laser trop importante), les composants optiques vont atteindre un point de rupture : le seuil de tenue au flux laser ou Laser Induced Damage Threshold (LIDT). Le premier phénomène pouvant conduire à la rupture est la fusion d'un matériau du composant optique multicouches. L'autre

phénomène est lié aux contraintes entre les différentes couches. Lorsque celles-ci dépassent le seuil de tenue mécanique des matériaux, on va assister soit : à un cloquage dans le cas de contraintes de compression, soit à des fissures dans le cas de contraintes de tension. Une illustration des mécanismes d'endommagement est présentée dans la Figure 14.

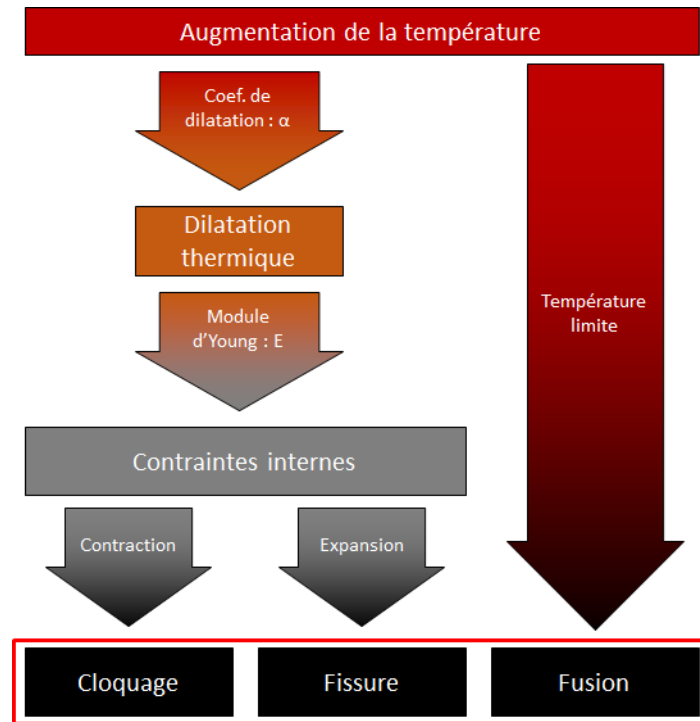


Figure 14 : Illustration des dommages thermiques. Le seuil de tenue au flux laser des composants optiques sous flux laser continu est dû soit à la fusion, soit aux contraintes.

Taylor propose deux modèles analytiques reposant sur des hypothèses simplificatrices, l'un permettant de calculer à partir de la température de fusion la puissance absorbée limite (équation (20)) et l'autre la température de rupture à partir des paramètres mécanique de la couche. (équation (21)) [28] :

$$AP = 2\sqrt{2\pi}Kw \cdot \Delta T_{fusion}^0 \quad (20)$$

Où A est l'absorption dans le matériau, P la puissance laser incidente sur le composant optique, K est la conductivité thermique et w le waist du faisceau.

$$\Delta T^{\circ}_{rupture} = \frac{3(1 - 2\nu_p)}{\Delta\alpha E_S} (\zeta_{lim} - \zeta) \quad (21)$$

où ν_p est le coefficient de poisson, α le coefficient de dilatation, E_S le module d'Young. ζ_{lim} est la contrainte limite et ζ la contrainte induite dans le matériau. Notons qu'il est possible de retrouver la puissance absorbée correspondant à une rupture mécanique en remplaçant la température de fusion par celle de rupture dans l'équation 20. Nous reviendrons plus en détail sur cette équation dans le chapitre 2 (cf. 1.1).

À partir de ces relations, Taylor obtient des ordres de grandeur pour différents matériaux qui sont résumés dans le Tableau 1 et le Tableau 2 :

Tableau 1 : Seuil de tenue au flux laser estimé sur le critère de fusion des matériaux. On constate que cette limite dépend à la fois de la température de fusion du matériau, mais aussi de sa conductivité thermique. Lorsque la conductivité est basse, il résulte une montée en température plus importante et un abaissement du seuil de tenue au flux laser [28].

Calculated CW Laser Melting Thresholds

Material	Melting Temperature (K) ^a	Thermal Conductivity (W/(m K)) ^a	Melting Power (kW/ μ m) ^b
SiO ₂	1870	1.5	11.
HfO ₂	3031	1.1	15.
TiO ₂	2116	4.8	43.
Al ₂ O ₃	2345	25.	250
Ta ₂ O ₅	2145	33.	300

^abulk values assumed. Data from web database.

^bMelting power calculated with 1 ppm absorption.

Tableau 2 : Seuil de tenue au flux laser calculé par rupture du matériau. On voit que le coefficient d'expansion thermique seul ne suffit pas à expliquer la rupture du matériau [28], il faut prendre en compte le module d'Young.

Calculated CW Laser Film Fracture Thresholds

Material	Thermal Expansion Coefficient ($10^{-6}/K$) ^a	Fracture Temperature ($W/(m K)$) ^b	Fracture Power ($kW/\mu m$) ^c
HfO ₂	6	2700	8.7
TiO ₂	9	540	3.8
Al ₂ O ₃	8	590	24.
Ta ₂ O ₅	4	1900	170

^abulk values assumed. Data from web database.

^bFracture temperature calculated assuming fracture stress of 300 MPa

^cFracture power calculated with 1 ppm absorption

D'après ces estimatifs, la rupture mécanique doit arriver avant la fusion. On remarque aussi que les résultats sont donnés en $kW/\mu m$. Puttick et al. constatent que dans le cas des lasers continus, le seuil de tenue au flux laser est proportionnel au rapport de la puissance laser avec le waist du faisceau laser et non avec sa surface [29]. Ce fait est visible sur la Figure 15. On y voit aussi une dépendance à la durée d'impulsion.

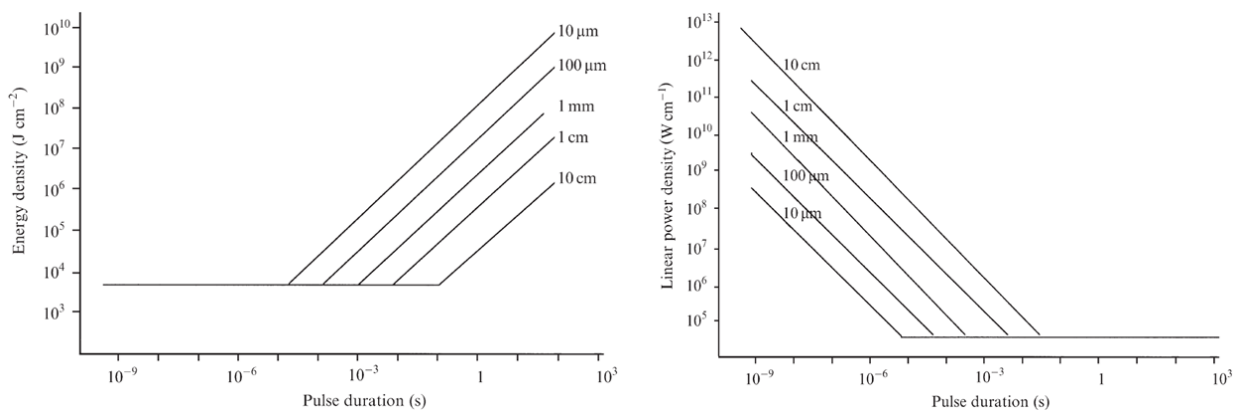


Figure 15 : Dépendance du seuil de tenue au flux laser en fonction de la durée d'impulsion laser. La courbe de gauche est exprimée en J/cm^2 et celle de droite en W/cm , mais elles sont équivalentes. Pour une taille de faisceau laser donnée, lorsque la durée de l'impulsion devient trop grande, la chaleur « s'échappe » par conduction dans le matériau, ce qui augmente la tenue au flux en J/cm^2 . Ici les valeurs sont données pour du sélénure de zinc (ZnSe) [11].

Le seuil de tenue au flux laser est liée à la longueur de diffusion de la chaleur $L^2 = 4D\tau$ avec D la diffusivité thermique et τ la durée d'impulsion. Quand cette longueur devient non

négligeable devant le waist du faisceau (pour $\tau = \frac{w^2}{D}$), on passe d'un régime où le seuil de tenue au flux laser est gouverné par la densité d'énergie déposée à chaque impulsion à un régime stationnaire où la grandeur d'intérêt est la puissance linéique.

Cependant, les résultats sont généralement exprimés en W/cm². De plus, la littérature sur la tenue au flux laser continu reste assez limitée, les efforts étant essentiellement concentrés sur ces effets en régime impulsionnel [28,30]. Toutefois, il existe un certain nombre de sources qui permettent de donner un ordre de grandeur des seuils de tenue au flux laser de matériaux communs :

- Wood donne dans son livre un résumé de travaux menés dans les années 70 avec des valeurs qui varient de 1 kW/cm² pour l'antimoniure d'indium (InSb) à 200 kW/cm² pour le cuivre ou l'or pour une longueur d'onde de 10,6 μm [11].
- Puttick *et al.* ont mesuré des seuils de tenue au flux laser (ZnSe) de quelques centaines de kW/cm² à quelques MW/cm², toujours dans l'infrarouge [29].
- Dans leur article Shah *et al.* indiquent que les discussions menées à Boulder et une analyse des optiques commerciales permettent d'obtenir des tenues au flux de quelques 10 kW/cm² à quelques 1 MW/cm² [30].
- Taylor et al. ont mesuré des seuils de tenue au flux laser sur des monocouches d'oxyde d'hafnium (HfO₂) et de dioxyde de Titane (TiO₂) allant de quelques dizaines à quelques centaines de kW/m² pour un laser Nd:YAG à 1 μm [31].
- Enfin CVI Laser Optics vend un miroir « Y1 » avec un seuil de tenue au flux laser en continu de 10 MW/cm² à 1064 nm [32].

Il existe aussi un aspect temporel à l'endommagement laser. À l'aide d'un modèle non détaillé dans leur publication, Shah *et al.* constatent l'existence d'un temps avant rupture — Time To Failure (TTF) — dépendant du waist laser. Ce comportement est visible sur la Figure 16. Il est aussi notable qu'avec ce modèle, les limites de tenue au flux obtenues correspondent aux ordres de grandeur mesurés de la littérature rapportés plus haut.

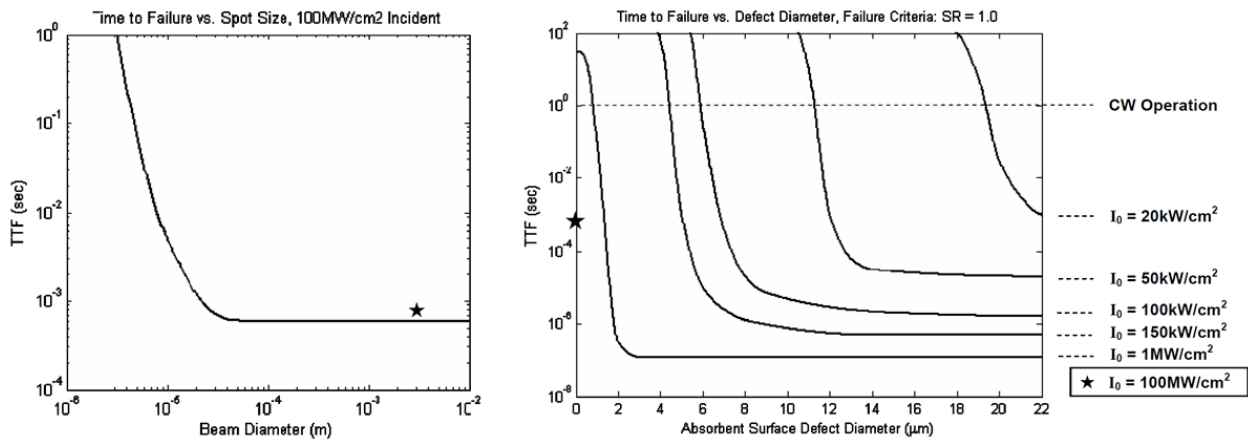


Figure 16 : Time To failure pour un matériau absorbant et pour des défauts de surface. Le calcul est effectué pour un empilement de 8 couches alternés de $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$. À gauche, l'absorption à 30 ppm et une irradiation de 100 MW/cm^2 et à droite on considère des défauts locaux parfaitement absorbants [30].

4. Mesure et quantification de l'absorption dans les couches minces optiques

Nous avons vu que l'ensemble des phénomènes thermiques avait pour origine l'absorption du rayonnement laser dans le matériau. Dans le cas des optiques traitées, l'absorption résiduelle est très faible (quelques ppm) pour des optiques performantes. Les techniques de mesure classiques de l'absorption (spectroscopie d'absorption, *etc.*), limitées à une précision de l'ordre du dixième de pourcent, sont inefficaces et ne permettent pas de discriminer les pertes par absorption de celles par diffusion. On utilise donc les effets thermiques induits pour remonter à l'absorption. Nous allons présenter quelques-unes des techniques, dites photo-thermiques.

4.1. Instruments de mesure

Calorimétrie laser

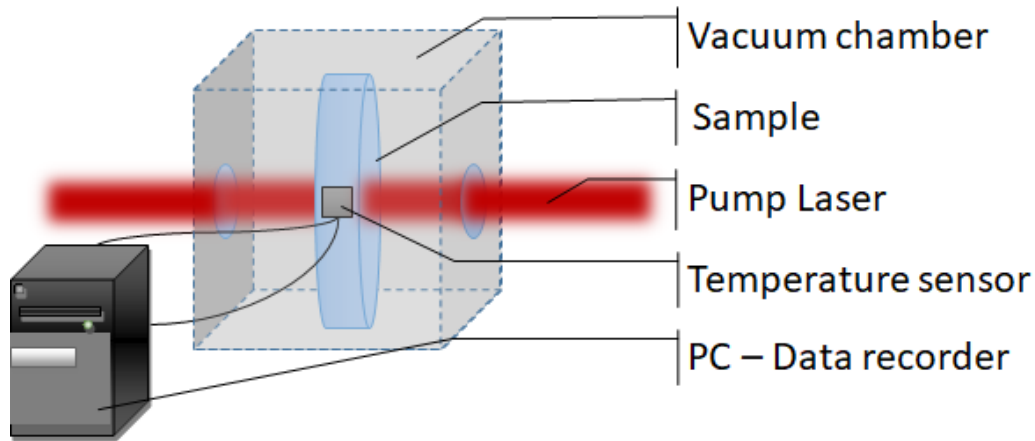


Figure 17 : Calorimétrie laser, schéma de principe. L'échantillon, sur lequel est fixée une sonde de température, est chauffé par laser. La mesure de cet échauffement, ajustée par un modèle et étalonnée, permet d'obtenir l'absorption. L'échantillon est placé dans une enceinte à vide pour que les variations de température de l'air ne perturbent pas la mesure.

La calorimétrie laser est le moyen le plus courant et le plus ancien de mesurer les très faibles absorptions [33,34]. Il consiste à mesurer directement l'élévation de température du composant optique grâce à un thermocouple ou une sonde de température comme on le voit sur la Figure 17. Cette élévation est obtenue grâce à l'utilisation d'un laser pompe. La courbe d'échauffement est ensuite comparée aux modèles proposés notamment dans la norme ISO 11551 [35]. L'étalonnage peut être fait de manière simple en remplaçant le laser pompe par un chauffage électrique équivalent, ce qui permet de s'affranchir de la connaissance des caractéristiques thermiques du matériau [36].

En 2019, cette technique a été améliorée et utilisée pour mesurer une couche mince d'oxyde d'hafnium (HfO_2) avec une limite de détection de 0,1 ppm pour une densité puissance pompe de 0,1 W/cm^2 [37]. C'est l'instrument de mesure d'absorption le plus efficace présenté dans la littérature à notre connaissance.

Déflexion photo-thermique

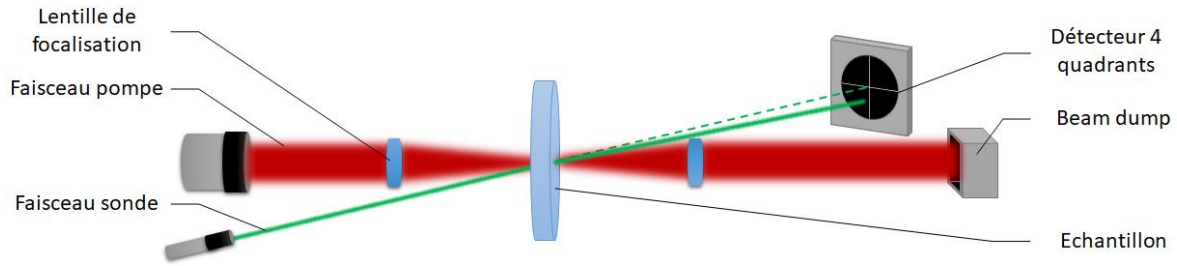


Figure 18 : Déflexion photo-thermique ou Photo-Thermal Deflection (PTD), schéma de principe. Le faisceau pompe modifie localement l'indice et la géométrie de l'échantillon par chauffage. Cette lentille thermique induit un changement de position du faisceau laser sonde sur un détecteur quatre quadrants ou une caméra. Cette variation est proportionnelle à l'absorption.

Il s'agit encore une fois d'une technique de mesure photo-thermique assez classique. Ici on utilise la lentille thermique créée par un faisceau pompe, généralement focalisé, puis on mesure la déflexion d'un autre faisceau incident pour déduire l'absorption [1]. La Figure 18 montre le schéma de principe de cette technique, mais il est à noter qu'il existe de nombreuses configurations possibles [38]. D'autres auteurs utilisent la réflexion sur la surface pour obtenir la déflexion [39] comme on peut le voir à gauche sur Figure 19. La déflexion photo-thermique permet de mesurer des absorptions de 0,1 ppm pour une densité de puissance pompe de 10^5 W/cm^2 [40,41].

Lentille thermique de surface

Ici on utilise une configuration sensiblement identique à celle de la déflexion photo-thermique, à ceci près que le faisceau sonde est plus large comme représenté sur la Figure 19. On ne mesure plus ici une déflexion, mais une variation d'une figure de diffraction [42] ou bien une défocalisation [43]. Cette technique a pour principal avantage la facilité de réalisation dans la mesure où le waist du faisceau sonde n'a pas besoin d'être petit devant celui du faisceau pompe. Comme pour la déflexion photo-thermique, on atteint des absorptions de 0,1 ppm pour une densité de puissance de pompe de 10^5 W/cm^2 [42,44].

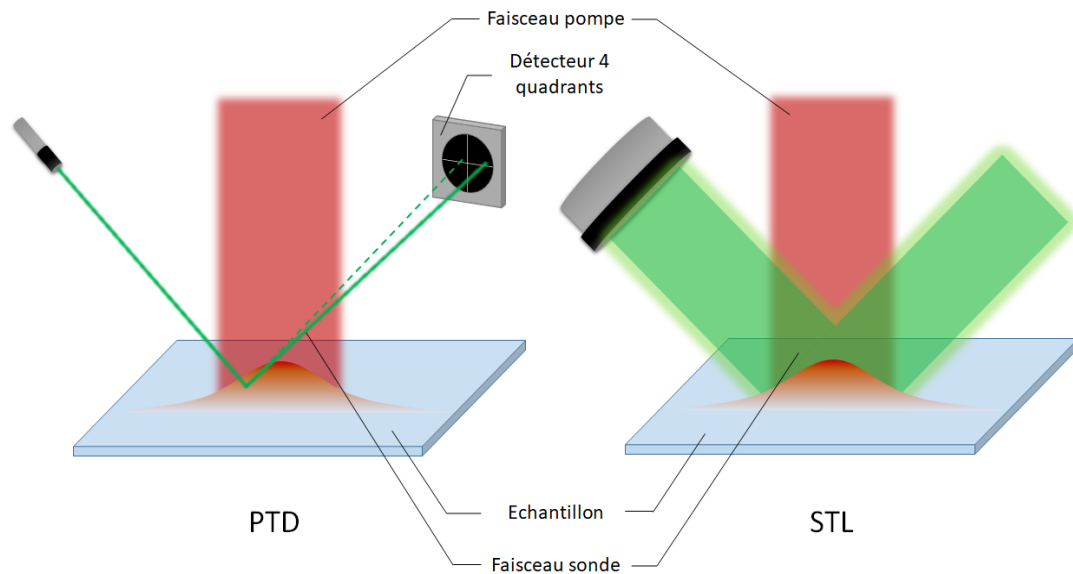


Figure 19 : Différence entre PTD et lentille thermique de surface ou Surface Thermal Lensing (STL). À gauche, la PTD nécessite un faisceau sonde de diamètre petit devant celui du faisceau pompe. À droite, la STL s'appuie sur la diffraction du faisceau sonde.

Interférométrie photo-thermique

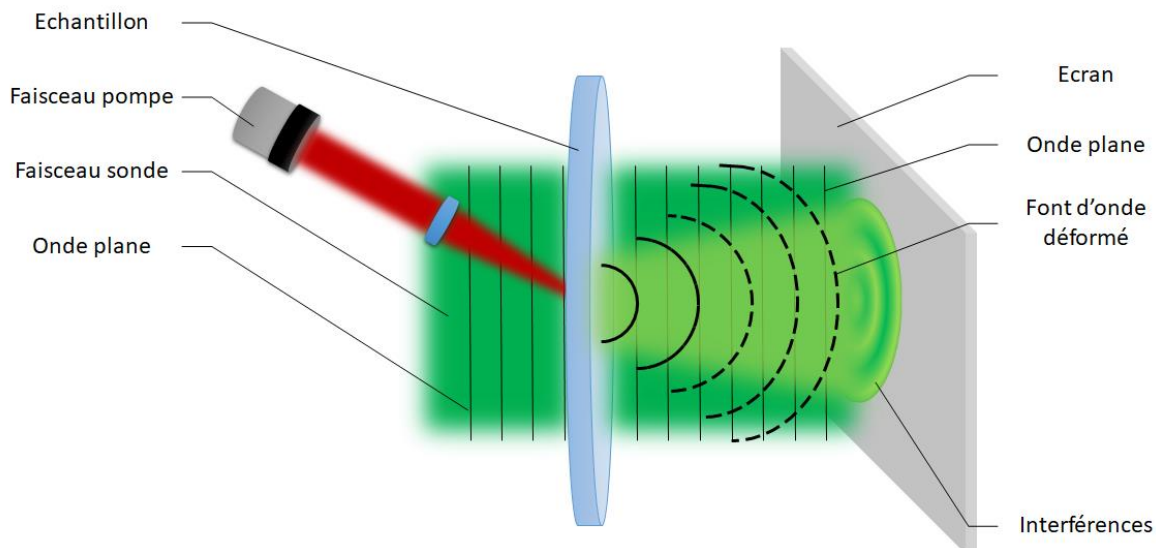


Figure 20 : Common-path Interferometry (CPI), schéma de principe. Ce système a un fonctionnement proche de la STL, avec un faisceau pompe et un faisceau sonde. Toutefois on mesure ici l'interférence entre les parties du faisceau sonde passant dans la zone de l'optique dont les propriétés sont modifiées par le faisceau pompe (vert clair) et les parties du faisceau sonde non modifiées (vert foncé).

Dite Common-path Interferometry (CPI) en anglais, il s'agit d'un système qui existe commercialement et qui utilise l'interférence due au déphasage que subit le centre d'un faisceau sonde, qui voit son chemin optique modifié par le faisceau pompe, et le bord qui lui reste inchangé [45,46]. Le principe de mesure est schématisé sur la Figure 20. Ce système a une sensibilité légèrement plus limitée si on la compare aux autres techniques photo-thermiques avec un minimum de 1 ppm pour 10^5 W/cm^2 [47].

Auto-modulation de phase

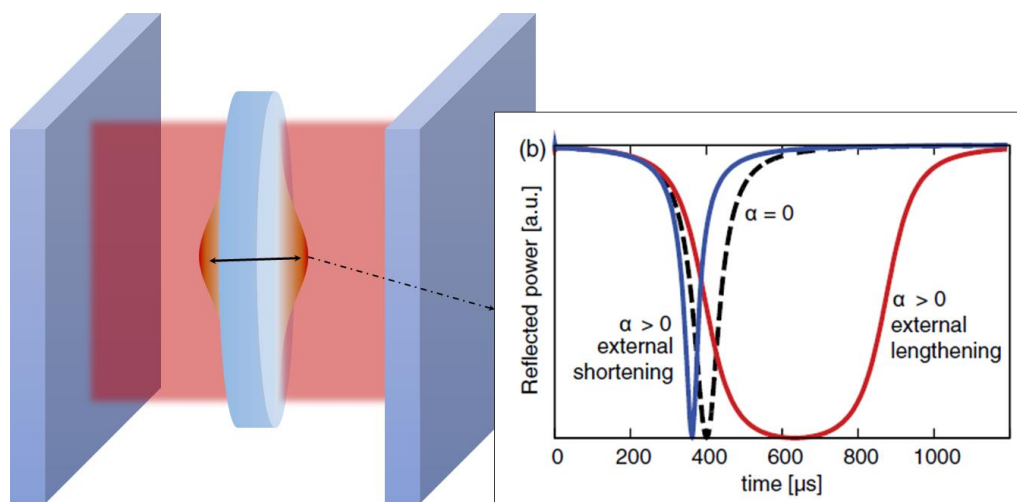


Figure 21 : Automodulation de phase, schéma de principe. Lorsque la cavité est résonante, l'échantillon s'échauffe modifiant le chemin optique et donc la résonance de la cavité. La figure à droite montre que selon que le chemin optique est augmenté ou diminué, la fonction d'Airy est « compressée » ou « étirée ».

Cette technique consiste à introduire l'échantillon à mesurer dans une cavité Fabry-Pérot. Lorsque celle-ci est résonante, la puissance intracavité augmente ce qui modifie les propriétés de l'optique et entraîne une modification du chemin optique. Cela entraîne une modification de la fonction d'Airy caractéristique de la cavité Fabry-Pérot. C'est la modification de cette fonction d'Airy qui va être modélisée et qui permet de déduire l'absorption. Le montage ainsi qu'un exemple de variation de la fonction d'Airy sont visibles sur la Figure 21. Cette technique, en plus de demander beaucoup de modélisation nécessite un instrument différent selon que l'on veuille mesurer un miroir ou un antireflet. Par ailleurs, une sensibilité de 0,01 ppm est calculée

par Schnabel *et al.* Toutefois, il faut noter que la puissance laser disponible n'est pas précisée et que la mesure d'une optique présentant un aussi faible niveau d'absorption n'est pas présentée [48,49].

Thermographie par détection synchrone

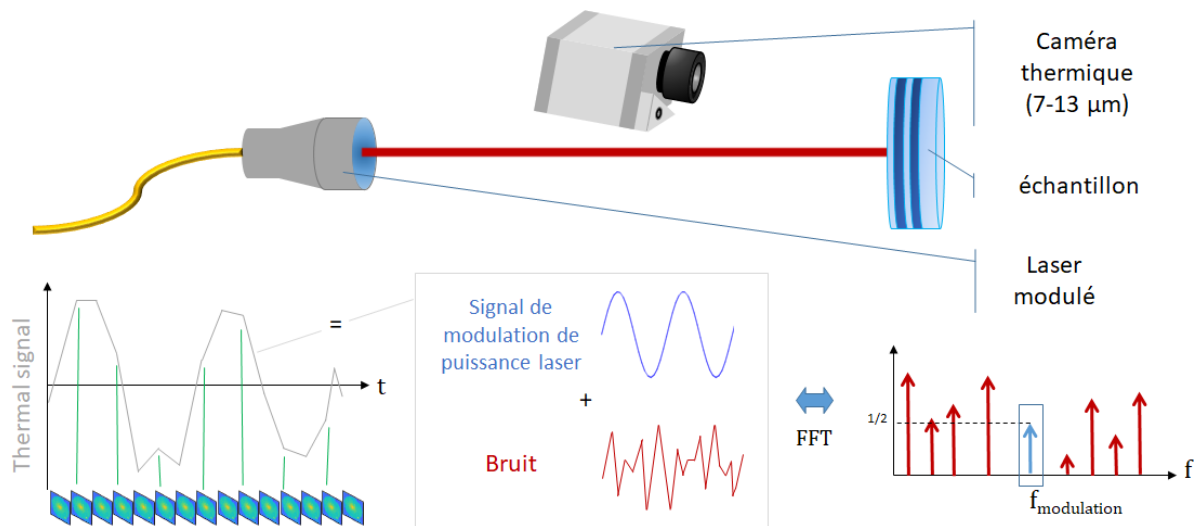


Figure 22 : Thermographie par détection synchrone, schéma de principe. L'échantillon est illuminé avec un laser modulé à une fréquence connue. L'émission thermique est détectée par une caméra infrarouge sur plusieurs périodes de modulation. On calcule la transformée de Fourier temporelle sur chaque pixel de l'image. En appliquant un filtre passe bande à la fréquence de pompe on peut isoler le signal thermique du bruit.

Appelé en anglais Lock-In Thermography (LIT), elle utilise l'émission infrarouge due à l'élévation thermique. Le faisceau pompe est modulé par un signal sinusoïdal afin de réaliser une détection synchrone sur les images provenant de la caméra thermique [50]. Il est possible de désynchroniser le signal de pompe et la prise d'image par la caméra, mais cela se fait au prix de la perte de l'information de phase. Sur la Figure 22 est présenté le principe général de la technique de LIT. Cette technique permet d'accéder simplement à la cartographie d'absorption de l'échantillon, mais avec une faible résolution spatiale. Par ailleurs, un étalonnage absolu nécessite la connaissance des paramètres thermiques du matériau et notamment de son émissivité. Un montage similaire a déjà été réalisé au laboratoire, avec une mesure sur un

composant à 40 ppm et une sensibilité calculée de 1 ppm pour 10 W/cm² [51]. Il est à noter que cette densité de puissance est basse en comparaison de la plupart des techniques présentés plus haut.

4.2. Absorption dans les couches minces

Les techniques décrites plus haut ont été utilisées pour effectuer des mesures sur divers types de composants. Nous présentons maintenant une synthèse des résultats trouvés dans la littérature. Comme il s'agit de mesures faites dans des conditions diverses et avec des monocouches d'épaisseurs variables, on normalise les résultats pour une monocouche de 500 nm. Lorsque le résultat est donné en ppm, mais pour une autre épaisseur, on fait une règle de trois ($A_{500\text{ nm}} = \frac{A_{e\text{ nm}}}{e} \times 500$ avec $A_{e\text{ nm}}$ l'absorption pour une couche de e d'épaisseur). Si le résultat est donné avec l'indice imaginaire k , on utilise les équations (12), (14) et (15) en considérant qu'il n'y a ni diffusion, ni réflexion (ou transmission dans le cas d'un miroir), ni effets interférentiels :

$$A_{500\text{ nm}} = \left(1 - e^{-\frac{4\pi}{\lambda}k \times 500\text{ nm}}\right) \times 10^6 \quad (22)$$

Dans les deux cas, en procédant ainsi on considère que l'absorption est entièrement due aux matériaux et on néglige que cette absorption provient aussi des interfaces. Cette approximation est rendue nécessaire par le fait que la plupart des publications donne des valeurs d'absorption générales pour l'optique et que dans nos propres études nous ne sommes pas en mesure de différencier les différentes origines de l'absorption. On calcule donc non pas un coefficient d'extinction n'' réel mais effectif. Ces approximations nous permettent d'avoir un ordre de grandeur auquel nous référer lors de nos propres expériences.

Nous verrons dans le chapitre 3 que les effets interférentiels font varier l'absorption du composant avec la réflexion. Cependant les simulations montrent que l'erreur commise est en dessous de 35 %, même avec une différence d'indice de 1 (substrat d'indice 1,5 et monocouche d'indice 2,5).

Ces résultats sont synthétisés dans le Tableau 3 pour les mesures dans le visible et le

Tableau 4 pour les mesures à 1064 nm. À la vue de ces tableaux, la silice (SiO₂) semble un choix judicieux comme matériau bas indice. Pour les matériaux de haut indice, le pentoxyde de niobium (Nb₂O₅) et le dioxyde de zirconium (ZrO₂) semblent, si l'objectif est de minimiser l'absorption dans la bande visible, relativement moins intéressants que les autres matériaux répertoriés ici. Toutefois pour le Nb₂O₅, on notera le manque de source confirmant cette conclusion. Le pentoxyde de tantale (Ta₂O₅) quant à lui semble avoir des absorptions globalement plus faibles que les autres matériaux dans les deux domaines spectraux considérés ici à l'exception du dioxyde de titane qui montre de meilleures performances dans l'infrarouge. Il est à noter que l'ordre de grandeur des absorptions mesurées sur l'oxyde d'hafnium (HfO₂) reste identique dans le visible et à 1064 nm.

Tableau 3 : Mesures d'absorption dans le visible. Les valeurs sont données pour des monocouches de 500 nm d'épaisseur et les valeurs grisées sont les valeurs dont les auteurs n'ont pas fourni les données nécessaires à la normalisation. Les techniques de dépôt sont précisées en exposant de chaque référence et en note de bas de page.*

$\lambda = 400 - 600 \text{ nm}$	A (ppm)	n''	Sources
SiO ₂	32 - 128	3,1.10 ⁻⁶ - 10.10 ⁻⁵	[2 ³ ,52 ⁶]
Ta ₂ O ₅	203 - 235		[39 ^{2,5}]
	7.2 - 255	5,6.10 ⁻⁷ - 2.10 ⁻⁵	[2 ³ ,52 ⁶ ,53 ⁴]
HfO ₂	1.6		[54 ²]
	55 - 7600	4,3.10 ⁻⁶ – 6.10 ⁻⁴	[52 ⁶ ,55 ^{2,4} ,56 ¹]
TiO ₂	105 - 356		[39 ^{2,5}]
	42 - 4075	4.10 ⁻⁶ - 10 ⁻⁵	[1 ^{2,3,4,5,7,8} ,2 ³ ,52 ⁶ ,57 ²]
Nb ₂ O ₅	1276	10 ⁻⁴	[52 ⁶]
ZrO ₂	123 - 176		[39 ^{2,5}]
	7754 – 3,8.10 ⁴	6,38.10 ⁻⁴ – 3.10 ⁻³	[34 ² ,52 ⁶]

Tableau 4 : Mesures d'absorption à 1064 nm. Les valeurs sont données pour des monocouches de 500 nm d'épaisseur. Les techniques de dépôt sont précisées en exposant de chaque référence et en note de bas de page précédente.

* 1. Atomic Layer Deposition, 2. Electron Beam Deposition, 3. Ion Assisted Deposition, 4. Ion Beam Sputtering, 5. Ion Plating, 6. Magnetron Sputtering, 7. Active Reactive Evaporation, 8. RF diode Sputtering.

$\lambda = 1064 \text{ nm}$	A (ppm)	n''	Sources
SiO ₂	2,4 - 40	$4,10^{-7} - 6,77.10^{-6}$	[33 ² ,58 ⁴ ,59 ¹]
TiO ₂	0,5 - 1846	$1,1.10^{-7} - 3,1.10^{-4}$	[33 ² ,57 ⁴ ,60 ⁴ ,61 ⁶]
Ta ₂ O ₅	1,22 - 340	$2,1.10^{-7} - 5,8.10^{-5}$	[33 ² ,61 ⁶ ,62 ⁴]
Nb ₂ O ₅	4 - 45	$10^{-6} - 7,6.10^{-6}$	[61 ⁶]
ZrO ₂	9 - 57	$1,5.10^{-6} - 9,7.10^{-6}$	[61 ⁶ ,62 ⁴]
HfO ₂	33 - 335	$5,6.10^{-6} - 5,7.10^{-5}$	[33 ² ,55 ^{2,4} ,63 ¹]

On remarque que les valeurs d'absorption présentées dans ces tableaux ont des variations dans une gamme couvrant quatre ordres de grandeur. Comme dit plus tôt dans ce chapitre, l'absorption peut varier en fonction de beaucoup de paramètres et en particulier de la technologie de dépôt utilisée. Ces technologies ont beaucoup évolué et le travail bibliographique présenté ici couvre une période allant des années 1980 à nos jours. Pour nous en rendre compte, nous reproduisons dans le Tableau 5, un tableau présenté sur le site internet du Laboratoire des Matériaux Avancés (LMA) et qui résume les progrès réalisés en moins de quinze ans sur la qualité des optiques.

Tableau 5 : Évolution de l'absorption due au progrès technologique dans les composants optiques en couches minces.

	1992	1994	2006
Absorption moyenne à 633 nm (ppm)	20	10	>5
Absorption moyenne à 1064 nm (ppm)	x	2	0.6
Diamètre des composants (mm)	25	50	400

Parmi les éléments qui peuvent mener à une variation sensible de l'absorption des composants, on trouve :

- Le temps d'irradiation. Plusieurs travaux montrent que soumis à un flux laser, l'absorption baisse puis se stabilise [1,64]. Cette baisse dépend à la fois de l'espèce déposée, mais aussi de la technique de dépôt [39].
- L'humidité ambiante [1].
- L'oxygène introduit lors du dépôt [2], dont l'effet varie en fonction du substrat et de la longueur d'onde étudiée (dans notre cas il y aurait moins d'effets dans l'infrarouge) [64].

- Le substrat, car pour un même dépôt, les différences d'absorptions mesurées sont supérieures aux absorptions des substrats nus [2].
- Les recuits à des températures inférieures à la température de cristallisation [65].

L'ensemble des mesures et effets présentés ici concerne des monocouches. Mais les composants optiques utilisés sont généralement des composants multicouches. Le Tableau 6 présente des mesures effectuées sur différents composants multicouches [43].

Tableau 6 : Mesures d'absorption sur des composants multicouches [43].

Sample	Coating Type	Absorptance (ppm)	Absorptance Time Dependence	Composition of Multilayered Materials
1352	HR	156	Decay	HfO ₂ /SiO ₂
2040	HR	38	Decay	HfO ₂ /SiO ₂
204	HR	324	Decay	HfO ₂ /SiO ₂
212	HR	350	Decay	HfO ₂ /SiO ₂
1053	HR	33	Decrease	HfO ₂ /SiO ₂ /MgF ₂
1174	HR	8	Linear increase	HfO ₂ /SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
573	HR	55	Linear increase	HfO ₂ /SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
24	HR	50	Decay	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
1289	HR	90	Increase at a diminishing rate	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
325	HR	128	Initial increase and decay	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
79	B/S	31	Constant absorptance	HfO ₂ /SiO ₂
355	B/S	67	Linear increase	TiO ₂ /HfO ₂ /SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
356	B/S	53	Linear increase	TiO ₂ /HfO ₂ /SiO ₂ /Ta ₂ O ₅
28	B/S	71	Decay	TiO ₂ /Gd ₂ O ₃ /Al ₂ O ₃ /SiO ₂
81	B/S	40	Constant absorptance	TiO ₂ /Gd ₂ O ₃ /Al ₂ O ₃ /SiO ₂
83	B/S	363	Linear increase	TiO ₂ /Gd ₂ O ₃ /SiO ₂
96	B/S	244	Linear increase	TiO ₂ /Gd ₂ O ₃ /SiO ₂
351	B/S	20	Decay	TiO ₂ /SiO ₂
726A	AR	9	Constant absorptance	Al ₂ O ₃ /ZrO ₂ /SiO ₂
704A	AR	15	Constant absorptance	Al ₂ O ₃ /ZrO ₂ /SiO ₂
783	AR	3	Constant absorptance	Al ₂ O ₃ /ZrO ₂ /SiO ₂

^aBased on the HR results, the absorptances for all coatings are taken after ≈3 min of exposure to the laser beam. The laser power densities are 2–5 kW/cm², except for sample 24, which was measured at 8.7 kW/cm².

Dans ce travail, Chow *et. al.* montrent que les multicouches présentent des évolutions de l'absorption au cours de l'irradiation laser différentes de celles observées dans les monocouches. Ils constatent aussi que pour un même type de composant, les absorptions mesurées peuvent varier d'un ordre de grandeur.

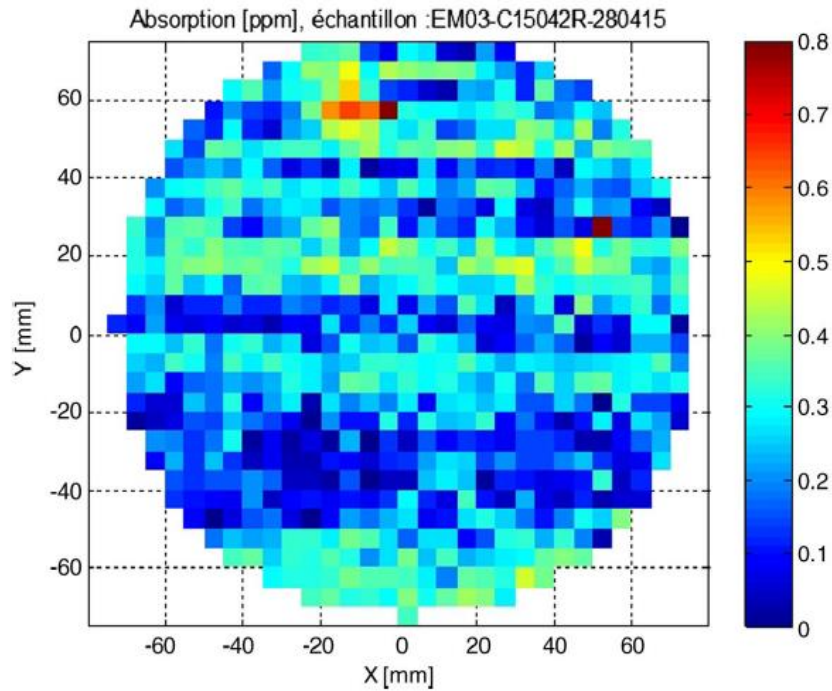


Figure 23 : Miroir de l'expérience VIRGO mesuré par PTD.

Enfin, les mesures d'absorption les plus faibles que nous avons pu trouver concernent les miroirs utilisés pour les expériences VIRGO/LIGO et réalisés au LMA qui présentent une absorption inférieure au ppm sur l'ensemble du composant comme présenté sur la Figure 23 [66]. Il est à noter que sur ce type d'optique, des problématiques de contraintes sont résolues en utilisant des couches dopées et des formules d'empilements appropriés [67].

5. Conclusion

Les couches minces optiques sont des éléments essentiels dans le domaine des lasers et les niveaux d'absorption des composants en couches minces sont extrêmement critiques pour les lasers de puissance. Cette absorption résiduelle, provenant de différents défauts intrinsèques au matériau ou liée à de la contamination, peuvent conduire à des effets thermiques délétères. On pense naturellement à la destruction du composant due aux contraintes thermomécaniques dans le système multicouches/substrat, mais aussi à la fusion du matériau si la température atteinte est suffisante. Les effets induits des élévations de température que sont le décalage de la fréquence de centrage du composant et la modification induite du front d'onde transmis ou

réfléchi représentent des pertes de performances de l'optique. Ainsi, il y a un enjeu à caractériser l'absorption même à des niveaux très faibles et différentes techniques ont été développées pour isoler l'absorption de la diffusion et pour la quantifier. Toutes ces techniques s'appuient sur la détection de la montée en température (ou des effets induits par celle-ci) d'un échantillon soumis à une irradiation laser. Cela permet de constater les progrès réalisés entre les années 1980 où certaines couches pouvaient dépasser les mille parties par million là où on obtient aujourd'hui des optiques n'absorbant classiquement que quelques dizaines de parties par million pour des machines de dépôts industrielles et pouvant descendre sous la partie par million pour les composants les plus performants. Pour étudier et optimiser les couches minces réalisées à l'Institut Fresnel et à CILAS, il a donc été nécessaire de développer et caractériser un banc de mesure d'absorption que nous présentons dans le chapitre suivant.

Chapitre II : Développement et caractérisation d'un banc de mesure d'absorption basé sur la technique de thermographie synchrone

« Il n'y a rien de nouveau à découvrir dans la physique. Il ne reste que des mesures de plus en plus précises. [Mais] La beauté et la clarté de la théorie dynamique, qui décrit la chaleur et la lumière comme formes de mouvement, sont aujourd'hui assombries par deux nuages. »

- Lord Kelvin (1824-1907) ³

³ Discours de 1900 devant la Royal Institution. Les deux nuages sont le rayonnement des corps noirs et l'éther lumineux. À partir de 1905, ces deux nuages se révéleront être des tempêtes aujourd'hui appelées physique quantique et relativité.

L'institut Fresnel travaille depuis le début des années quatre-vingt-dix sur des moyens de mesure de faibles absorptions accompagnant les problématiques soulevées par le développement des lasers de puissance. La méthode de référence utilisée était alors la déflexion photothermique, et elle a permis d'atteindre des niveaux de détection de la partie par million, de l'UV au proche infrarouge [1,68]. Au début des années 2000, les travaux se sont concentrés sur la détection de défauts absorbants, possibles amorces de dommages laser dans le domaine nanoseconde. L'accent a donc été mis à cette époque sur l'amélioration de la résolution spatiale des moyens de mesures, aboutissant notamment à la détection de défauts absorbants sub-micrométriques [54,69]. Tout au long de ces travaux, la déflexion photo-thermique s'est montrée très performante du point de vue de la qualité des résultats fournis, mais cette méthode comportait aussi des limitations de mise en œuvre : forte influence du rapport de taille des faisceaux pompe/sonde, difficulté d'alignement, forte dépendance de l'étalonnage à l'alignement, mesure ponctuelle nécessitant d'effectuer des cartographies point par point coûteuses en temps pour de grandes surfaces. La recherche d'un nouvel outil de mesure, plus simple d'utilisation, capable de mesurer rapidement sur de grandes zones l'absorption intrinsèque tout en conservant les performances de sensibilité de la déflexion photo-thermique nous a poussés à nous pencher sur les techniques de thermographie et notamment la Lock-In Thermography (LIT). Cette nouvelle approche est rendue possible aujourd'hui par le coût modéré des caméras thermiques (entrée de gamme autour de quelques milliers d'euros aujourd'hui) et des lasers de puissance (quelques dizaines d'euros par Watt pour les lasers de classe kW).

Ce chapitre présente donc les développements menés en ce sens. La technique LIT utilisant la mesure directe de l'élévation de température provoquée par une irradiation laser modulée, des simulations thermiques sont d'abord menées pour estimer les températures qui devront être détectées. Le principe de la technique permettant d'améliorer très fortement le rapport signal sur bruit est ensuite exposé. Puis un montage opérant dans le proche infrarouge (1070 nm) basé sur la recirculation du faisceau laser dans l'échantillon pour augmenter la puissance absorbée (et ainsi améliorer la sensibilité) est présenté. Différentes méthodes d'étalonnage sont ensuite explorées et un protocole basé sur l'utilisation d'échantillons étalons est proposé. Le comportement du signal et du bruit sur le montage LIT est étudié et une étude métrologique est enfin présentée permettant d'adjoindre une incertitude à nos déterminations de l'absorption.

1. Simulations thermiques de l'échauffement par un laser continu

Comme il a été présenté dans le chapitre précédent, la mesure des faibles absorptions passe par une mesure directe de la température ou par un effet qui lui est relié. Afin d'estimer les élévations de température dans des optiques en couches minces, en fonction des paramètres laser et matériau, des simulations sont nécessaires. Pour ceci, nous allons nous appuyer sur un modèle analytique qui correspond à la résolution de l'équation de la chaleur dans un cas particulier : faisceau laser gaussien absorbé en surface d'un milieu semi infini. Les résultats de ce modèle sont ensuite comparés à un modèle aux éléments finis (FEM) pour des paramètres proches de nos configurations expérimentales, afin d'en déterminer les limitations. Cette démarche est réalisée pour le cas d'une illumination continue puis harmonique correspondant à la configuration de la technique LIT.

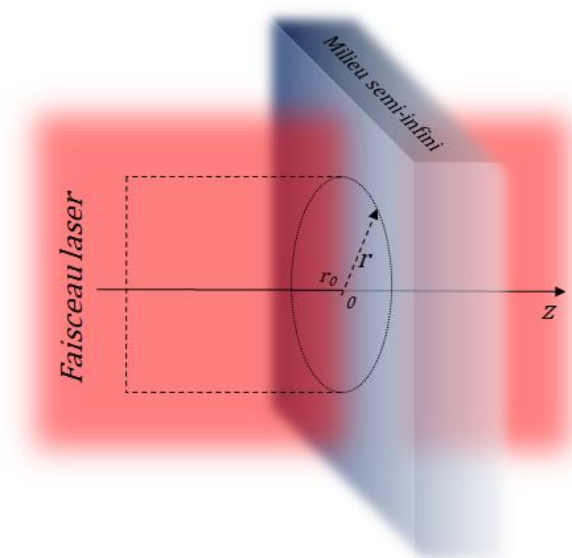


Figure 24 : Schéma de notation de l'équation de la chaleur dans le cas axisymétrique en milieu semi infini.

Introduisons en premier lieu l'expression de l'équation de la chaleur et les notations utilisées dans un cas axisymétrique correspondant à notre situation (Figure 24).

Elle s'écrit dans le cas d'un milieu homogène, pour lequel la conductivité thermique ne dépend pas de la température :

$$\nabla^2 T^\circ(r, z, \tau) - \frac{1}{D} \frac{dT(r, z, \tau)}{dt} = \frac{Q(r, z, \tau)}{K} \quad (23)$$

Avec T° la température, τ le temps et $D = K/\rho C$ où K est la constante de conduction, ρ la masse volumique, C la capacité thermique massique (ou chaleur massique) et ∇^2 l'opérateur Laplacien. Enfin Q est la source volumique de chaleur dans le milieu, créée par exemple par absorption du faisceau laser dans le volume lors de sa propagation dans le milieu. À cette équation s'ajoutent des conditions en limite du milieu, notamment un flux de chaleur entrant apporté par l'absorption de surface. La résolution de l'équation de la chaleur est largement traitée dans la littérature et l'on trouve des solutions analytiques ou semi analytiques pour différentes configurations simples d'échauffement lié à l'absorption d'un faisceau laser [70].

1.1. Régime continu

Dans un premier temps nous nous intéressons à une configuration simple : un milieu semi infini soumis à un chauffage surfacique gaussien de puissance constante (Figure 25).

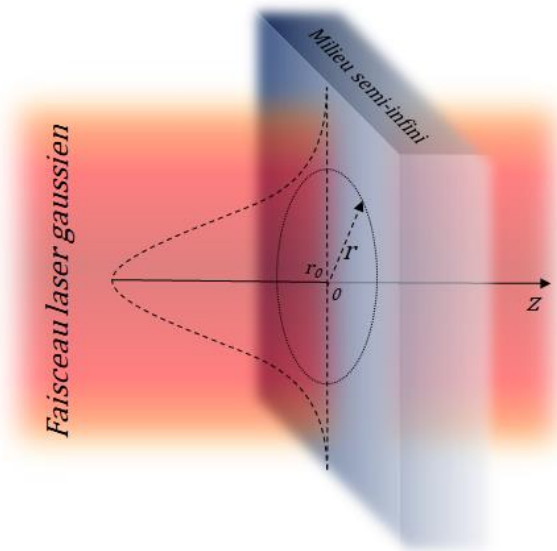


Figure 25 : Schéma de notation de l'équation de la chaleur dans le cas gaussien en milieu semi infini.

Ce cas a été traité dans de nombreuses publications, par exemple [28,71,72]. La relation suivante donne la variation de température ΔT° pour une distance au centre du faisceau r à la profondeur z et au temps τ :

$$\Delta T^\circ(r, z, \tau) = \frac{1}{\pi K} \sqrt{\frac{D}{\pi}} \int \frac{A(\tau - \tau_i) \cdot P(\tau - \tau_i)}{\sqrt{\tau}(4D\tau_i + \frac{w^2}{2})} \cdot e^{-\frac{r^2}{4D\tau_i + \frac{w^2}{2}}} \cdot e^{-\frac{z^2}{4D\tau_i}} \cdot d\tau_i \quad (24)$$

où D est la diffusivité, w est le waist à $1/e^2$, A l'absorption et P la puissance du laser incident. Dans cette expression A et P peuvent être des fonctions dépendantes du temps arbitraire. Dans notre cas, $A(\tau)$ est considéré constante ($A(\tau) = A$) et $P(\tau)$ est une fonction échelon ($P(\tau) = 0$ pour $\tau < 0$, et $P(\tau) = P$ pour $\tau > 0$). Dans ces conditions, on peut décrire la température au centre du faisceau laser par la relation simple :

$$\Delta T^\circ(0,0, \tau) = \frac{AP}{wK\pi\sqrt{\frac{\pi}{2}}} \arctan \sqrt{\frac{4D\tau}{\frac{w^2}{2}}} \quad (25)$$

Cette relation tend vers une asymptote telle que :

$$\Delta T^\circ_{max} = \frac{AP}{2wK\sqrt{\frac{\pi}{2}}} \quad (26)$$

La température maximale atteinte en surface dépend donc dans ce régime de la puissance linéique absorbée (en W/m).

Il est à noter qu'il existe des ambiguïtés dans la littérature sur les expressions reportées. Sans chercher à résoudre l'équation de la chaleur pour obtenir les expressions précédentes, nous avons vérifié la validité de l'équation 24 programmée sous Matlab en comparant les résultats obtenus à ceux calculés par un logiciel de simulation aux éléments finis (COMSOL). Dans cette thèse, nous nous contentons d'être utilisateurs de cette application COMSOL développée en

amont. Ces calculs sont effectués avec les données thermiques d'un substrat de silice Corning 7980 ($K = 1,38 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $D = 8,1.10^{-7} \text{ m.s}^{-2}$) et une puissance laser de $P = 1500 \text{ W}$ (puissance maximum disponible pour le laser utilisé dans la suite de ces travaux), un waist de $w = 6,75 \text{ mm}$ (diamètre de notre faisceau laser après collimation) et une absorption de $A = 10 \text{ ppm}$ (ordre de grandeur généralement constaté dans la littérature pour des couches minces optiques dans nos conditions de fabrication). On peut voir sur la Figure 26 que la courbe calculée par COMSOL dépasse l'asymptote calculée avec l'équation 26 et ne se superpose pas avec le calcul numérique réalisé à partir de l'équation 25. Pour le modèle COMSOL, nous avons pris un échantillon de grande taille (diamètre de 50 mm et épaisseur de 20 mm) afin de nous approcher de la situation semi infinie. Cette approximation dépend cependant de la taille du faisceau et nous allons maintenant nous pencher vers la convergence entre nos deux modèles.

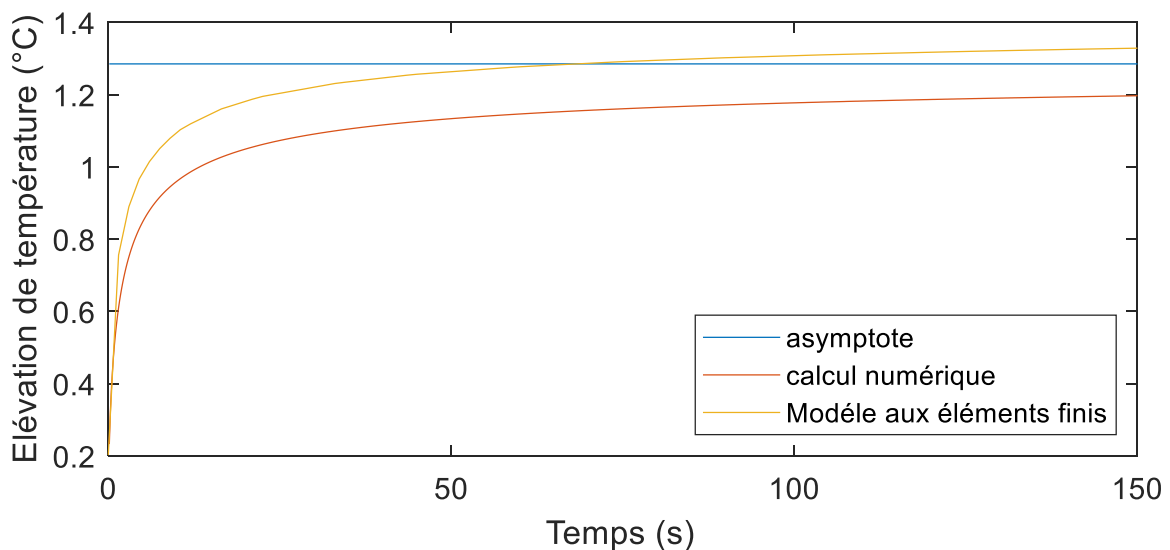


Figure 26 : Comparaison entre la simulation aux éléments finis et le modèle semi analytique de la température de surface d'un échantillon de silice de 2 cm d'épaisseur et 5 cm de diamètre au centre d'un faisceau laser gaussien de 6,75 mm de diamètre à 1500 W dont 10 ppm sont absorbées en surface.

Il est à noter que si ce code Matlab peut théoriquement être capable de donner la montée en température pour un signal modulé (fonction $P(t)$ modulée), la charge de calcul est vite trop importante pour qu'il soit utilisable pratiquement. On se tournera donc vers d'autres modèles plus spécifiques pour ces cas (résolution de la chaleur en régime harmonique). Le modèle présenté ci-avant reste cependant intéressant pour estimer le temps nécessaire permettant

d'atteindre un équilibre thermique et obtenir de premiers ordres de grandeur sur les températures atteintes.

Nous allons à présent étudier les limites et la représentativité de ce modèle semi analytique pour le cas de substrats de dimensions réelles, et étudier les limites de l'hypothèse d'un milieu semi infini pour notre cas pratique. Un modèle COMSOL avec un milieu fini et une absorption de surface est développé pour cela (Figure 27).

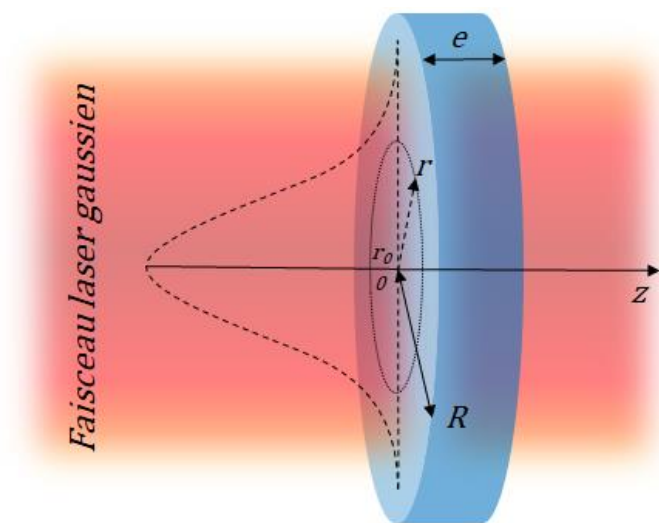


Figure 27 : Schéma de notation de l'équation de la chaleur dans le cas gaussien dans un substrat de dimension finie.

Le modèle aux éléments finis peut prendre en compte les pertes de chaleur par rayonnement, mais nous n'avons pas considéré les effets de convection qui ont un effet négligeable d'après nos essais de simulation. La comparaison, pour des faisceaux de différents rayons, entre le modèle provenant de l'équation 25 et le modèle COMSOL pour une silice fondue Corning ($K = 1,38 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $D = 8,1.10^{-7} \text{ m.s}^{-2}$) de 2 mm d'épaisseur et 25 mm de diamètre est présentée sur la Figure 28.

L'évolution de la température atteinte avec la puissance absorbée suit la même évolution pour les deux approches. Cependant dans le cas d'un substrat de dimension infinie, la chaleur est évacuée dans la profondeur et la température est ainsi sous-évaluée par le modèle analytique. La Figure 29 présente la comparaison des simulations pour le même échantillon que dans la

Figure 28, avec une absorption de 10 ppm et une puissance laser de 1500 W (puissance absorbée de $1,5 \times 10^{-3}$ W). Elle nous permet de voir qu'à partir d'environ $5 \cdot 10^{-4}$ m de diamètre du faisceau, les deux approches commencent à diverger dans nos conditions.

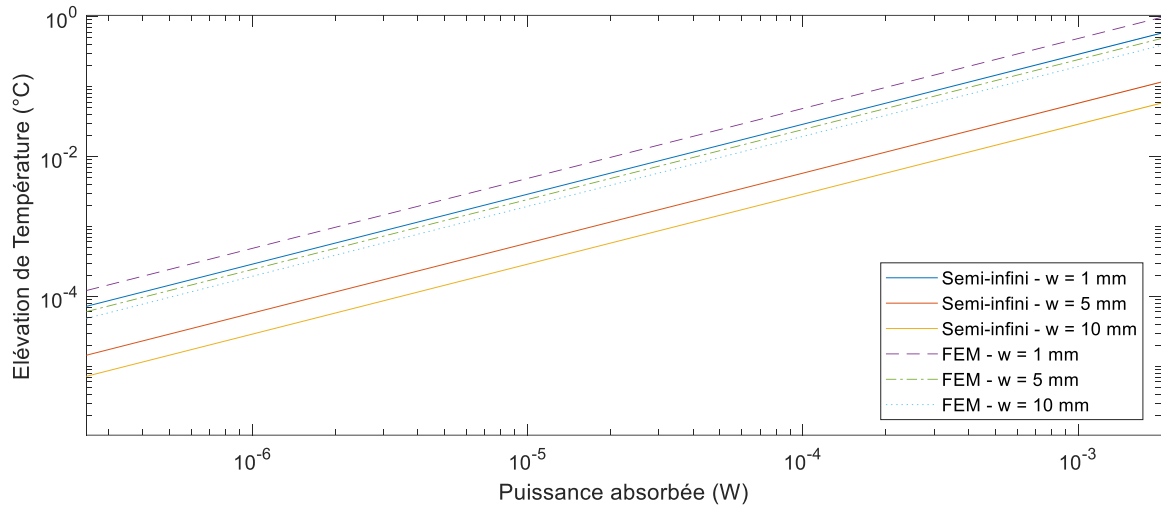


Figure 28 : Température atteinte en régime continu calculée avec un modèle analytique tiré de l'équation 26 en milieu infini et avec un modèle aux éléments finis (FEM) pour un substrat de silice fondue de 25 mm de diamètre et 2 mm d'épaisseur.

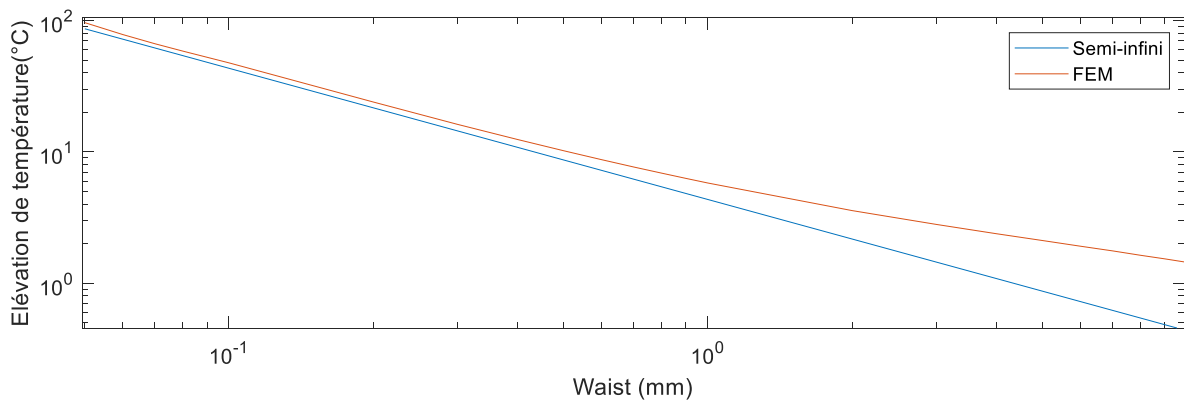


Figure 29 : Comparaison entre les températures calculées par le modèle semi infini et le modèle aux éléments finis (FEM) en fonction de la taille du faisceau laser pour une irradiation continue. Ce calcul est réalisé pour un échantillon de silice fondue de 25 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur à une puissance de 1500 W avec une absorption de 10 ppm.

Ainsi pour les faisceaux de petite taille, il sera possible d'utiliser un modèle analytique. En revanche pour des faisceaux millimétriques (comme dans notre cas avec un waist d'environ 7 mm) il sera préférable de se tourner vers un modèle aux éléments finis. Pour ces faisceaux, le waist ne joue qu'à la marge sur l'élévation de température en régime stationnaire. Par ailleurs, là où pour des faisceaux focalisés la température dépend principalement de la puissance linéique absorbée P_{abs}/a , dans notre cas la température ne dépendra que de la puissance absorbée. Enfin pour un laser de l'ordre de la centaine de watts couplés sur une surface de 10 ppm d'absorption (représentatif de nos conditions expérimentales) l'élévation de température est de 1 °C.

On ne pourra donc pas dans notre cas considérer le matériau comme semi infini compte tenu du diamètre de notre faisceau réel à 6,75 mm.

1.2. Régime harmonique

L'approche précédente nous a permis d'estimer les températures atteintes en régime stationnaire dans nos conditions de travail. Pour la technique LIT la puissance d'excitation sera modulée et il est nécessaire maintenant d'établir les élévations de température atteintes dans ce régime.

En appliquant une transformée de Fourier à l'équation de la chaleur, on peut obtenir l'expression de l'équation de la chaleur en régime harmonique, définie par la pulsation ω :

$$\nabla^2 T^\circ(r, z, \omega) - \frac{i\omega}{D} T(r, z, \omega) = \frac{Q(r, z, \omega)}{K} \quad (27)$$

Notons que dans cette expression, $T^\circ(\omega)$ correspond à la transformée de Fourier de $T^\circ(\tau)$ (voir équation 23)

La résolution du cas harmonique a fait l'objet d'un certain nombre de publications [73]. On utilisera ici la solution proposée par Salazar *et. al.* [74] car c'est le cas qui correspond le mieux à ce que l'on veut simuler :

$$T^{\circ}(z, r, \omega) = \frac{AP}{4\pi K} \int_0^{\infty} \delta J_0(\delta r) \frac{e^{\beta(\delta, \omega)z}}{\beta(\delta, \omega)} e^{-\frac{(\delta w)^2}{8}} d\delta \quad (28)$$

Où J_0 est une fonction de Bessel d'ordre 0 et β est tel que :

$$\beta^2 = \delta^2 + i\omega D \quad (29)$$

Avec $\omega = 2\pi f$ la pulsation du laser et δ la variable conjuguée dans l'espace de Hankel de la coordonné cylindrique r . Il est important de prêter attention à la convergence de l'intégrale.

La Figure 30 montre l'évolution de l'élévation de température en fonction de la puissance absorbée pour une fréquence de modulation de 0,05 Hz. Comme pour le cas d'une illumination continue, l'évolution est linéaire. Et la Figure 31 présente l'élévation de température calculée avec le modèle semi infini et le modèle Comsol. Les paramètres sont les mêmes que pour les simulations de la Figure 30 avec une puissance de 1500 W et une absorption de 10 ppm. Ici aussi, l'approximation qui consiste à considérer le milieu grand devant la longueur de diffusion thermique ne s'appliquera que pour des faisceaux submillimétriques qui ne correspondront pas à nos cas pratiques. On se basera donc sur le modèle aux éléments finis pour les analyses.

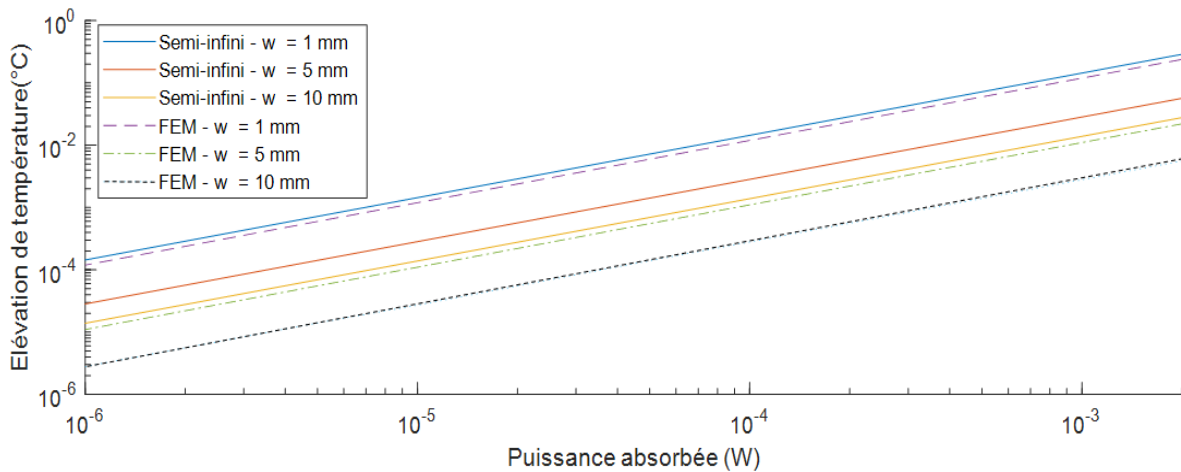


Figure 30 : Température atteinte calculée à partir de l'équation 28 pour une modulation de 0,05 Hz. Les calculs sont effectués avec un modèle analytique en milieu infini et un modèle aux éléments fini (FEM) pour un milieu fini (25 mm de diamètre et 2 mm d'épaisseur) pour un substrat de silice fondue.

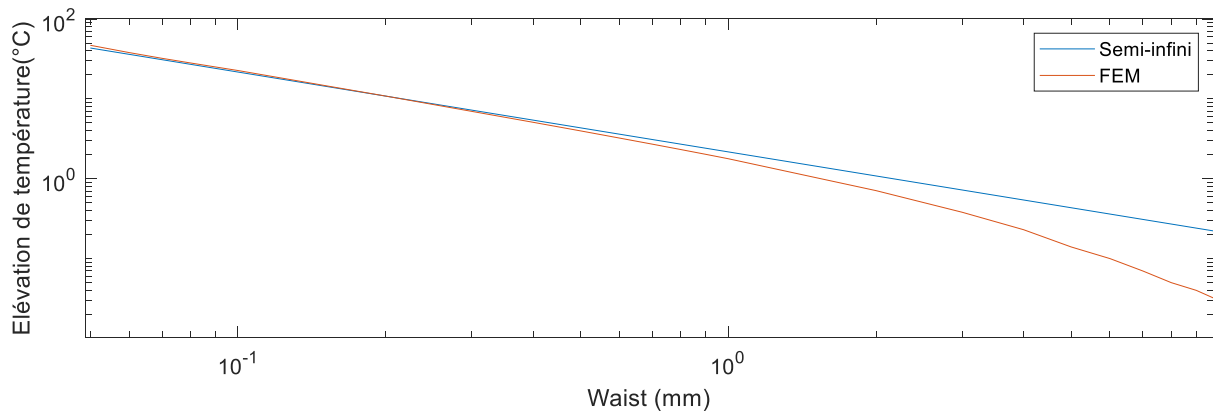


Figure 31 : Comparaison entre les températures calculées par le modèle semi infini et le modèle aux éléments finis en fonction de la taille du faisceau laser pour un irradiation modulée à 0,05 Hz. Ce calcul est réalisé pour un échantillon de silice fondue de 25 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur à une puissance de 1500 W avec une absorption de 10 ppm.

Dans le cas du régime continu comme dans le cas du régime harmonique la variation de température dépend de façon linéaire de la puissance laser pour les deux modèles que nous avons testés. En revanche ces deux modèles divergent quand la taille du faisceau n'est plus négligeable par rapport à la taille du substrat.

Par ailleurs, l'effet de la perte de chaleur par rayonnement et convection a aussi été évaluée pour le modèle Comsol. La prise en compte du rayonnement entraîne une diminution de la température calculée inférieure à 2 % pour les cas simulés dans cette partie. Et on constate une diminution de la température calculée inférieure à 0,2 % pour des simulations faites avec et sans prise en compte de la convection (mais prise en compte du rayonnement).

Nous reviendrons un peu plus loin sur l'influence de la fréquence de modulation sur l'élévation de température, mais dans nos conditions de fonctionnement, les élévations de température recherchées seront de l'ordre de 10^{-1} °C pour des puissances laser kilowatt et des absorptions de l'ordre de 10 ppm.

2. Développement d'un montage de thermographie synchrone multi-passages

Après avoir discuté des aspects thermiques du point de vue de la simulation, nous nous intéressons maintenant à la partie technique c'est à dire la réalisation de mesures de température. Nous présentons ici la technique de thermographie, en particulier dans le cas de faibles élévations de température dont le signal correspondant est fortement noyé dans le bruit.

2.1. Quelques bases sur la thermographie

Tout corps porté à une température non nulle émet des ondes électromagnétiques dont la distribution spectrale d'émittance dépend de la température et des propriétés du matériau considéré. Dans le cas d'un corps constitué d'un matériau idéal qui absorberait toute la lumière incidente (donc sans en réfléchir ou en transmettre), un corps noir, son émittance spectrale donnée en $W.m^{-2}$, $M_{Corps\ Noir}$ suit alors la loi de Planck :

$$M_{Corps\ Noir} = \frac{2\pi hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{\frac{hc}{\lambda k_B T}} - 1} \quad (30)$$

Avec h et k_B les constantes de Planck et de Boltzmann, c la vitesse de la lumière, λ la longueur d'onde considérée et T la température du corps noir. Un tel corps est un objet conceptuel dont l'absorption est égale à l'émission. La courbe du corps noir pour deux différentes températures d'intérêt dans ce travail (T ambiante et faible élévation de température) est présentée sur la Figure 32.

On constate que pour une température typique des conditions de laboratoire (20 à 25°C) le corps noir émet avec un maximum autour de 10 μm . Pour détecter efficacement un tel rayonnement il nous faudra donc un capteur sensible dans cette gamme de longueurs d'onde.

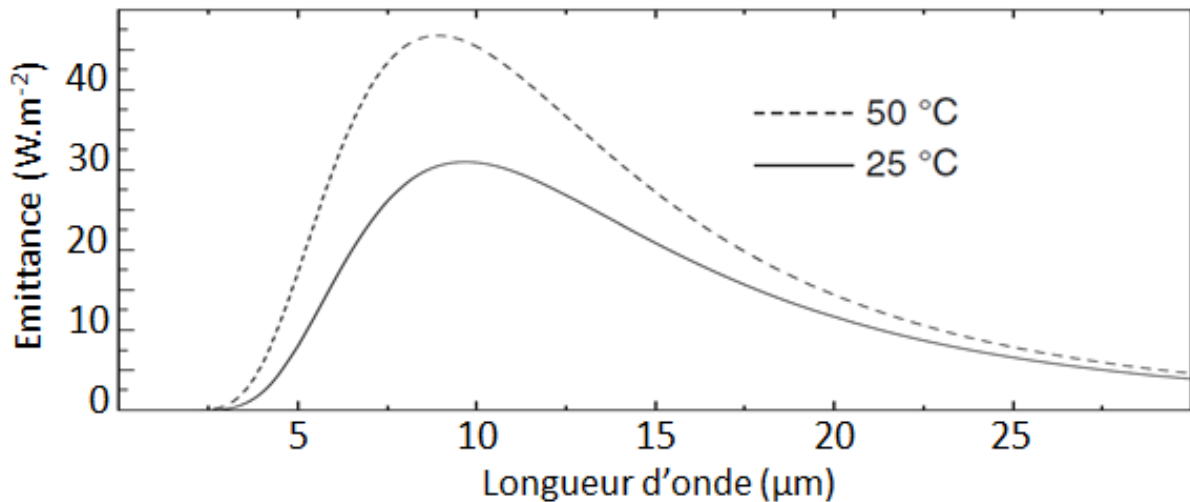


Figure 32 : Courbe d'émission du corps noir. L'émittance est fonction de la longueur d'onde et de la température [50].

Les corps réels ont une émittance nécessairement plus faible qu'un corps noir (puisqu'ils réfléchissent et transmettent). On définit donc l'émissivité comme le rapport entre l'émittance du matériau considéré et celle du corps noir.

$$M = \varepsilon \times M_{\text{Corps Noir}} \quad (31)$$

Avec M l'émittance spectrale du matériau, et ε l'émissivité du corps considéré. L'émissivité à une longueur d'onde donnée est égale à l'absorption à cette même longueur d'onde (c'est-à-dire que les spectres d'émission et d'absorption sont les mêmes). Pour s'en convaincre, on peut réaliser l'expérience de pensée qui consiste à considérer une boîte en équilibre thermique. À l'intérieur de cette boîte, les surfaces perdent de l'énergie par rayonnement thermique et en gagnent par absorption du rayonnement électromagnétique. Ainsi, chaque partie de la surface interne doit émettre la même quantité de rayonnement qu'elle absorbe, sinon le système ne serait pas en équilibre thermique.

La thermographie est une technique d'imagerie qui consiste à détecter les ondes électromagnétiques émises par un corps pour en faire une image thermique ou une cartographie thermique. Pour réaliser une image thermique, la caméra doit avoir une sensibilité spectrale correspondant :

- au domaine spectral couvert par l'émission à la température visée (dans notre cas autour de 10 μm , cf. Figure 32)
- au domaine de transmission de l'atmosphère présenté sur la Figure 33 (dans notre cas la bande allant de 8 à 14 μm qui comprend le domaine spectral donné ci-dessus)
- à des longueurs d'onde de faible transmission de l'objet observé afin que la mesure ne soit pas biaisée par l'environnement à l'arrière de la zone observée. Autrement dit, mesurer la température de surface de l'échantillon, ce qui correspond également à une condition de forte absorption/émissivité.

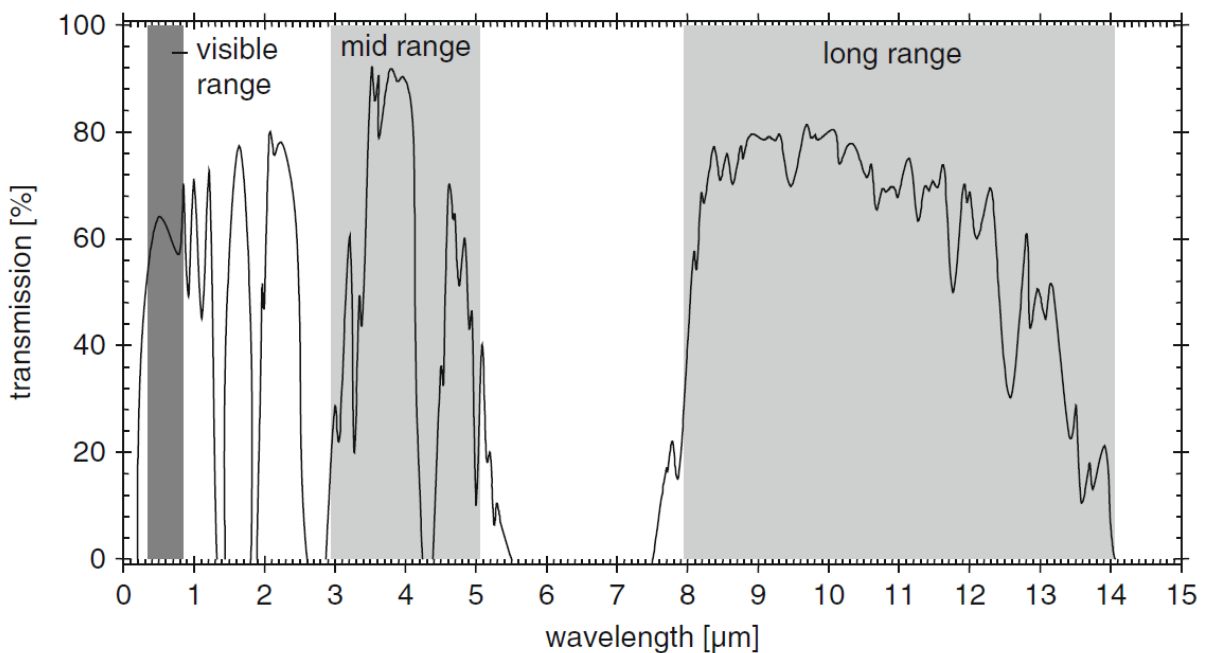


Figure 33 : Spectre en transmission de l'atmosphère sur une distance de 1250 m à 20°C et 100 % d'humidité [50].

Deux familles de détecteurs utilisables dans la gamme autour de 10 μm existent [75] : les détecteurs quantiques et les détecteurs thermiques. Les premiers sont constitués de matériaux dont la bande interdite est très faible (comme l'alliage arséniure d'indium gallium ou InGaAs) ce qui permet de créer des photo-détecteurs dans la gamme infrarouge. Il est cependant nécessaire de les refroidir pour faire émerger le signal utile noyé dans le signal d'obscurité. Ce refroidissement conduit à des caméras très performantes mais couteuses. Les détecteurs thermiques quant à eux vont utiliser un absorbant à la longueur d'onde d'intérêt et mesurer la montée en température de cet absorbant. Cela nécessite un capteur de température suffisamment sensible qui conduit ces caméras « bolométriques » à avoir une limite de détection (minimum de température mesurable) plus importante que leurs cousines quantiques refroidies en raison

d'une plus grande sensibilité au bruit de fond et à l'auto-échauffement. Ces caméras, moins performantes, sont aussi moins onéreuses que des caméras refroidies.

Pour les caméras thermiques, la limite de détection imposée par le bruit d'obscurité est appelée équivalent de température au bruit (en anglais, Noise Equivalent Temperature Difference ou NETD) est d'environ 40 à 300 mK, mais elle peut descendre à 10 ou 20 mK pour les caméras hautes performances basées sur des détecteurs refroidis. Sur la Figure 34 sont représentées les limites de température pour ces deux types de caméras et la puissance absorbée correspondante, calculée par le modèle présenté dans la section précédente. On constate que pour des caméras bolométriques, la limite de puissance absorbée détectable est autour de 10^{-4} W dans nos conditions expérimentales, et que l'on gagne presque un ordre de grandeur avec des caméras hautes performances avec une puissance absorbée détectable autour de quelques 10^{-5} W.

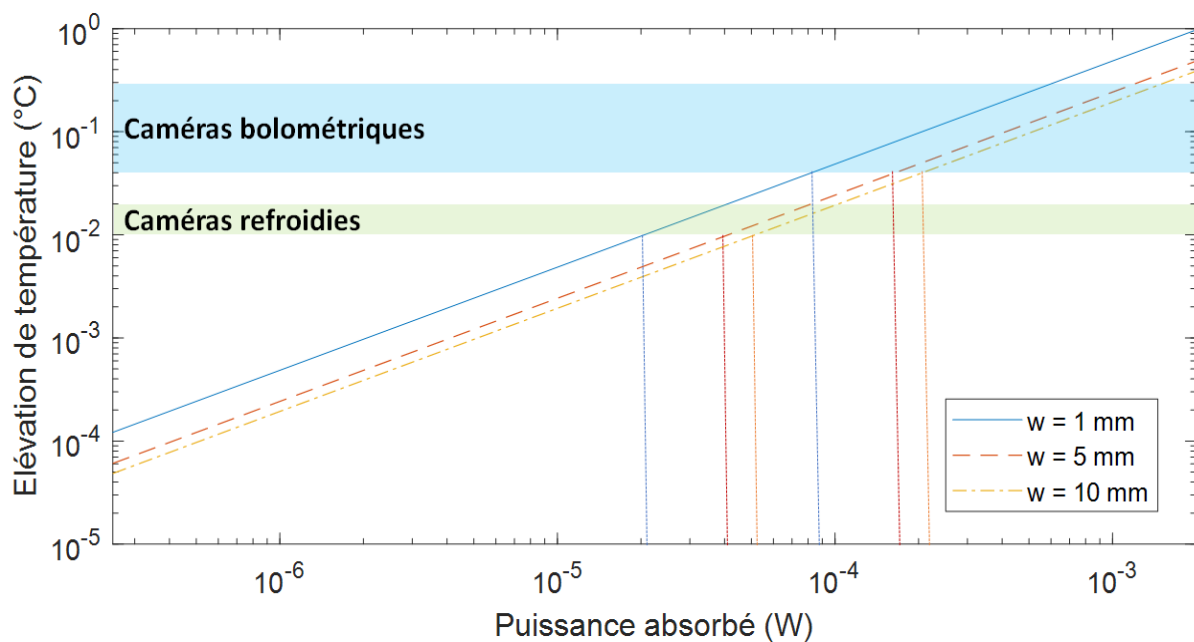


Figure 34 : Limite de détection en température pour des caméras bolométriques (bande verte) et pour des caméras hautes performances (bande bleue). Par projection sur l'axe des abscisses, il est possible de donner la limite de détection en puissance absorbée équivalente. Ces courbes sont calculées avec un modèle aux éléments finis dans les mêmes conditions que la Figure 28.

Pour des optiques hautes performances typiques avec une absorption de 1 ppm, un laser de 100 W est donc nécessaire pour parvenir à la détection d'un changement de température, et un laser de classe kilowatt est nécessaire pour obtenir une sensibilité adéquate sur une surface de

1 cm². Par ailleurs la thermographie sera sensible aux émissions infrarouge reflétées par l'échantillon. Cette double limitation de bruit et de sensibilité à l'environnement impose de trouver une solution pour utiliser cette technique pour des températures de quelques dixièmes de Kelvin ou au-dessous.

2.2. Principes de la thermographie synchrone

La technique de Lock-In Thermography (LIT), ou thermographie par détection synchrone en français, est une technique de thermographie active, ce qui signifie qu'une élévation de température est provoquée volontairement par un apport de puissance électrique ou optique. Elle repose sur l'adjonction d'une technique de filtrage pour extraire le signal du bruit et diminuer la contribution des biais environnementaux.

Classiquement pour réaliser une détection synchrone, on va moduler le phénomène que l'on veut mesurer, pour nous la température via le chauffage laser. Pour en illustrer le principe, on prendra une modulation sinusoïdale du signal d'excitation ce qui engendrera un signal thermique S_T d'amplitude A_T , déphasé de φ_T avec le signal de modulation :

$$S_T(t) = A_T \cos(\omega t + \varphi_T) \quad (32)$$

Notons que les notations utilisées ici sont propres à cette sous partie (S symbolisant le signal LIT et A l'absorption dans le reste du document).

On peut ensuite multiplier ce signal par le signal de modulation $M_0 = \cos(\omega t)$ et par $M_{\pi/2} = \sin(\omega t)$ le signal de modulation déphasé de $\frac{\pi}{2}$, pour obtenir les 2 signaux mesurés suivants :

$$\begin{aligned} S_0 &= \int_0^{t_{int}} S_T(t) M_0 dt = \frac{A_T}{2} \cos(\varphi_T) \\ S_{\pi/2} &= \int_0^{t_{int}} S_T(t) M_{\pi/2} dt = \frac{A_T}{2} \sin(\varphi_T) \end{aligned} \quad (33)$$

avec t_{int} le temps d'intégration pris pour un nombre fini de périodes. On peut retrouver l'amplitude A_T et la phase φ_T du signal grâce aux relations suivantes :

$$A_T = 2 \sqrt{S_0^2 + S_{\pi/2}^2} \quad (34)$$

$$\varphi_T = \arctan\left(\frac{S_{T\pi/2}}{S_{T0}}\right)$$

On voit donc que le signal a 2 composantes déphasées de $\pi/2$, d'amplitude dépendantes de A_T et φ_T . Pour retrouver ces 2 termes correspondants à l'amplitude et la phase du signal, le signal est enregistré puis multiplié par le signal de modulation et intégré sur le temps d'acquisition. En travaillant avec une écriture complexe du signal [\underline{S} , avec $S = Re\{\underline{S}\}$] et de la modulation [$\underline{M} = e^{i\omega t}$, avec $M = Re\{\underline{M}\}$] on peut écrire :

$$\begin{aligned} \underline{S} &= \frac{1}{t_{int}} \int_0^{t_{int}} S_T(t) \cdot \underline{M}(t) \cdot dt \\ &= \frac{1}{t_{int}} \left[\int_0^{t_{int}} S_T(t) \cdot \underbrace{\cos(\omega t)}_{M_0} \cdot dt + i \int_0^{t_{int}} S_T(t) \cdot \underbrace{\sin(\omega t)}_{M_{\pi/2}} \cdot dt \right] \\ &= \frac{1}{t_{int}} \int_0^{t_{int}} S_T(t) \cdot e^{i\omega t} \cdot dt \end{aligned} \quad (35)$$

Où t_{int} est le temps d'intégration de la mesure. Ce temps d'intégration $t_{int} = n \times T_L$ est pris pour un nombre entier n de période T_L . L'amplitude et la phase recherchées s'écrivent :

$$A_T = 2 \sqrt{Re\{\underline{S}\}^2 + Im\{\underline{S}\}^2} = 2|\underline{S}| \quad (36)$$

$$\varphi_T = \arctan\left(\frac{Im\{\underline{S}\}}{Re\{\underline{S}\}}\right) = \arg(\underline{S})$$

$S_T(t)$ étant périodique on peut le décomposer en séries de Fourier :

$$S_T(t) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} c_n e^{ni\omega t} \quad (37)$$

Avec

$$c_n = \frac{1}{T_L} \int_{t=0}^{T_L} S_T(t) e^{ni\omega t} dt \quad (38)$$

On reconnaît ici une expression similaire à celle du signal complexe \underline{S} donné dans l'équation 35. L'amplitude du signal qui est notre grandeur d'intérêt est donc donnée par la norme du 1^{er} coefficient c_1 d'après l'équation 36. Si on calcule c_1 pour notre signal sinusoïdal on obtient :

$$c_1 = \frac{A_T}{2} e^{-i\varphi_T} \quad (39)$$

D'où :

$$A_T = 2|c_1| \quad (40)$$

L'amplitude qui est, comme dit dans l'équation 36, la norme du signal \underline{S} est aussi 2 fois la norme de c_1 . Par une opération de détection synchrone on obtient donc l'amplitude du coefficient de Fourier du signal à la fréquence de modulation. Ce faisant, on filtre toutes les autres fréquences ce qui permet d'isoler le signal utile du bruit aux autres fréquences. Cette démonstration pourrait être reprise pour n'importe quelle forme de signal de modulation périodique mais avec des harmoniques (coefficients de Fourier d'ordres supérieurs) qui s'ajouteraient au fondamental.

La LIT consiste donc à moduler la température et à prendre de façon synchronisée des images thermiques de l'objet à caractériser. Dans notre cas, cette modulation sera obtenue par la modulation d'une source laser continue. Durant cette modulation on vient prendre de façon synchronisée des images thermiques de notre objet. On peut alors appliquer une transformée de Fourier temporelle sur l'ensemble de nos images puis filtrer toutes les fréquences en dehors de la fréquence de modulation qui est la seule à contenir l'information sur l'élévation de température. Cette procédure est résumée sur la Figure 35.

Pour pouvoir caractériser correctement le signal, il faut que la caméra prenne au moins deux images par périodes, et quatre si l'on veut pouvoir retrouver la phase [50]. Par ailleurs si la synchronisation entre modulation et déclenchement de la caméra est indispensable si l'on veut accéder à la phase, elle peut être abandonnée si seule l'amplitude est recherchée. Toutefois cela se fera au prix d'une imprécision sur la mesure et d'un moins bon traitement du bruit.

La LIT est donc une technique permettant d'obtenir une image thermique d'un échantillon soumis à un éclairage laser modulé. C'est une technique simple à mettre en œuvre et que nous présentons à présent.

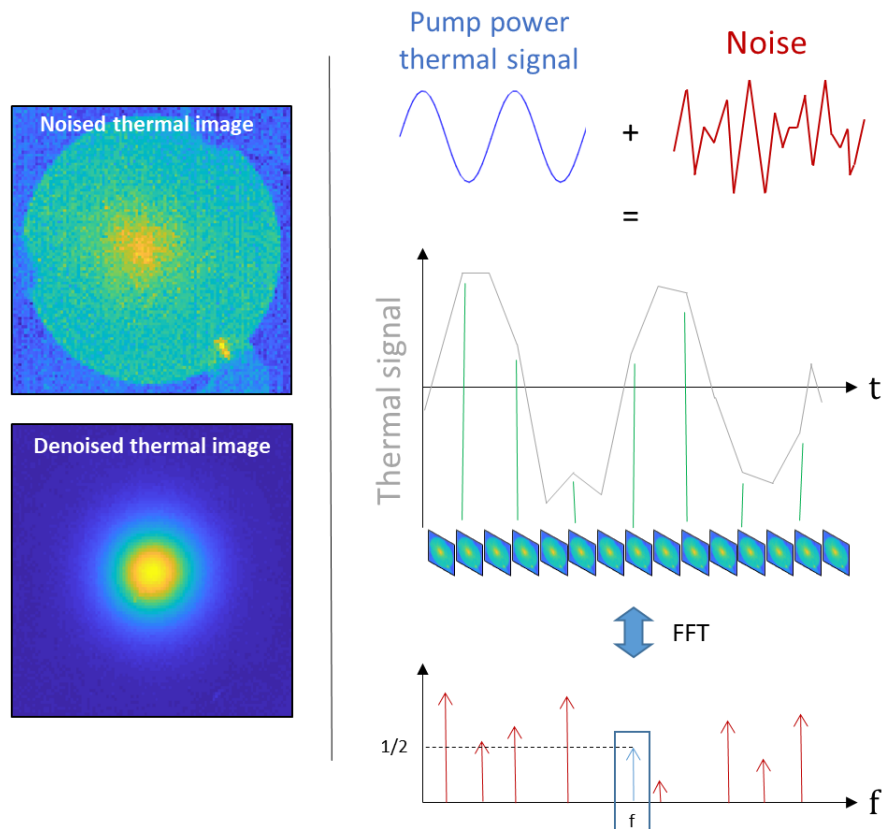


Figure 35 : Principe de la LIT. Les images thermiques sont prises avec une caméra infrarouge pendant que le laser de pompe est modulé (onde sinusoïdale). Le signal de la caméra est composé du signal modulé (courbe bleue) et du bruit (courbe rouge). Une transformée de Fourier est utilisée pour séparer le signal modulé du bruit en filtrant la fréquence de modulation.

2.3. Développement expérimental

2.3.1. Présentation du montage

Toutes les méthodes photothermiques de mesure de l'absorption sont basées sur la mesure d'effets physiques liés à une très faible élévation de température. Comme ces méthodes sont utilisées pour mesurer de très faibles absorptions, seules quelques ppm de la puissance du laser sont utiles pour générer l'effet thermique. Une bonne part de la puissance laser est ainsi perdue. Afin d'améliorer le couplage du laser dans l'échantillon, et donc augmenter la température de celui-ci, une configuration multi-passages souvent utilisée les systèmes d'amplificateur laser « thin disk » est développée [76].

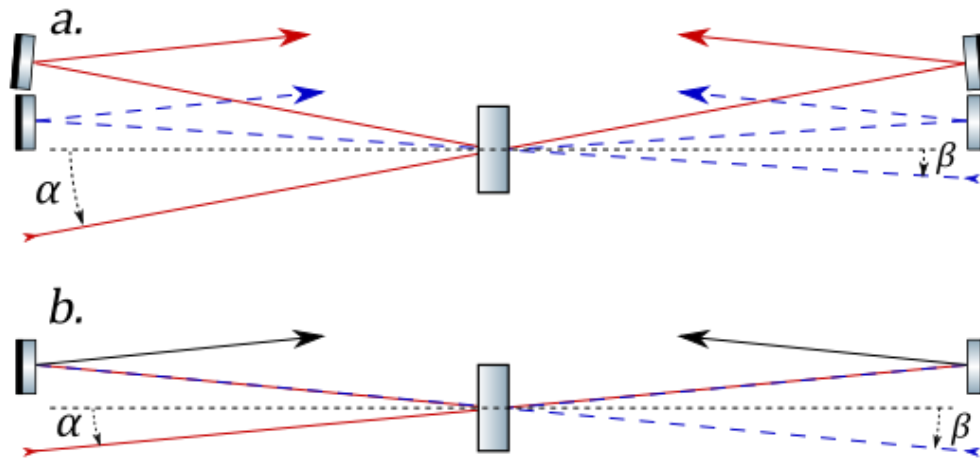


Figure 36 : Principe du recouvrement des faisceaux de sortie. Dans la partie supérieure a., l'angle d'incidence est différent entre les deux rayons incidents. Par conséquent, des faisceaux de sortie non superposés entraînent l'utilisation de quatre miroirs pour chaque passage sur l'échantillon. Lorsqu'ils sont correctement alignés avec le même angle d'incidence, les faisceaux de sortie se chevauchent et la moitié des miroirs est nécessaire, comme présenté dans la partie inférieure b.

La base conceptuelle de la configuration que nous avons développée consiste à recycler le faisceau laser et à le faire se chevaucher sur le même point de l'échantillon mesuré. Après le premier passage à travers l'échantillon, les faisceaux réfléchis et transmis sont redirigés vers l'échantillon à l'aide de miroirs hautement réfléchissants. Cette approche est ensuite répétée plusieurs fois avec les nouveaux faisceaux transmis et réfléchis jusqu'à ce que la puissance de pompe totale souhaitée sur l'échantillon mesuré soit atteinte. Pour éviter la multiplication des

miroirs à chaque passage, nous avons aligné le montage pour que les faisceaux réfléchis et transmis à chaque passage se chevauchent précisément, comme le montre la Figure 36.

Ce principe a été mis en œuvre trois fois pour le montage LIT (Figure 37). Le nombre de passages est limité afin de maintenir un montage compact et tous les angles d'incidence inférieurs à 20° . Cependant, le nombre de passages peut être augmenté si une puissance de pompe plus élevée est nécessaire. Pour effectuer l'alignement, un séparateur de faisceau pour la longueur d'onde du laser d'alignement et du laser de pompe est ajouté dans le plan de l'échantillon. Ce séparateur est constitué de trois couches $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2/\text{Nb}_2\text{O}_5$ (épaisseurs de 356 nm pour Nb_2O_5 et 547 nm pour SiO_2) déposées par évaporation (Bühler SYRUSpro 710) sur un substrat de silice fondue. Le spectre en transmission pour différents angles d'incidence est présenté sur la Figure 38. On constate que notre séparateur a une variation de transmission (et donc de réflexion, l'absorption étant négligeable ici) inférieure à 10 % selon l'angle d'incidence pour les deux longueurs d'onde d'intérêt qui sont celle du laser d'alignement (650 nm) et du laser de puissance (1070 nm).

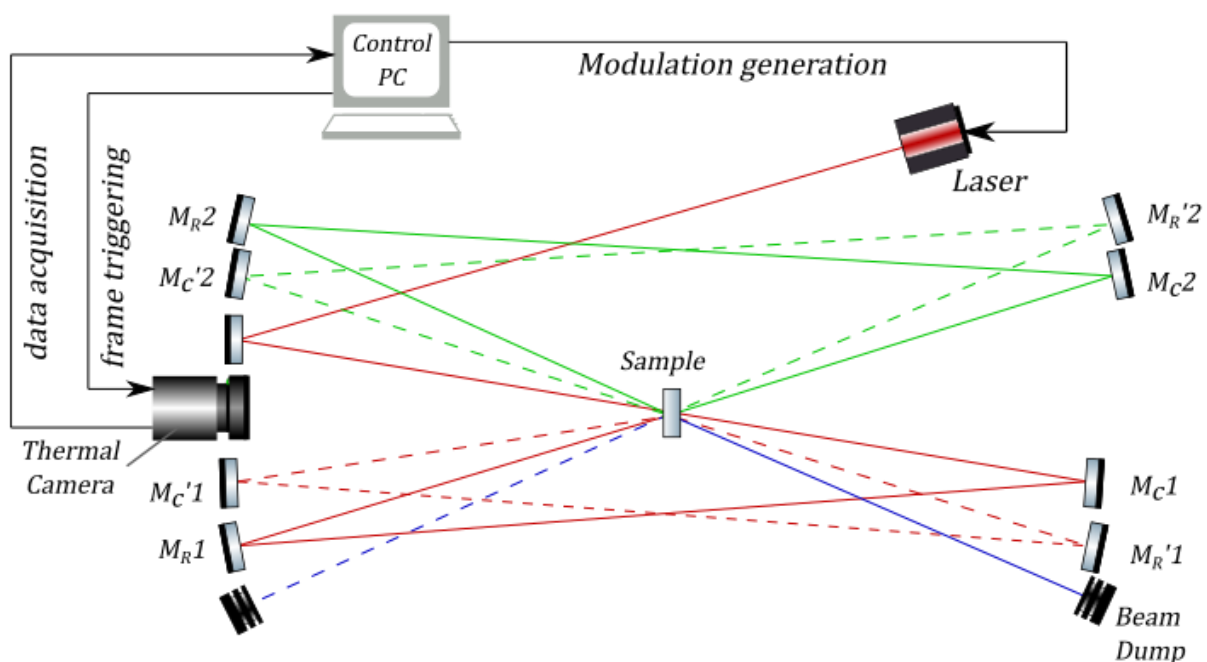


Figure 37 : Schéma de l'installation LIT multi-passages. La couleur du faisceau est modifiée après chaque passage pour plus de clarté. Ici, l'échantillon est considéré comme un diviseur de faisceau, afin de considérer tous les cas de configurations d'échantillons en réflexion et en transmission.

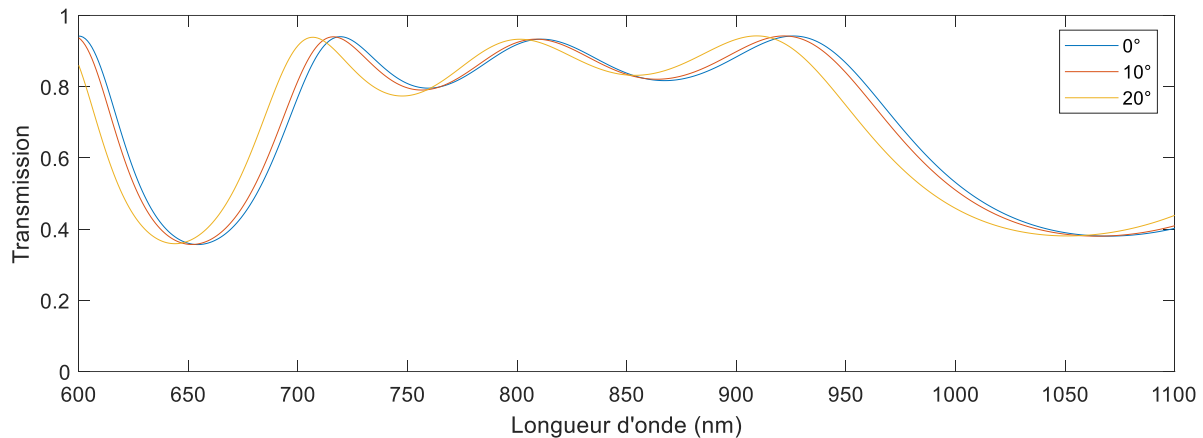


Figure 38 : Spectre en transmission du séparateur d'alignement du montage LIT. On constate que quel que soit l'angle d'incidence, la transmission est entre 35 et 45 % à la longueur d'onde du laser d'alignement (650 nm) et à la longueur d'onde du laser de puissance (1070 nm).

Le faisceau de pompe est envoyé à travers cet échantillon et le faisceau transmis est réfléchi sur un « miroir de collecte » M_C1 , tandis que le faisceau réfléchi par l'échantillon arrive sur le miroir $M_C'1$. Les faisceaux transmis et réfléchis sont ensuite redirigés vers l'échantillon grâce à deux « miroirs de renvoi », M_R1 et $M_R'1$. Ce principe est utilisé à nouveau avec les faisceaux superposés qui sont réfléchis et transmis par l'échantillon pour éclairer l'échantillon une troisième fois à l'aide des miroirs M_C2 , $M_C'2$, M_R2 et $M_R'2$.

Un laser continu non polarisé monomode transverse (SPI redPOWER® QUBE) avec une puissance variable entre 150 W et 1,5 kW à une longueur d'onde de 1070 nm est utilisé comme source de pompage. La modulation est obtenue en appliquant un signal 0-10 V généré par une carte NI USB-6211 de National Instruments et contrôlée par un logiciel maison. Le faisceau gaussien est guidé vers le montage avec une fibre monomode puis collimaté à un rayon de 3,34 mm à $1/e^2$. Pour faciliter l'alignement de l'installation, une diode laser collimatée visible à 633 nm est introduite dans le trajet du faisceau. La colinéarité des faisceaux de pompe et d'alignement est assurée par deux miroirs $\Phi 50$ mm UVFS à 1064 nm (EKSMA). Tous les miroirs collecteurs et de déviation sont des miroirs large bande (Thorlab BB-E03 $\Phi 25$ mm). La caméra thermique est une Optris PI230 fonctionnant dans la gamme 8-14 μm . La focale de 35 mm et l'ouverture de f/1,6 de l'optique de la caméra permettent d'obtenir une NETD de 300 mK et une résolution spatiale d'environ 250 μm par pixel (à notre distance de travail) sur l'échantillon d'après les spécifications fournisseur (FOV $6^\circ \times 5^\circ$). L'échantillon est installé sur une monture autocentrée (Thorlabs KS1SC — Kinematic Self-Centering Mount) elle-même

placée sur une platine linéaire motorisée pas à pas à deux axes (Newport UTS50). Le montage LIT multi-passages est visible sur la Figure 39.

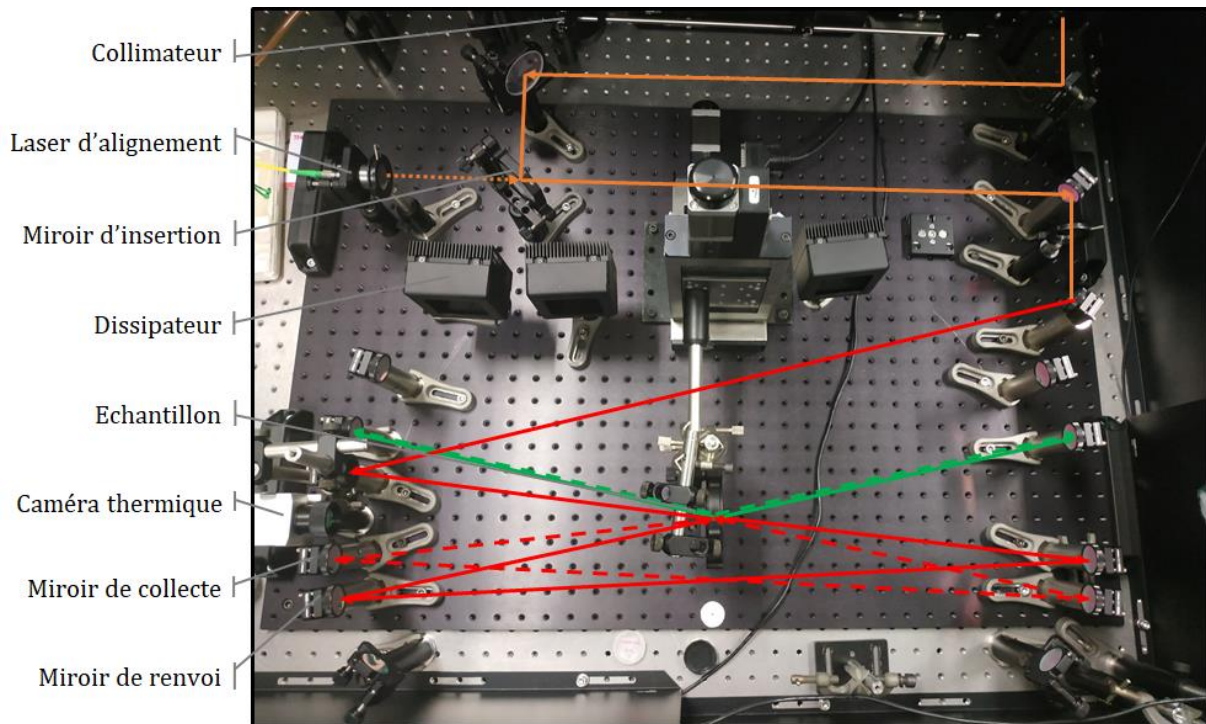


Figure 39 : Montage LIT multi-passages. Les faisceaux pour les deux premiers passages sont représentés. Le faisceau orange est le faisceau mis en forme, les faisceaux rouge et vert correspondent aux faisceaux de même couleurs sur la Figure 37.

2.3.2. Signal et bruit

Une fois ce montage réalisé, il est important d'optimiser les paramètres de la modulation afin de maximiser le signal en réduisant le bruit. Il est ainsi nécessaire de décider de la forme du signal de modulation, de son intensité et de sa fréquence ainsi que d'étudier l'influence du temps d'intégration sur le signal LIT.

En ce qui concerne l'intensité, les équations 26 et 28 montrent toutes deux une dépendance linéaire à la puissance. On pourrait donc préférer utiliser la puissance maximale à notre disposition, mais en pratique, utiliser le laser à 1,5 kW est bien plus contraignant qu'à 150 W. Si, par un léger défaut d'alignement, la queue de gaussienne du faisceau laser arrivait sur une monture, celle-ci monterait rapidement en température, endommageant le montage. Opérer ce montage à puissance maximale demande donc une attention supplémentaire que l'on ne

consentira que pour les optiques les moins absorbantes. En pratique, on commence toujours les mesures à 150 W, et si on n'arrive pas à obtenir de signal, on augmente progressivement la puissance jusqu'à ce que le signal émerge du bruit. Les exigences en matière de rapport signal sur bruit ont évolué au cours de ces travaux, avec le perfectionnement de l'instrument de mesure, mais nous visons aujourd'hui un rapport signal sur bruit de 3, valeur souvent utilisée en métrologie, afin de garantir que la valeur mesurée ait plus de 99 % de chance de ne pas provenir d'un bruit statistique.

Le signal photothermique a été obtenu en appliquant une transformée de Fourier rapide à chaque pixel de chaque image à l'aide des fonctions *fft* et *fftshift* de Matlab. Un filtrage, dont la fréquence et le type sont sélectionnés en fonction de la forme d'onde de modulation, est ensuite mis en œuvre pour extraire le signal utile. Pour la modulation sinusoïdale, la réponse thermique étant également une onde sinusoïdale, il suffit alors d'utiliser un filtre passe-bande à la fréquence de modulation comme dans l'exemple donné plus haut. Cependant, les lasers ont souvent un seuil de puissance minimum (ici 150 W). Par conséquent, la modulation sinusoïdale ne pouvait être appliquée qu'entre 150 W et 150+ ΔP W. Comme la technique LIT extrait l'effet thermique dû à la variation de ΔP , cette technique de modulation n'est pas la plus efficace dans ce cas. Une autre solution consiste à appliquer une forme d'onde carrée (c'est-à-dire en allumant et en éteignant le laser) afin d'augmenter l'amplitude de modulation, mais la réponse thermique dans ce cas contient des harmoniques, comme le montre la Figure 40.

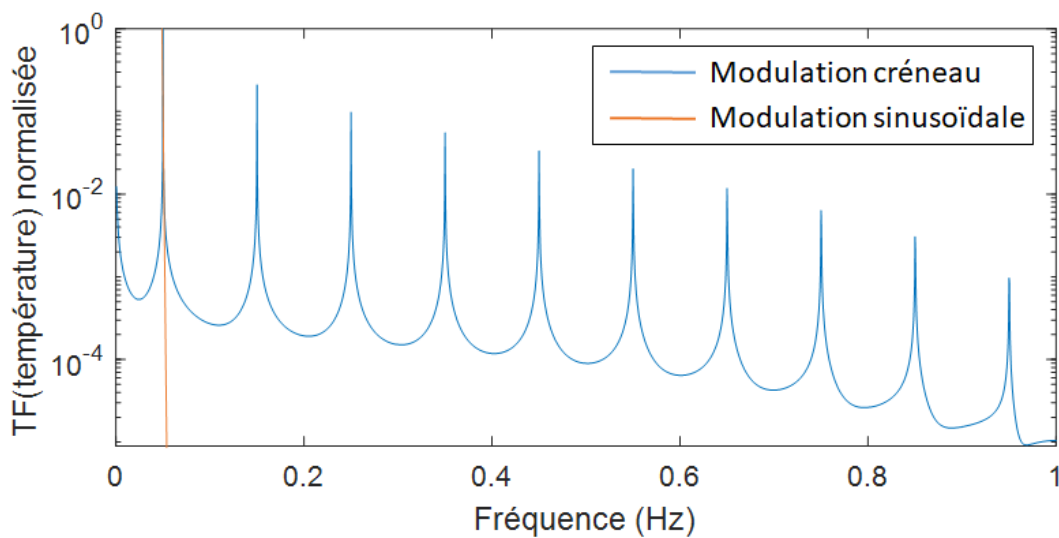


Figure 40 : Spectre normalisé d'une réponse thermique simulée pour un substrat de silice fondue soumis à une irradiation laser modulée avec un signal carré à 0,05 Hz. On normalise ici par l'amplitude du fondamental.

Le spectre montre un fondamental à la fréquence de modulation et des harmoniques à des multiples impairs de la fréquence fondamentale. Pour maximiser le niveau du signal, nous avons utilisé le fait que toutes les harmoniques contribuent au signal photothermique total. Nous définissons alors le signal comme la somme des amplitudes de la fondamentale et des harmoniques. L'expérience et les simulations montrent que cela permet de gagner environ 10 % sur le signal. En appliquant cette procédure à chaque pixel de l'image, nous obtenons une image LIT non étalonnée correspondant au profil de variation de température. Comme le profil spatial du laser, l'image photo-thermo induite présente également un profil quasi gaussien. Pour tenir compte de la distribution non uniforme, nous avons réalisé un ajustement sur le signal mesuré avec une fonction gaussienne 2D en utilisant les outils d'ajustement de MATLAB, et extrait une amplitude moyenne représentative de la mesure. Cet ajustement gaussien est nettoyé des macro-défauts absorbants (poussières, inclusions, ...). Pour ce faire, on réalise un premier fit gaussien de l'image et on fait la carte des résidus. Les pixels dont la valeur est supérieure à un multiple de l'écart-type (typiquement quatre fois) sur cette carte, sont ramenés au niveau de l'ajustement sur l'image LIT. Puis, un nouvel ajustement est effectué et la procédure est recommencée jusqu'à ce qu'aucun point de la carte de résidus ne soit au-dessus de la limite d'écart-type choisie. Cependant, lorsque ces défauts sont trop proches du centre de la gaussienne, trop nombreux ou trop absorbants, cela peut conduire à une surestimation du signal LIT. Ceci est dû à la diffusion thermique des défauts, ainsi qu'au traitement de ces zones de défauts dans l'image.

Pour choisir une fréquence de modulation appropriée, nous avons d'abord simulé l'influence de la fréquence sur la température pour un substrat de silice fondue, avec une absorption de surface de 1000 ppm et une illumination sinusoïdale d'amplitude 150 W. Nous avons également mesuré le signal LIT d'une monocouche de Nb_2O_5 déposée sur un substrat Corning 7980 avec une absorption connue autour de 1000 ppm. Comme le montre la Figure 41, la variation de température simulée et le signal LIT mesuré diminuent comme la racine carrée inverse de la fréquence de modulation [50]. Cette figure permet aussi de faire une approximation de l'équivalence entre signal LIT et température qui suit une loi affine avec $a = 2,96 \text{ u. a./}^\circ\text{C}$ et $b = -1.38 \text{ u. a.}$

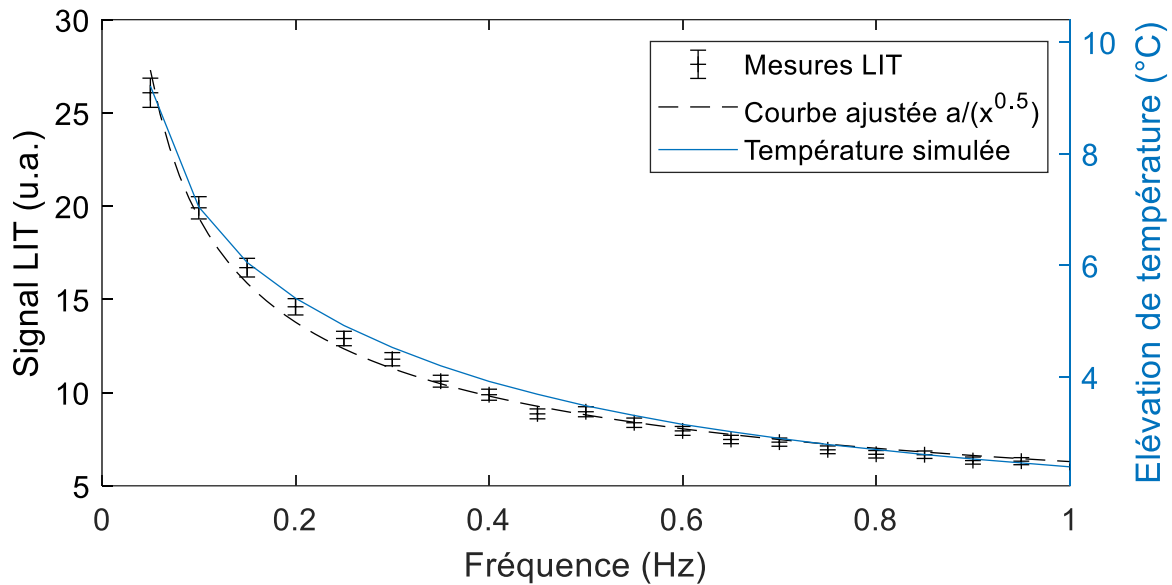


Figure 41 : Variation de température et dépendance du signal LIT en fonction de la fréquence. Le signal LIT est mesuré sur une monocouche de Nb_2O_5 déposée sur un substrat de silice fondue Corning 7980 exposée à une puissance laser de 150 W à 1070 nm. La température est simulée à l'aide de COMSOL avec (toutes choses égales par ailleurs) une forme de modulation qui est prise comme une fonction sinusoïdale. Dans ce document, les barres d'erreurs sont présentées avec un facteur de confiance de 3 (99,7 % des mesures).

Jusqu'à présent, nous avons discuté de l'évolution du signal avec les paramètres expérimentaux. Cependant, l'intérêt principal de la technique de lock-in est l'amélioration du rapport signal sur bruit et l'effet de la durée de la mesure sur ce rapport requiert d'être analysé. Dans la Figure 42, l'évolution du bruit mesuré est tracée en fonction de la durée d'acquisition et dans la Figure 43 l'évolution du bruit mesuré est tracée en fonction de la fréquence. Une diminution du bruit avec l'augmentation de la durée de mesure est observée et peut être modélisée comme suit [50] :

$$\langle Amp_{noise} \rangle = \frac{2}{\sqrt{f_{mod} \cdot \tau_{acq}}} NETD \quad (41)$$

où $\langle Amp_{noise} \rangle$ est l'amplitude moyenne du bruit de température et τ_{acq} est le temps d'acquisition. La fréquence de modulation f_{mod} a également une influence sur le bruit de l'image. Dans ce document, les mesures sont réalisées la plupart du temps sur 16 périodes, mais 64 périodes sont nécessaires pour atteindre la ppm.

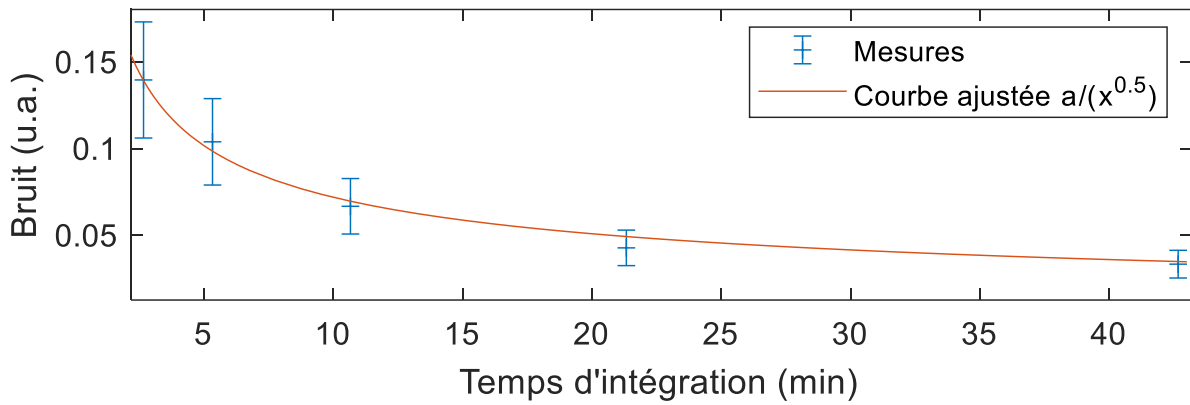


Figure 42 : Dépendance du bruit par rapport au temps de mesure. Les points correspondent à des mesures réalisées sur 8, 16, 32, 64 et 128 périodes. Chaque mesure est effectuée avec le même nombre de points.

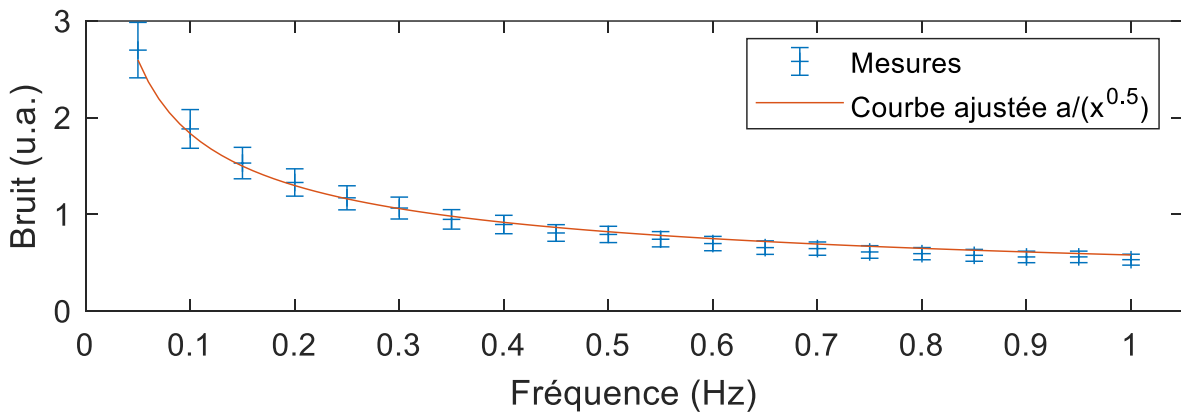


Figure 43 : Évolution du bruit sur l'image LIT avec la fréquence de modulation.

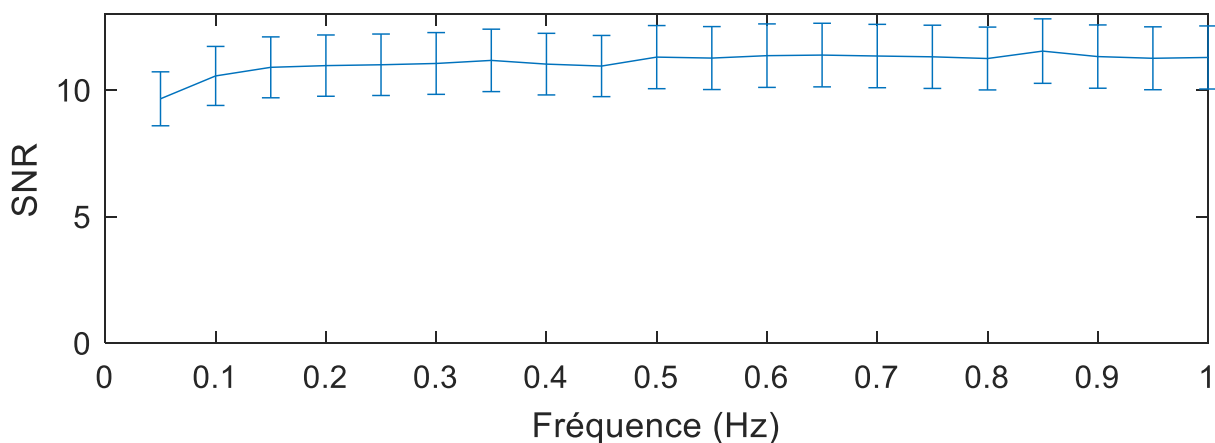


Figure 44 : Constance du SNR de l'image LIT avec la fréquence de modulation.

Sur la Figure 44 on vérifie que le rapport signal sur bruit reste invariant avec la fréquence si on conserve le même nombre de périodes en raison de la dynamique similaire du signal et du bruit.

On pourrait donc penser que le mieux est de prendre la fréquence la plus haute possible et ainsi réduire drastiquement le temps de mesure tout en conservant notre rapport signal sur bruit. Cela revient à ignorer le problème de la limite de détection propre à tout instrument de mesure. Ainsi, si la variation de température est en dessous du minimum de résolution (en température) de la caméra, aucun signal ne sera visible. Il faut donc être suffisamment lent pour qu'un signal (même noyé dans le bruit) soit détecté par la caméra. Il apparaît alors que pour maximiser le signal, une fréquence faible est préférable. Par ailleurs, il sera expliqué dans la suite du document que les incertitudes relatives de répétabilité sur le signal baissent avec le signal. On choisit donc une fréquence de modulation à 0,05 Hz pour maximiser le signal en gardant un rapport signal sur bruit inchangé.

3. Étalonnage et caractérisation du banc

Nous avons vu comment obtenir un signal LIT, comment il se comporte en fonction des différents paramètres d'acquisition et nous savons à présent comment optimiser ce signal. Ce signal est lié à l'élévation de température et permet des études relatives. Pour procéder à une étude quantitative de l'absorption il nous faut étalonner notre montage afin de pouvoir fournir des mesures d'absorption absolues.

3.1. Étalonnage par corps noir

La caméra thermique est normalement étalonnée lorsqu'elle est utilisée avec le logiciel propriétaire du fabricant. Mais pour pouvoir synchroniser notre prise d'image avec notre modulation, nous devons avoir recours à nos propres programmes. Le fabricant fournit alors des « software development kits » (SDK) pour contrôler la caméra via LabVIEW. Ces SDK ne fournissent pas une température étalonnée, mais un signal dans une unité arbitraire. Pour remonter à l'absorption, il est donc nécessaire d'étalonner le banc de mesure. La première

stratégie que l'on peut adopter consiste à étalonner le banc sur un corps noir afin de lier le signal à une température, puis d'utiliser nos modèles pour en déduire l'absorption.

La caméra est placée devant un corps noir (Newport 67030 Blackbody Source) et un obturateur électronique est branché sur le signal de modulation laser comme on peut le voir sur la Figure 45.

En traçant la courbe de la variation de la température mesurée en fonction de la variation de température réelle (c'est-à-dire la différence de température entre le corps noir et la pièce), pour des mesures LIT sur 16 périodes avec une fréquence d'obturation de 0,05 Hz, on obtient la courbe linéaire de pente $a_{th} = 9 \text{ u.a./}^\circ\text{C}$. visible sur la Figure 46. Cette valeur est environ 3 fois supérieure avec celle déduite de la Figure 41. Nous n'avons pas su identifier la cause de cet écart qui reste donc à investiguer. Une validation de nos modèles pourrait être d'essayer de placer un disque de graphite (dont les paramètres optiques et thermiques sont bien connus) en lieu et place de l'échantillon sur l'instrument LIT. Une image pourrait être faite en parallèle avec notre caméra thermique et une caméra étalonnée en température qui dispose d'une entrée dédiée à la détection synchrone. Cela nous permettrait de connaître l'élévation de température et de confronter cela à nos modèles.



Figure 45 : Montage d'étalonnage thermique du banc de mesure LIT.

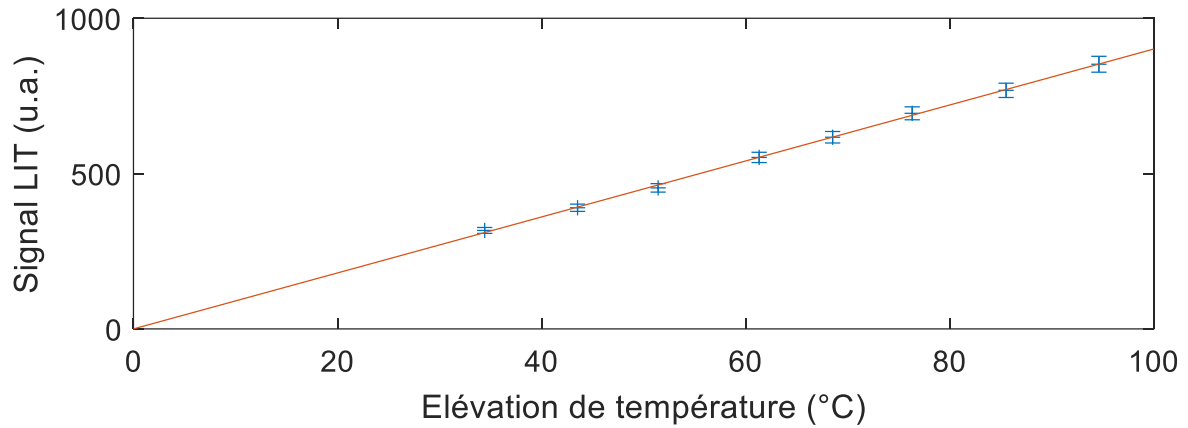


Figure 46 : Courbe d'étalonnage thermique de l'instrument de mesure LIT.

Pour remonter à l'absorption, les modèles COMSOL présentés plus haut sont utilisés (Cf. 1). La température est calculée pour un substrat de silice fondue (capacité calorifique $C_p = 770 \text{ J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$, conductivité $K = 1,38 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ et masse volumique $\rho = 2200 \text{ Kg.m}^{-3}$) de même géométrie que celle utilisée pour nos dépôts (diamètre 25 mm et épaisseur 2 mm) pour différentes absorptions à une puissance de 150 W. Une courbe linéaire de pente $a_{\text{model}} = 9,68.10^3 \text{ }^\circ\text{C}$ est obtenue et présentée sur la Figure 47.

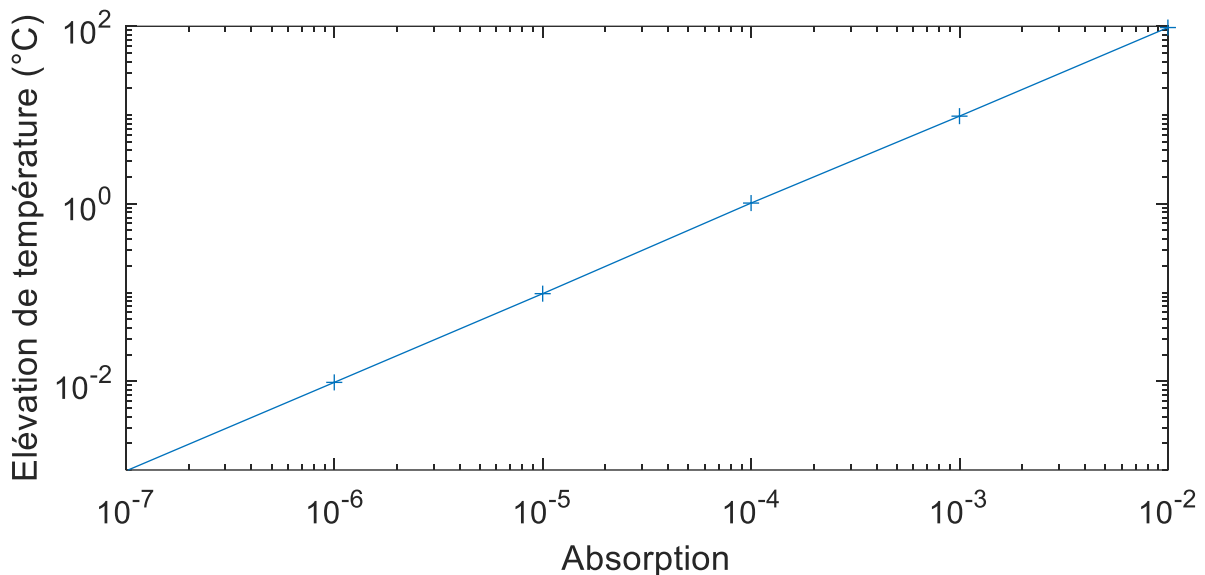


Figure 47 : Courbe issue du calcul numérique de la relation entre température et absorption calculée pour un laser de 150 W et un waist de 3.375 mm. Cette courbe est également calculée pour un substrat Corning 7980 de 25 mm de diamètre tel que nous en utilisons habituellement.

Ainsi on peut passer du signal LIT S à l'absorption A par la relation linéaire $A = a_{ET} \times S$ avec :

$$\boxed{a_{ET} = (a_{th} \cdot a_{model})^{-1} = 1,15 \times 10^{-5}} \quad (42)$$

En utilisant un corps noir, cette méthode s'affranchit des dépendances expérimentales comme l'alignement, mais pour faire cela nous dépendons du modèle. Nous devons donc avoir une forte confiance dans nos modèles, qui reposent sur nos hypothèses de départ. Conséquemment, nous ne sommes pas non plus en mesure d'estimer une incertitude et ainsi exprimer le niveau de confiance de nos mesures.

3.2. Étalonnage par échantillon de référence

Une seconde stratégie utilisable pour effectuer notre étalonnage consiste à utiliser un étalon d'absorption connue. Que l'on considère les modèles proposés en régime transitoire ou harmonique (équations 26 et 28) ou bien les résultats de nos modèles COMSOL (Cf. 1), nous avons pu constater que la température variait linéairement avec la puissance absorbée. Ainsi il est possible de construire une courbe d'étalonnage reliant la puissance absorbée au signal.

Différentes monocouches avec différentes épaisseurs et absorptions ont été réalisées. Pour cela, nous avons créé des monocouches sous-stœchiométriques d'oxyde de Niobium (Nb_2O_5) de 50, 130 et 300 nm déposées par évaporation (Bühler SYRUSpro 710 plasma-assisted deposition (PIAD)) en réduisant la quantité de dioxygène introduite dans la chambre durant le dépôt. Cela a pour effet de faire augmenter l'absorption à des niveaux mesurables par spectrophotométrie classique. Le but est de mesurer les signaux LIT en fonction de la puissance absorbée comme on peut le voir sur la Figure 48. On constate que la plupart des échantillons testés ont un signal évoluant de façon identique avec la puissance absorbée. Seul un échantillon (celui avec les plus faibles pertes) ne suit pas cette tendance. Il est supposé que pour de telles pertes, la diffusion n'est pas négligeable et l'échantillon est écarté.

L'échantillon de référence retenu pour ce travail est une monocouche de 130 nm d'épaisseur à $A_{ref} = 2,4 \%$ de pertes, mesuré à l'aide d'un spectrophotomètre Perkin-Elmer Lambda 1050.

Son spectre infrarouge est visible sur la Figure 49. L'incertitude sur la valeur de pertes de l'échantillon de référence estimée par répétabilité est de $6,1 \times 10^{-2}$ (2,7 % d'incertitude relative).

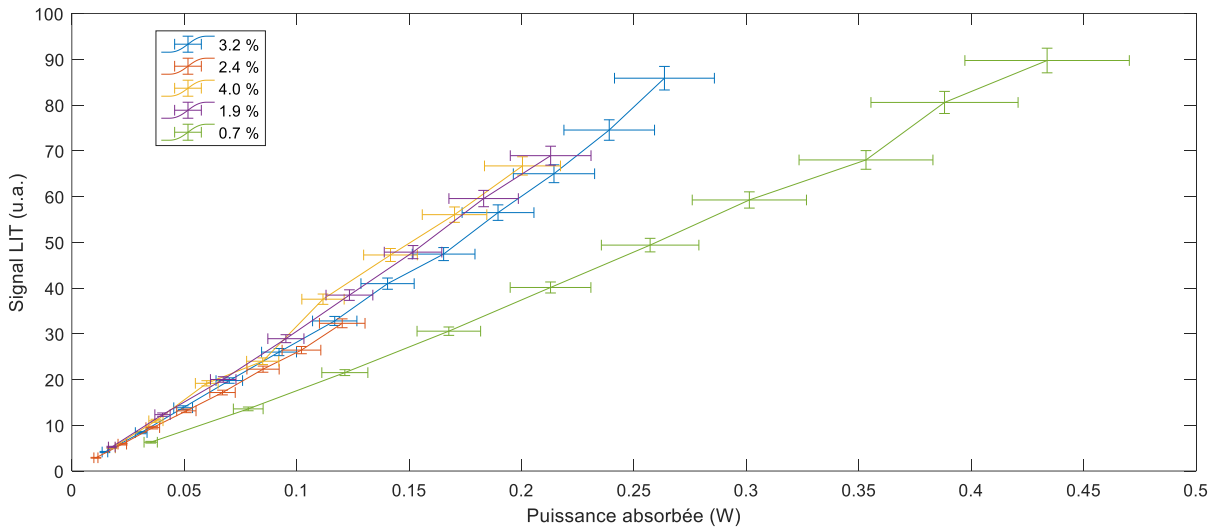


Figure 48 : Evolution mesurée du signal LIT en fonction de la puissance absorbée sur un jeu d'échantillons fortement absorbants. Tous les échantillons suivent la même tendance, à l'exception de l'échantillon de 0,7 % d'absorption (courbe verte). Le comportement de cette dernière courbe peut s'expliquer par une diffusion non négligeable devant l'absorption. Cet échantillon a donc été rapidement écarté des échantillons de référence.

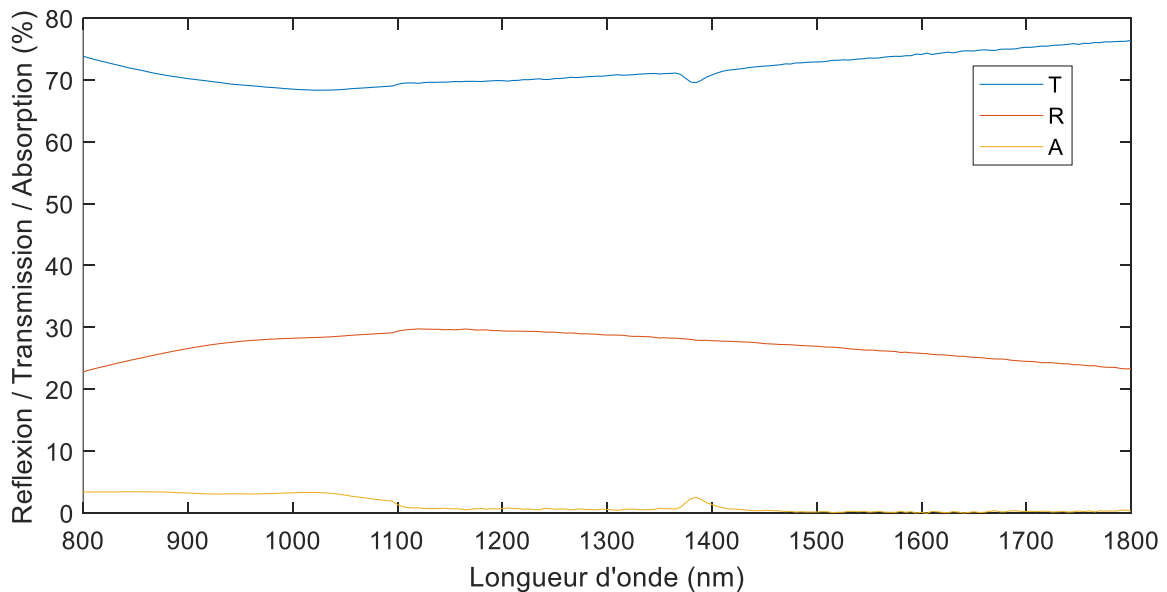


Figure 49 : Spectres de l'échantillon de référence.

L'effet de la diffusion est considéré comme négligeable ce que nous confirmons par simple contrôle visuel (une diffusion même de quelques dixièmes de pour cent devrait être visible à l'œil nu).

Pour mesurer le signal LIT sur l'échantillon de référence, nous réduisons la puissance du laser sous les 150 W en le configurant de sorte à obtenir des impulsions de 50 μs à haute fréquence, et en faisant varier la fréquence de 100 Hz à 1 kHz pour modifier la puissance moyenne entre 1 et 11 W. On peut ainsi obtenir la courbe d'étalonnage présentée sur la Figure 50 en mesurant le signal LIT à différentes fréquences dans les mêmes conditions que pour l'étalonnage thermique. Le coefficient directeur de la droite obtenue est de $a_{cal} = 298,2 \text{ W}^{-1}$. Comme la donnée utilisée pratiquement en entrée est le signal, on définit $a_{ER} = a_{cal}^{-1} = 3,4 \times 10^{-3} \text{ W}$.

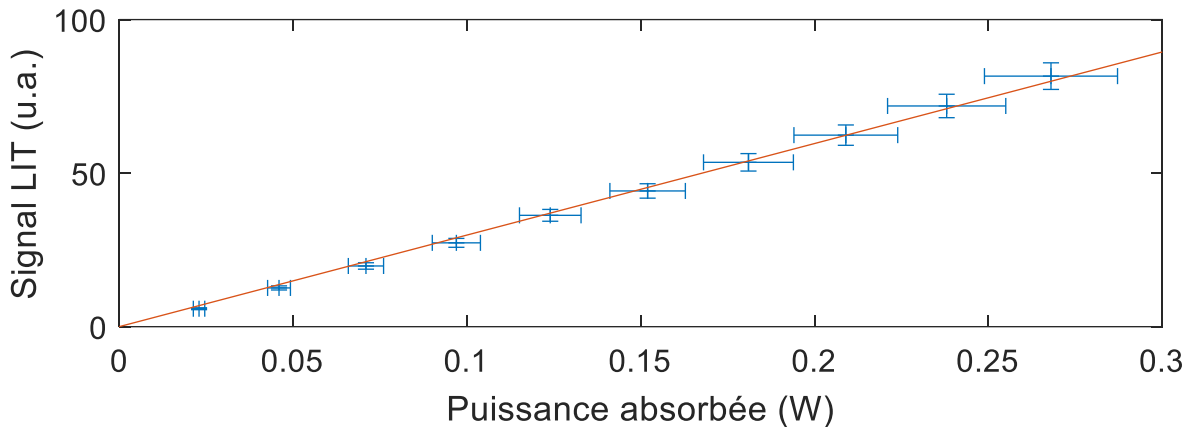


Figure 50 : Courbe d'étalonnage mesurée sur un échantillon de référence avec 2,4 % de pertes par absorption.

Pour retrouver l'absorption A on utilisera donc l'équation d'instrument suivante :

$$A = \frac{a_{ER} S}{P} \quad (43)$$

où S est le signal LIT mesuré et P la puissance utilisée pour la mesure. Par ailleurs, nous faisons ici l'hypothèse que la puissance absorbée est proportionnelle au nombre de passages. Cette approximation est portée par la très faible absorption des échantillons mesurés. Toutefois les échantillons de référence ont quant à eux une absorption de plusieurs ordres de grandeur

supérieure. Nous vérifions donc à présent la validité de cette approximation pour notre étalonnage. On peut écrire la puissance absorbée par un échantillon au $N^{ième}$ passage P_N comme :

$$P_N = AP(1 - A)^N \quad (44)$$

La puissance absorbée totale après N passages est donc :

$$P_{abs} = \sum_0^{N-1} P_i = AP \underbrace{\sum_0^{N-1} (1 - A)^i}_{B(N)} = APB(N) \quad (45)$$

En utilisant la somme fini d'une série géométrique tel que $\sum_0^N x^i = \frac{1-x^{i+1}}{1-x}$ on obtient :

$$P_{abs} = P[1 - (1 - A)^N] \quad (46)$$

Pour le cas où A est petit, le développement limité d'ordre 1 de $(1 - x)^N$ donne :

$$P_{abs} = APN \quad (47)$$

L'équation de la droite détalonnage a_{ER} peut s'écrire :

$$a_{ER} = \frac{P_e A_{ref} B_{ref}}{S_e} \quad (48)$$

Où S_e et P_e sont le signal et la puissance mesurés lors de l'étalonnage sur l'échantillon de référence, A_{ref} l'absorption de l'échantillon de référence, et B_{ref} est le coefficient B (Cf. équation 45) dans le cas de l'échantillon de référence. Si on introduit cette expression dans l'équation 43 de l'instrument en utilisant l'approximation faible absorption pour l'échantillon à mesurer on obtient :

$$A_{corrigé} = \frac{SP_e B_{ref}}{S_e P} \frac{1}{N} A_{ref} \quad (49)$$

Pour corriger la mesure faite avec l'approximation des petites absorptions, il faut multiplier la mesure par le facteur de correction F_{corr} :

$$F_{corr} = \frac{A_{corrige}}{A_{mesure}} = \frac{\frac{SP_e B_{ref}}{S_e P} \frac{A_{ref}}{N}}{\frac{SP_e}{S_e P} A_{ref}} = \frac{B_{ref}}{N} \quad (50)$$

On fait donc paraître le ratio F_{corr} qui dépend du nombre de passages et de l'absorption de l'étalon. On peut donc utiliser ce ratio comme facteur de correction du coefficient de la droite d'étalonnage ce qui donne :

$$a_{ER} = F_{corr} \cdot a_{ER_{mesure}} = 3,1 \times 10^{-3} W \quad (51)$$

La Figure 51 donne l'évolution du facteur de correction avec l'absorption de l'étalon dans le cas de montages ayant différents nombres de passages.

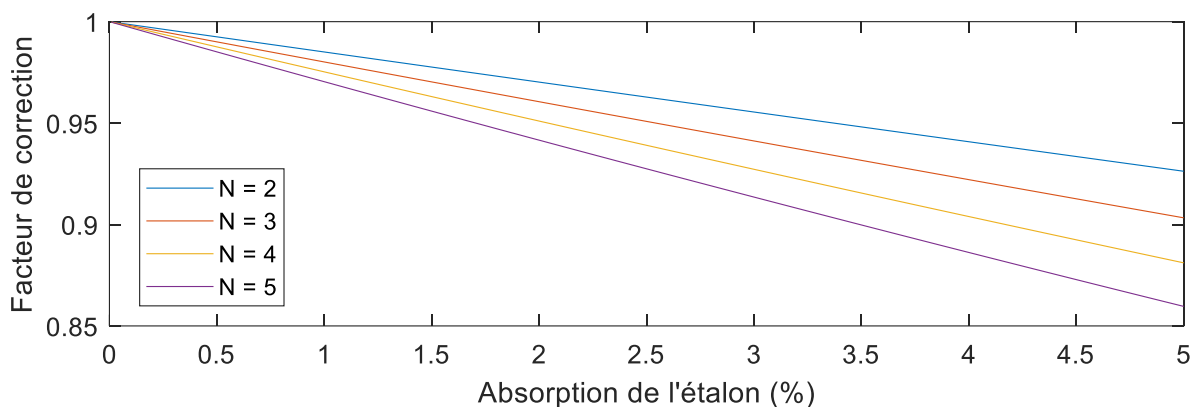


Figure 51 : Evolution du facteur de correction de l'étalonnage en fonction du nombre de passages et de l'absorption de l'échantillon de référence.

Cette méthode nous permettra de faire un budget d'incertitude complet, mais sa validité dépend de la validité de l'approximation d'égalité pertes/absorption.

3.3. Comparaison des méthodes d'étalonnage

On compare sur le Tableau 7 les absorptions obtenues pour différents niveaux de signal LIT à 150 W de puissance laser. Le ratio entre les mesures est tel que :

$$\text{Ratio} = \frac{\text{Absorption par modèle thermique}}{\text{Absorption par échantillon de ref.}} = \frac{a_{ET}}{a_{ER}/150} = 0,56 \quad (52)$$

Cette différence ne peut donc provenir de la variation statistique de a_{ET} et a_{ER} (écart-type relatif $\approx 8\%$, les calculs d'incertitudes sont présentés dans la suite. Cf. 3.5).

Tableau 7 : Température et absorption atteintes avec différents niveaux de signal LIT.

Signal (u.a.)	Élévation de température calculée (°C)	Absorption		Ratio
		Par échantillon de référence	Par modèle thermique	
0,001	$1,11 \times 10^{-4}$	$2,07 \times 10^{-8}$	$1,15 \times 10^{-8}$	0,56
0,01	$1,11 \times 10^{-3}$	$2,07 \times 10^{-7}$	$1,15 \times 10^{-7}$	
0,1	$1,11 \times 10^{-2}$	$2,07 \times 10^{-6}$	$1,15 \times 10^{-6}$	
1	$1,11 \times 10^{-1}$	$2,07 \times 10^{-5}$	$1,15 \times 10^{-5}$	
10	1,11	$2,07 \times 10^{-4}$	$1,15 \times 10^{-4}$	

Les deux méthodes d'étalonnage fournissent toutes les deux des résultats aux ordres de grandeur cohérents. Mais il subsiste une différence non négligeable. Les données de mesures utilisées pour réaliser l'étalonnage en température sont caractérisées par de plus faibles incertitudes, mais comme mentionné dans la section dédiée aux modèles (Cf. 1), l'exactitude de ceux-ci repose sur les hypothèses posées pour les mettre en œuvre. L'étalonnage avec échantillon de référence repose exclusivement sur la mesure. Les incertitudes de ces différentes mesures vont donc se propager et se répercuter sur l'incertitude finale de mesure d'absorption. Toutefois, toutes ces incertitudes sont quantifiables et leur propagation est calculable. Cela nous permet donc d'avoir un instrument dont les mesures sont moins fidèles mais auquel nous pouvons donner un intervalle de confiance. C'est pour cette raison que nous avons, dans la suite de ce document préféré la méthode d'étalonnage par échantillon de référence.

3.4. Mesure des émissivités effectives

Nous disposons à présent d'un banc de mesure étalonné, même s'il subsiste quelques questionnements comme indiqué plus haut. Cependant le signal mesuré d'où nous tirons l'absorption ne tient pas compte des différences d'émissivité qui peuvent exister entre les

différents échantillons. Ainsi, notre signal LIT dépend de différents paramètres intrinsèques au capteur et à l'échantillon que l'on peut exprimer comme il suit :

$$s = \rho \int M(\lambda).r(\lambda).\varepsilon(\lambda).d\lambda \quad (53)$$

Avec s le signal mesuré, ρ un coefficient dépendant du système d'imagerie, M l'émittance donnée par la loi de Planck, r la réponse spectrale de la caméra et ε l'émissivité de l'échantillon. L'émissivité seule pourrait être déterminée par une simple mesure de l'absorption dans la gamme de détection spectrale de la caméra. Malheureusement, nous connaissons la gamme spectrale, mais pas la réponse spectrale. Il nous faut donc un autre moyen pour déterminer un facteur de correction du signal. Stewart et Hughes [77] proposent une méthode permettant de mesurer l'émissivité effective, c'est-à-dire le facteur qui permet d'opérer les corrections de mesures pour la caméra utilisée. Pratiquement cela consiste à porter l'échantillon que l'on veut mesurer à une température connue, puis utiliser le logiciel propriétaire de la caméra (où les mesures sont étalonnées en température) pour chercher le paramètre d'émissivité qui permet de retrouver cette température. Le montage réalisé pour cette mesure est visible sur la Figure 52. On suppose dans cette mesure que la température est homogène dans l'échantillon.

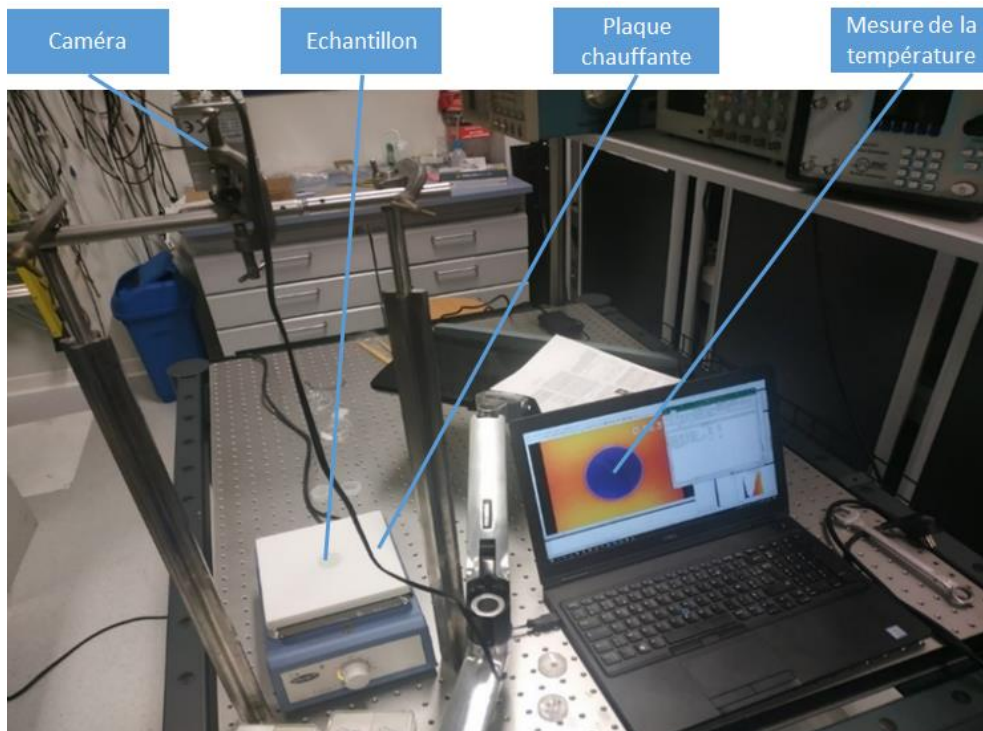


Figure 52 : Banc de mesure pour la détermination de l'émissivité effective.

Nous avons mesuré l'émissivité relative pour l'échantillon de référence ainsi que pour un jeu de divers substrats, monocouches et multicouches. Les résultats sont visibles sur la Figure 53. Ils montrent que les monocouches (dont l'échantillon de référence) ont tous une émissivité effective légèrement en dessous des substrats de silice fondue, substrats sur lesquels sont déposés ces monocouches. Une explication pourrait être que l'essentiel du rayonnement thermique détecté provient du substrat, ce rayonnement étant peu affecté par la présence de la monocouche d'épaisseur très faible par rapport à la longueur d'onde. On notera aussi une légère différence de mesure entre les silices fondues et le substrat de borosilicate (BK7). Les structures multicouches quant à elles présentent toutes une émissivité supérieure à leur substrat. Des modèles prenant en compte le design et les propriétés optiques des couches sont probablement nécessaires pour expliquer cela. Pour les mesures à venir, nous pourrions donc négliger la correction d'émissivité pour les mesures de monocouches, mais nous devons la mesurer pour des empilements.

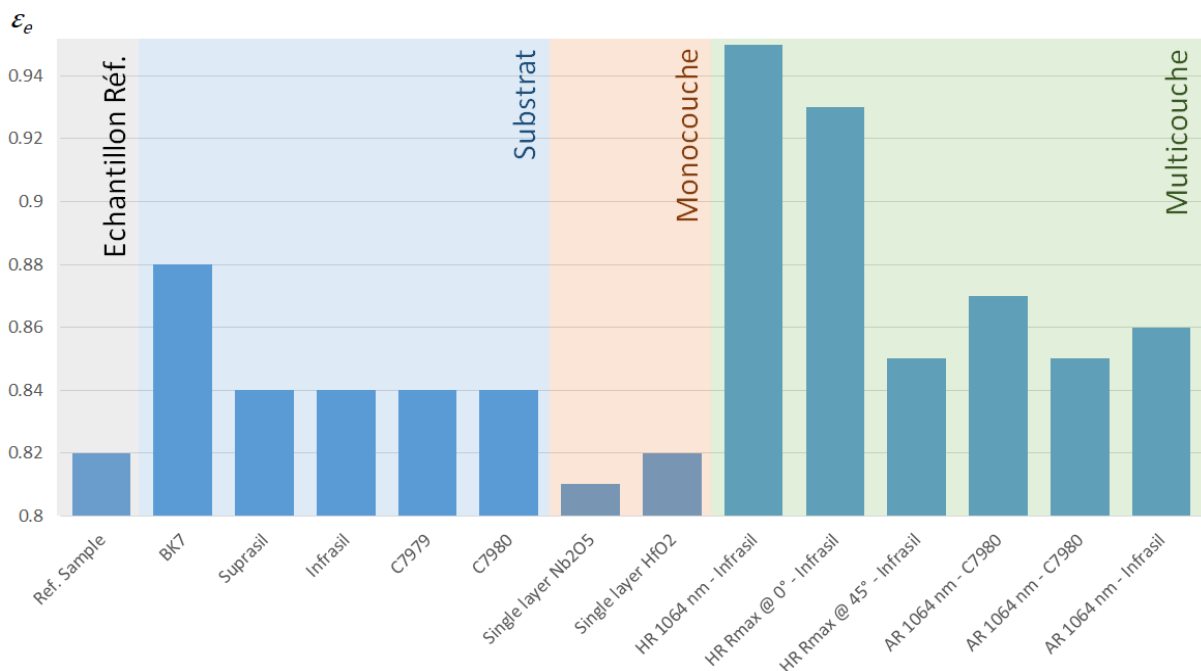


Figure 53 : Mesures d'émissivité effective. Les monocouches présentent des valeurs comparables entre elles et proches des substrats sur lesquels elles ont été déposées. Les multicouches présentent des émissivités effectives plus variables probablement dues à leurs différences de design.

Nous allons dans la suite présenter les évaluations de l'incertitude pour nos mesures d'absorption. Celles-ci ne comportent pas la prise en compte des erreurs de mesures dues à l'émissivité relative.

3.5. Estimation des incertitudes

Afin de caractériser complètement le montage de LIT, il est nécessaire de déterminer sa fidélité ou précision. Il faut donc déterminer l'incertitude des mesures. Ces incertitudes ont trois origines principales : l'incertitude du signal, l'incertitude de la puissance du laser et l'incertitude de la calibration.

L'incertitude du signal est associée à plusieurs sources, liées à la mesure du signal LIT et à son traitement :

- Concernant l'incertitude de mesure du signal, nous avons évalué la reproductibilité du signal en répétant la procédure de mesure. Un écart-type relatif de 7,8 % est mesuré pour un signal d'environ 0,8 u.a. cependant, cette valeur tombe à 1,7 % à environ 5,5 u.a.
- L'incertitude du signal peut également provenir du traitement de la détection synchrone. En utilisant les modèles numériques, nous pouvons calculer la variation du signal pour un échantillon soumis à une irradiation laser durant le régime transitoire et stationnaire, comme le montre la Figure 54. La variation du signal conduit à une erreur qui diminue avec le temps. Elle passe de 5,6 % pour une mesure commençant au même moment que la modulation laser à 0,3 % lorsque l'échantillon atteint l'équilibre thermique. Il est donc très important d'atteindre l'établissement du régime stationnaire pour effectuer les mesures. Une autre cause d'incertitude est la variation due au nombre de périodes nécessaires pour effectuer la détection synchrone. La Figure 55 montre une erreur inférieure à 1 % dans tous les cas et considérée comme indépendante du niveau d'absorption. Si nous supposons une distribution uniforme de la valeur de mesure dans l'erreur, nous pouvons prendre un écart type $\sigma = \frac{\text{erreur}}{2\sqrt{3}}$ [78]. Dans le pire des cas, cela conduit à une incertitude relative de 1,6 % pour la mesure effectuée dans le régime

transitoire de la température et de 0,3 % dans le cas d'une mesure à quatre périodes. L'incertitude totale due à la détection synchrone est de 1,6 %.

La dernière source d'erreur de traitement est liée à l'ajustement gaussien de l'image LIT. La boîte à outils MATLAB utilisée pour l'ajustement gaussien fournit une incertitude pour cet ajustement d'environ 0,3 % pour un échantillon avec une mesure de signal de 0,1 u.a. qui diminue à 0,01 % pour un signal de 142 u.a.

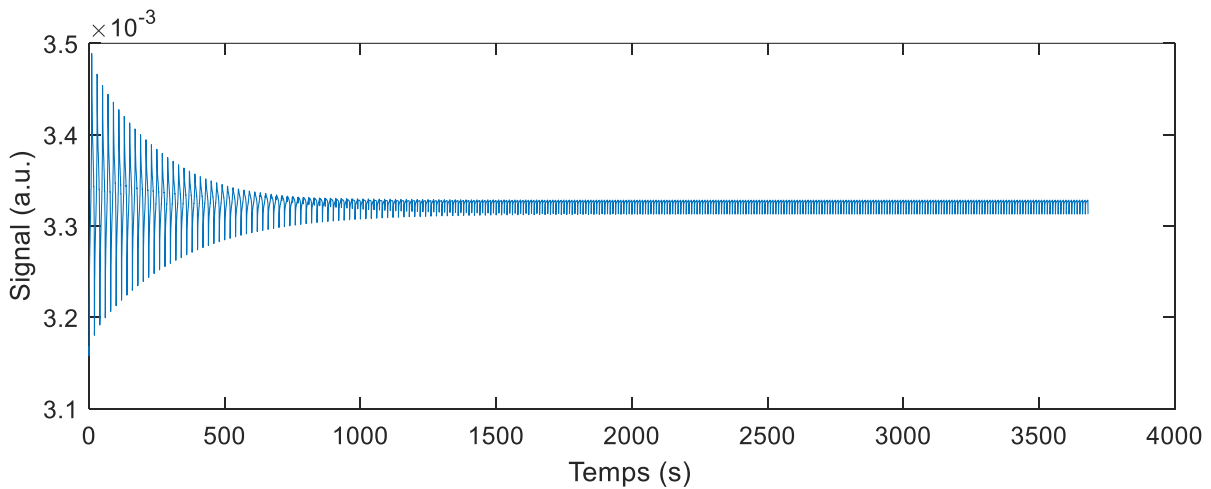


Figure 54 : Variation simulée du signal LIT avec la stabilité du signal thermique calculée sur 16 périodes avec une modulation de fréquence laser de 0,05 Hz pour un échantillon de silice fondue avec 1 ppm d'absorption.

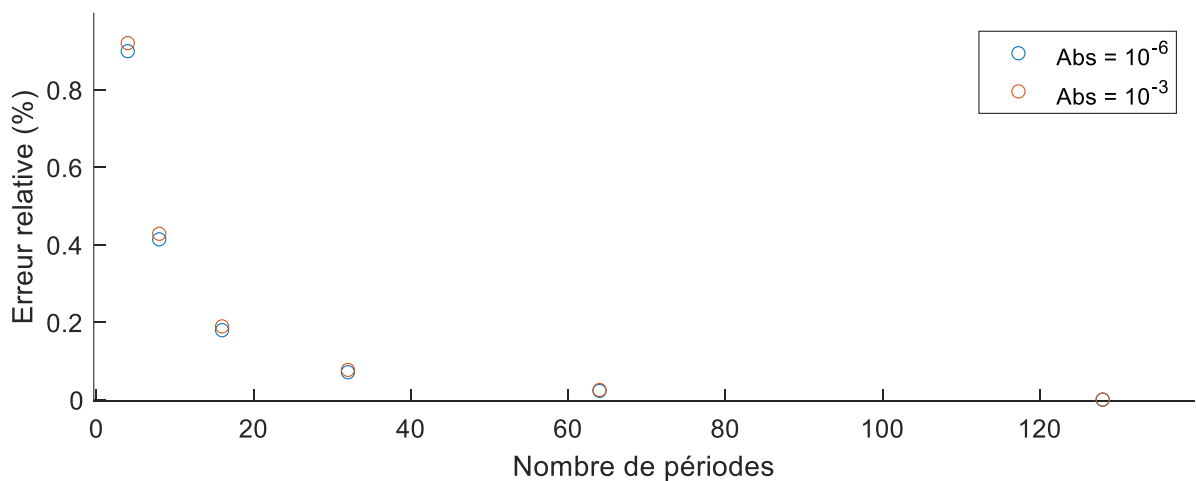


Figure 55 : Variation simulée de l'erreur du signal LIT calculée pour différents nombres de périodes avec une fréquence de modulation de 0,05 Hz pour une silice fondue avec 1 ppm et 1000 ppm d'absorption.

L'écart-type total sur le signal est calculé en prenant la racine carrée de la somme quadratique des différentes incertitudes. En considérant les incertitudes les plus fortes constatées, l'incertitude relative sur le signal est de 8 %.

En ce qui concerne l'incertitude sur la puissance laser, nous devons tenir compte des fluctuations de puissance pendant le processus de mesure. Généralement, cette valeur est de $\pm 2\%$ de la valeur moyenne. Pour une puissance de 150 W, compte tenu de la répartition uniforme de la puissance dans les limites supérieures et inférieures, cela conduit à une incertitude de 0,6 %.

Nous estimons maintenant l'incertitude de la droite d'étalonnage. Pour cela nous allons utiliser la formule de propagation d'incertitude [79] :

$$\sigma_f^2 = \sum_i (\partial_f(i) \cdot \sigma_i)^2 + \sum_i \sum_j 2 \cdot \partial_f(i) \cdot \partial_f(j) \cdot \sigma_i \cdot \sigma_j \cdot \text{Corr}(i, j) \quad (54)$$

avec σ_f l'écart-type de la fonction, i et j ses différentes variables et $\partial_f(i)$ la dérivée partielle de la fonction f par rapport à la variable i . Pour l'expression du coefficient directeur de la droite d'étalonnage $a = a_{ER} = \frac{P_e A_{ref}}{S_e}$, on obtient donc en considérant que seuls P_e et S_e sont corrélés et que leur coefficient de corrélation peut être arrondi à 1 :

$$\sigma_a^2 = a^2 \left[\sigma_{R_{S_e}}^2 + \sigma_{R_{P_e}}^2 + \sigma_{R_{A_{ref}}}^2 - 2\sigma_{R_{S_e}} \sigma_{R_{P_e}} \right] \quad (55)$$

avec S_e le signal LIT mesuré pendant l'étalonnage sur l'échantillon de référence d'absorption A_e avec la puissance P_e . Par substitution on peut obtenir l'incertitude relative :

$$\sigma_{Ra}^2 = \left(\frac{\sigma_a}{a} \right)^2 = \sigma_{R_{S_e}}^2 + \sigma_{R_{P_e}}^2 + \sigma_{R_{A_{ref}}}^2 - 2\sigma_{R_{S_e}} \sigma_{R_{P_e}} \quad (56)$$

Notons que le modèle linéaire que nous utilisons présente déjà une incertitude d'ajustement donnée par Matlab de $\sigma_{R_{fit}} = 0,6 \%$ que nous ajoutons à la somme quadratique.

En reprenant les résultats ci-dessus pour le signal et la puissance laser pour les incertitudes S_e ($\sigma_{R_{S_e}} = 8 \%$) et P_e ($\sigma_{R_{P_e}} = 0,6 \%$), et l'écart-type relatif mesuré par répétabilité sur l'échantillon de référence ($\sigma_{R_{A_{ref}}} = 2,7 \%$), on obtient une incertitude relative sur $\sigma_{R_a} = 7,9 \%$.

Pour calculer l'incertitude totale sur la mesure de l'absorption A, nous allons utiliser la même loi de propagation utilisée dans l'équation 54 avec l'équation de notre instrument donné à l'équation 43. On obtient alors pour l'incertitude sur A :

$$\sigma_A^2 = \frac{1}{P^2} \left[S^2 \sigma_a^2 + a^2 \sigma_S^2 + \left(\frac{aS}{P} \right)^2 \sigma_P^2 \right] - 2 \cdot \frac{a^2 S}{P} \cdot \sigma_S \cdot \sigma_P \quad (57)$$

Ce qui donne pour l'incertitude relative sur l'absorption :

$$\begin{aligned} \sigma_{R_A}^2 = \left(\frac{\sigma_A}{A} \right)^2 &= \sigma_{R_a}^2 + (\sigma_{R_S} - \sigma_{R_P})^2 \\ &= 7,9 \%^2 + (8 \% - 0,6 \%)^2 \\ &\approx 11 \% \end{aligned} \quad (58)$$

On obtient donc une incertitude relative sur l'absorption de 11 %. Il est important de garder à l'esprit que les incertitudes relatives prises dans ce calcul pour le signal, le laser et l'étalonnage ont été calculées avec les plus grandes variations constatées. Par exemple la répétabilité du signal qui est une des sources d'erreur la plus importante, baisse avec le signal. Or les signaux obtenus lors de l'étalonnage sont grands, et l'incertitude sur le signal dans ce cas est probablement plus faible que les 8 % utilisés dans ce calcul. En revanche, dans le cas de mesures réalisées sur des signaux inférieurs à 0,8 a.u. il est possible que l'incertitude soit sous-évaluée car la répétabilité n'a pas été mesurée avec de tels niveaux de signal. Ainsi pour rester dans le cadre de cette étude il est préférable de maximiser le signal.

4. Conclusion

Les simulations thermiques montrent que les résolutions de l'équation de la chaleur dans le cas de milieux semi infinis ne sont valables que pour des faisceaux dont le diamètre est petit devant les dimensions du milieu. Nous nous sommes alors tournés vers des modèles aux éléments finis mais dont l'exactitude reste encore à quantifier par des expériences. Ces simulations nous permettent néanmoins d'estimer l'ordre de grandeur des températures atteintes lors de l'irradiation laser d'un échantillon absorbant. Pour mesurer de telles élévations températures à l'aide de la thermographie, il est nécessaire d'améliorer le rapport signal sur bruit de la mesure du signal thermique. Cela nous amène d'un coté à utiliser une détection synchrone afin de réduire le bruit de mesure et d'un autre à concevoir un montage dit « multi-passages », inspiré des systèmes lasers *thin disk* permettant la multiplication de la puissance absorbée par l'échantillon et donc de l'élévation de température. Le comportement du signal LIT a été étudié et montre que le rapport signal sur bruit dépend principalement du nombre de périodes enregistrées. La fréquence elle n'impacte pas ce rapport. Deux méthodes d'étalonnage sont proposées : l'étalonnage de la température et la mesure du signal LIT sur un échantillon de référence. Ces deux méthodes nous donnent une mesure de l'absorption absolue avec un écart de 50 %. Nous avons préféré utiliser la seconde méthode qui nous permet une détermination complète du budget d'incertitude. La caractérisation métrologique du montage a permis de quantifier les différentes sources d'incertitude pour aboutir à une incertitude relative sur la mesure d'absorption de 11 %. Nous utilisons aussi une méthode de détermination de l'émissivité effective afin de corriger le signal LIT mesuré.

Chapitre III : Étude de l'absorption des couches minces optiques diélectriques

« Rien ne vaut la recherche lorsqu'on veut trouver quelque chose (c'est du moins ce que Thorin dit aux jeunes nains). Quand on cherche, on trouve généralement quelque chose, mais ce n'est pas toujours exactement ce qu'on voulait. Ce fut ce qui se passa en l'occurrence. »

- J.R.R Tolkien (1892-1973), Bilbo le hobbit

Ce chapitre s'intéresse à l'étude de l'absorption dans des couches minces optiques déposées suivant différents procédés. Ces développements ont été réalisés dans les infrastructures de dépôts de couches minces présentes à l'Institut Fresnel et chez CILAS et ont bénéficié du savoir-faire et des connaissances de leurs équipes. La technologie majoritairement utilisée est celle connue sous le nom d'évaporation par canon à électrons assistée par plasma (plasma-assisted electron beam) fournie par les machines Bühler SYRUSpro disponibles à l'Institut Fresnel (SYRUSpro 710) et chez CILAS (SYRUSpro 1350). La technologie de pulvérisation cathodique magnétron assistée par plasma (Bühler Helios) disponible à l'Institut Fresnel a également été mise en œuvre. À l'aide de ces trois machines, nous avons eu l'opportunité de réaliser un grand nombre d'échantillons et d'étudier le niveau d'absorption des composants produits par ce type de machine. Nous avons pour objectifs de réactualiser et parfaire la connaissance sur le comportement de ces composants soumis à des lasers de forte puissance continue et ainsi d'améliorer à terme la qualité des composants produits. Après avoir mis en place, caractérisé et étalonné un nouvel instrument de mesure, l'absorption de couches et d'empilements réalisés par ces techniques de dépôts a pu être étudié. Cela nous a d'abord permis de situer l'absorption obtenue par rapport à la littérature présentée au début de ce chapitre, puis, dans un second temps, d'étudier les voies d'amélioration qui s'offrent à nous.

Notons que les travaux présentés ici n'abordent pas les questions de synthèse d'empilements (design) qui représentent une voie possible pour le contrôle de l'absorption. Nous ne nous intéressons pas non plus aux effets induits par un échauffement que sont les déformations de front d'onde (variation de la phase de sortie) et le décalage de la fonction spectrale (variation d'amplitude de sortie) qui sont fonction de l'empilement considéré et pas seulement des matériaux. Ces thématiques pourront être abordées lors d'études ultérieures.

Ce chapitre présente différentes activités. Nous débutons ce travail par une étude des monocouches : évolution théorique de l'absorption avec l'épaisseur et l'indice, étude de l'absorption des substrats et de leur préparation, ainsi que de l'absorption de monocouches de différents matériaux. Dans un second temps nous montrons et caractérisons comment les capacités de cartographie thermique de la LIT permettent une détection des macro-défauts locaux d'absorption induits par le procédé de dépôt. Ensuite, nous étudions les voies de diminution de l'absorption des composants optiques, tant par l'optimisation de nos procédés de dépôt que par la réalisation de recuits. Enfin, nous présentons quelques mesures préliminaires effectuées sur des empilements de couches, comme perspective de continuité de ces travaux.

1. Relation entre absorption et propriétés physiques de monocouches

Les couches minces optiques sont le siège d'interférences qu'il est important de prendre en compte pour interpréter les résultats de mesure d'absorption. Afin de comprendre comment l'absorption dépend de l'épaisseur, de l'indice réel et du coefficient d'extinction, nous avons cherché à étudier l'évolution de l'absorption en fonction des paramètres de la couche pour pouvoir relier nos mesures au coefficient d'extinction. Précisons que nous nous intéressons ici à l'absorption intrinsèque du matériau, et que l'absorption aux interfaces n'est pas considérée à ce stade. La Figure 56 illustre la géométrie du cas considéré.

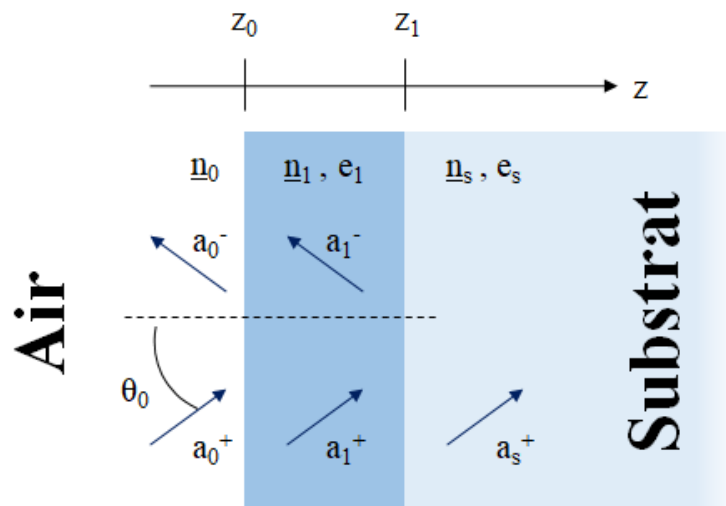


Figure 56 : Schéma d'une monocouche. Les notations sont ici identiques à la Figure 1 au début de ce manuscrit et avec $\underline{n} = n' + n''i$.

L'absorption dans une couche mince d'indice n et d'épaisseur e , s'obtient en intégrant les pertes dans l'épaisseur de la couche et en normalisant par le flux incident, ce qui peut s'écrire sous la forme [80] :

$$A_1 = \frac{4\pi}{\lambda} \frac{n_1' n_1''}{N_0} \int_{z=0}^e \frac{|\vec{E}(z)|^2}{|a_0^+|^2} dz \quad (59)$$

Avec N_0 l'indice effectif, a_0^+ l'amplitude du champ électrique tangentiel de l'onde incidente, $\vec{E}(z)$ le champ électrique total dans la couche à la profondeur z .

L'équation obtenue ne se simplifie pas aisément comme on peut le voir dans la résolution présentée dans l'annexe A. Certains de ses termes comportent une variation sinusoïdale de l'absorption. L'absorption dans une seule couche peut aussi s'écrire [81] :

$$A_1 = \frac{4\pi}{a_0^+} \left(\frac{e}{\lambda}\right) \left(\frac{n_1' n_1''}{N_0}\right) \langle |\vec{E}_1(z)|^2 \rangle \quad (60)$$

Où $\langle |\vec{E}_1(z)|^2 \rangle$ est la moyenne du champ électrique total dans la couche. On voit donc que pour une épaisseur donnée, dans le cas d'un faible coefficient d'extinction ($n_1' \gg n_1''$) de sorte que l'indice de réfraction influe peu sur la répartition du champ dans la couche, l'absorption évoluera linéairement avec le coefficient d'extinction n_1'' .

Un programme Matlab de simulation du champ dans une monocouche est utilisé, basé sur une résolution analytique pour étudier le comportement de ces monocouches. On simule (Figure 57), l'absorption d'une monocouche d'indice $n' = 2,5$ et de coefficient d'extinction de $n'' = 5 \times 10^{-2}$ en fonction de l'épaisseur. On constate que l'évolution de l'absorption présente une périodicité avec l'épaisseur, et que cette périodicité est en phase avec la transmission. Ce comportement s'explique par la présence d'interférences dans les couches qui produisent une distribution périodique du champ électrique selon l'épaisseur de celles-ci. L'intégration de ce champ va donc suivre elle aussi une dépendance périodique au fur et à mesure que l'épaisseur de la couche croît. De plus, plus le contraste d'indice entre la couche et le substrat sera fort, plus l'amplitude de modulation du champ électrique dans la couche le sera aussi (Figure 58) et plus l'amplitude de la composante périodique de la variation de l'absorption avec l'épaisseur sera importante.

Par ailleurs, plus la couche est épaisse, plus l'amplitude des ondes progressives et rétrogrades diminue du fait de l'absorption. La diminution associée de l'amplitude de la modulation du champ électrique dans la couche produit donc une diminution de l'amplitude de la composante sinusoïdale de la variation de l'absorption avec l'épaisseur. En d'autres termes, pour des épaisseurs importantes ou pour des coefficients d'extinction importants, le comportement interférentiel de la couche devient négligeable et le niveau d'absorption sature puisque la

couche devient opaque optiquement. C'est donc la grandeur $n'' \times e$ qu'il faut considérer et qui doit être comparée à la longueur d'onde. Les interférences créent des modulations de l'absorption avec l'épaisseur, que nous devons considérer dans nos analyses, ces modulations disparaissent progressivement lorsque la couche devient opaque, c'est-à-dire pour $n'' \times e$ de l'ordre de la longueur d'onde.

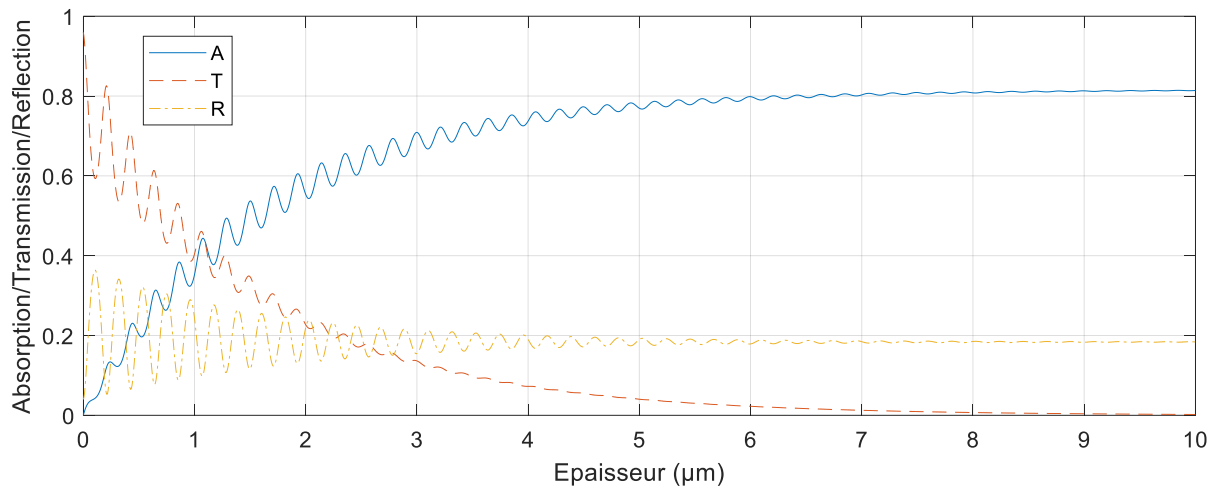


Figure 57 : Évolution de l'absorption, de la réflexion et de la transmission dans une monocouche en fonction de l'épaisseur de la monocouche. Cette simulation est réalisée à 1070 nm pour une monocouche d'indice de réfraction $n'_{couche} = 2,5$, un coefficient d'extinction $n''_{couche} = 5 \cdot 10^{-2}$ et un substrat d'indice $n'_{substrat} = 1,5$.

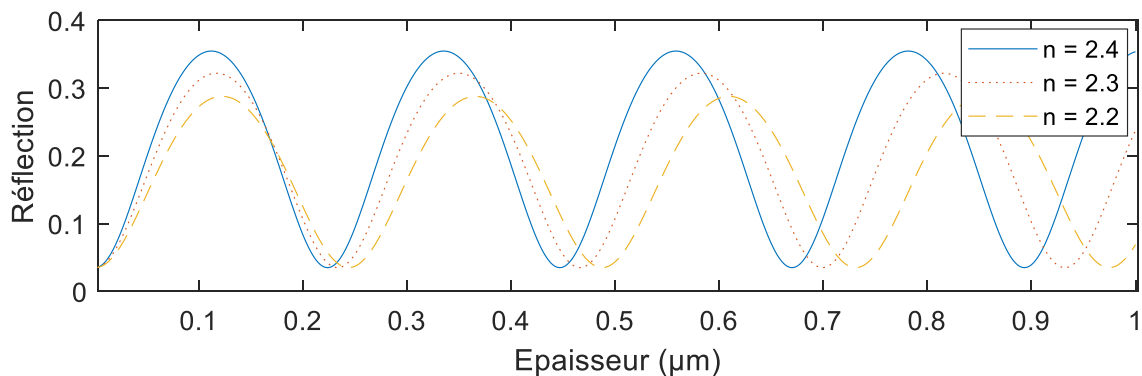


Figure 58 : Évolution de la réflexion d'une monocouche en fonction l'épaisseur et de l'indice de réfraction.

Sur des échantillons fabriqués à l'aide de matériaux diélectriques transparents, la valeur de n'' est très inférieure à 10^{-4} pour une couche de qualité optique. On voit donc que pour des

épaisseurs de l'ordre de quelques centaines de nanomètres à quelques microns, $n'' \times e$ est inférieur au nanomètre, on se situe donc dans le domaine où les effets interférentiels entraînent une modulation de l'absorption en fonction de l'épaisseur. Pour illustrer les amplitudes attendues dans le cas des couches que nous allons réaliser, nous avons représenté sur la Figure 59 l'évolution de l'absorption en fonction de l'épaisseur de la couche pour différentes valeurs du coefficient d'extinction (de 10^{-6} à 10^{-4}), dans le cas d'une couche de SiO_2 déposée sur un substrat de silice tous deux d'indice $n' = 1,46$ (i.e. sans phénomène d'interférence). On y représente aussi le cas d'une couche de Nb_2O_5 d'indice $n' = 2,3$ déposée sur un substrat de silice d'indice $n' = 1,46$ (i.e. en présence d'interférences). Que quel que soit l'indice de réfraction de la couche, on observe que l'absorption augmente avec la même pente moyenne. En revanche on constate que, sans oscillation, l'augmentation est monotone alors qu'en présence d'interférences, une modulation sinusoïdale vient s'ajouter. On notera que la droite correspondant à l'absorption dans une couche mince de silice ne correspond pas à la valeur médiane de la variation d'absorption avec l'épaisseur d'une couche de matériau haut indice puisque les distributions de champ électrique dans le matériau sont différentes. Par ailleurs, les variations de l'absorption autour de cette droite médiane sont de 30 % pour les coefficients d'extinction simulés.

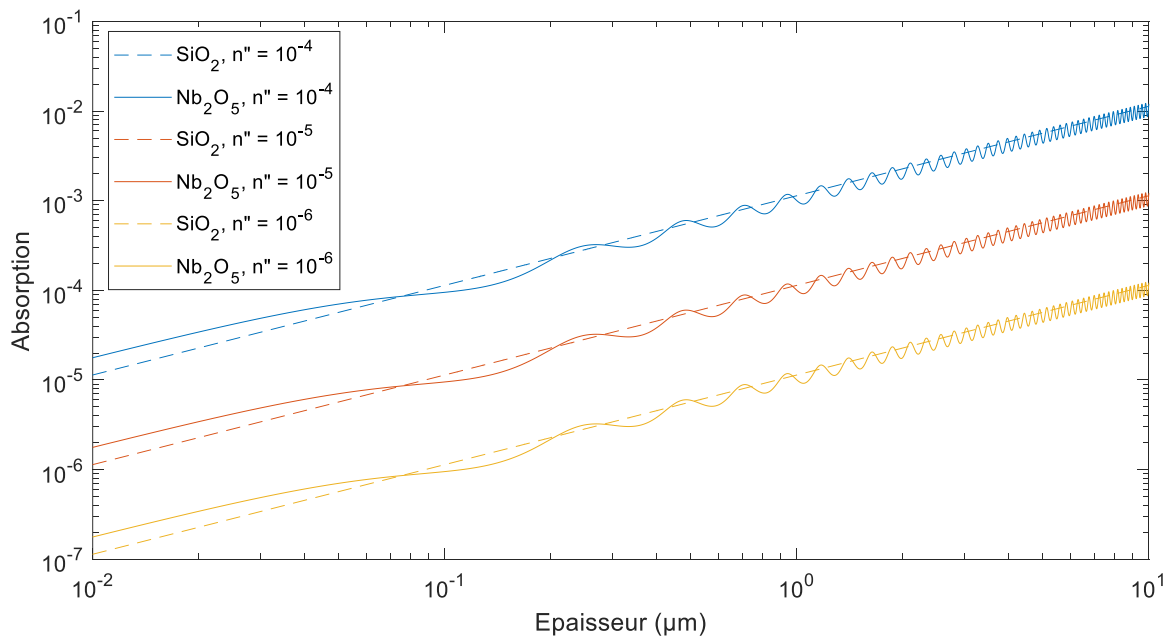


Figure 59 : Évolution de l'absorption dans une monocouche de SiO_2 ($n' = 1,46$) ou de Nb_2O_5 ($n' = 2,3$) déposée sur un substrat de silice en fonction de l'épaisseur et pour différentes valeurs du coefficient d'extinction.

2. Étude de l'absorption des substrats

Préalablement à la mesure d'absorption dans des monocouches, il est nécessaire d'étudier les substrats sur lesquels ces dépôts sont effectués et les sources potentielles d'absorption induite sur ces substrats.

2.1. Nature, préparation et propriétés des substrats

Les substrats habituellement utilisés à l'Institut Fresnel pour la réalisation de couches minces optiques soumis à de fort flux lumineux sont constitués de silice fondue (fused silica). La silice fondue est un composé amorphe fabriqué en utilisant deux méthodes de base, en chauffant des particules de silice pour les faire fondre, ou par synthèse chimique [82]. Ce matériau possède des caractéristiques notables vis-à-vis de l'irradiation laser continue :

- Une faible diffusivité thermique ($10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$),
- Un faible coefficient de dilatation (10^{-7} K^{-1})
- Une haute température de fusion ($>1000 \text{ }^\circ\text{C}$)
- Une faible absorption optique de $\sim 300 \text{ nm}$ à $\sim 2,5 \text{ } \mu\text{m}$ ($<10^{-5} \text{ cm}^{-1}$) [83]

D'autres propriétés mécaniques (dureté, module d'Young) ou électriques (résistivité), en font un matériau aux multiples applications. La silice fondue synthétique (ou silice UV), a de meilleures propriétés optiques dans l'ultraviolet, mais voit l'apparition de bandes d'absorption dans l'infrarouge dues à la présence d'ions hydroxyles (OH^-) contrairement à la silice obtenue par fusion (ou silice IR) [13,84]. Cette absorption des OH^- est due à l'excitation vibrationnelle et rotationnelle de ces molécules. En conséquence, il existe une corrélation entre le taux d' OH^- dans la silice et l'absorption dans l'infrarouge [83].

Avant leur utilisation pour un dépôt, les substrats sont nettoyés dans une machine (TCA90 – SIEM). Cette machine est composée de 8 compartiments. Deux baignoires, l'une basique et l'autre acide servent à nettoyer les substrats des contaminations organiques. Entre chaque baignoire, le substrat est rincé à l'eau de ville. L'ensemble de ces baignoires est débordant et le porte-échantillon est déplacé de bas en haut durant le lavage pour créer un flux laminaire sur la surface du substrat. Par ailleurs, ces baignoires sont accompagnés d'ultrasons afin de nettoyer le substrat de ses contaminations particulaires. Deux baignoires d'eau dé-ionisée permettent de rincer le substrat

et d'éviter les traces de calcaire possibles. Enfin, un dernier compartiment vide de tout liquide et chauffé à 70 °C permet le séchage.

L'instrument LIT est utilisé pour mesurer un jeu de substrat de silice (et un borosilicate) constitué de deux silices UV (Corning - 7980 et Heraeus - Suprasil 3001) et deux silices IR (Corning - 7979 et Heraeus - Infrasil). Le substrat de borosilicate BK7 est ajouté aux échantillons afin d'ajouter un point de comparaison. Le Tableau 8 présente les mesures d'absorption réalisées sur ces différents échantillons.

Tableau 8 : Mesure d'absorption sur les différents substrats étudiés.

	Absorption (ppm)
BK7	200 – 300
7979	< 0,3
7980	2 ± 0,2
Infrasil	14 ± 1,5
Suprasil	8 ± 0,9

L'Institut Fresnel dispose d'un mesureur de pertes de type « cavity ring down » (CRD). La CRD est une technique de mesure des faibles pertes (de l'ordre de quelques ppm) basée sur la mesure de la décroissance d'un signal dans une cavité optique. Le principe de fonctionnement et les caractéristiques de notre instrument sont présentés en annexe B. Les pertes dans l'optique étant égales à la somme de l'absorption et de la diffusion, cette mesure nous permet de déduire le niveau de diffusion des mesures d'absorption par LIT. Notre CRD est un appareil commercial (LossPro, NovaWave, USA) permettant des mesures à différentes longueurs d'onde : 1064, 532 et 355 nm. On peut donner une valeur de diffusion autour de 50 ppm pour les substrats de Corning 7980 qui seront majoritairement utilisés dans la suite. Cette diffusion peut être influencée par le polissage ou la propreté de surface des échantillons. La CRD a régulièrement été utilisée dans ce travail pour offrir un ordre de grandeur de la diffusion à côté des résultats de mesure d'absorption.

2.2. Effet de la source plasma sur l'absorption des substrats

Le fonctionnement des machines de dépôts est présenté dans le Chapitre 1. Ce sont des machines complexes, avec de multiples paramètres à contrôler et dont la mise en œuvre optimale nécessite de nombreuses optimisations. Toutefois on peut résumer la structure et le fonctionnement de base de la machine comme : une chambre sous vide (entre 10^{-7} et 10^{-5} mbar) contenant un creuset avec le matériau à évaporer (ou à pulvériser) face auquel est placé un porte-substrat. Lors du dépôt, une assistance plasma ou ionique est généralement utilisée pour apporter de l'énergie aux matériaux déposés pendant leur évaporation et densifier ainsi les couches. On peut voir ces trois éléments sur la photo (Figure 60) de l'intérieur de la machine Bühler SYRUSpro 710 de l'Institut Fresnel. Dans le cas de cette machine, cette assistance, appelée APS (Advanced Plasma Source), est apportée par une source plasma dont le principe est présenté sur la Figure 61 [85].

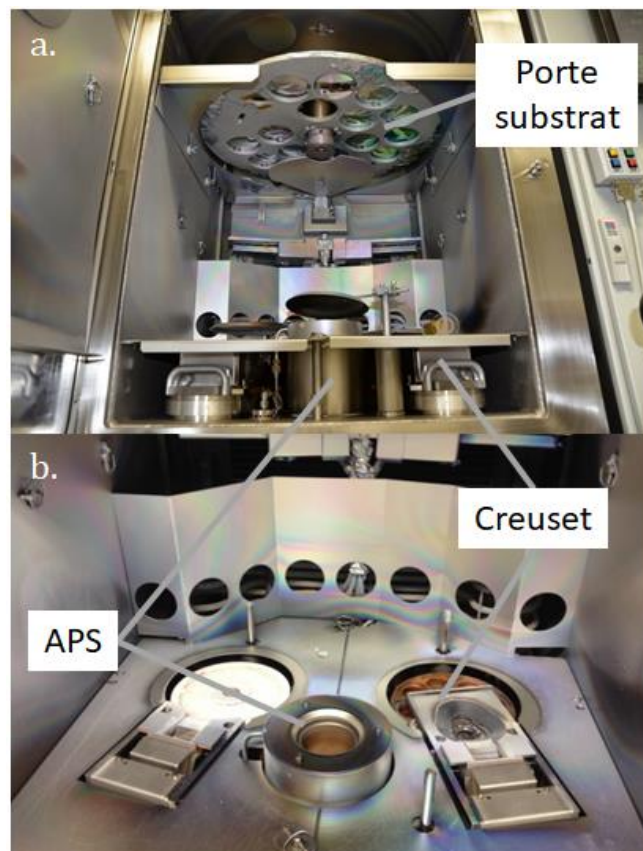


Figure 60 : Photo de l'intérieur de la machine de dépôt SYRUSpro présente à l'Institut Fresnel. Sur la photo en contre-plongée (a.), on peut voir le porte substrat et sur la vue en plongée (b.) les creuset et l'APS.

La pièce principale de l'APS est la cathode en LaB_6 placée au centre d'un tube en cuivre (anode) dans lequel un gaz (Ar ou $\text{Ar} + \text{O}_2$) est injecté. Quand cette cathode est chauffée, il est possible de générer et d'accélérer des électrons (discharge and bias voltage) qui vont ainsi ioniser le gaz présent dans le tube et produire un plasma en présence d'un champ magnétique généré autour de l'anode. En ajustant les différents paramètres il est ainsi possible de contrôler la puissance et la distribution spatiale du plasma.

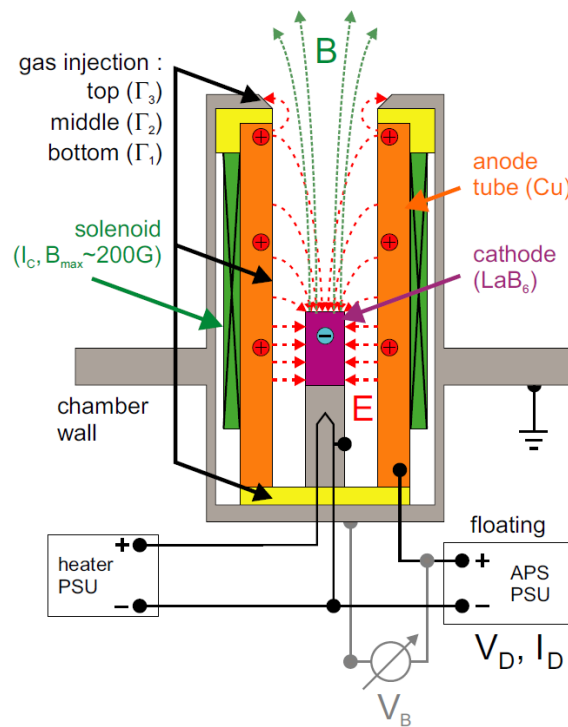


Figure 61 : Schéma d'une APS [85].

Ces paramètres sont :

- Le débit des gaz introduits.
- La puissance de chauffe de la cathode.
- Le courant dans la bobine.
- La tension (discharge voltage) et le courant de décharge qui correspondent à la puissance appliquée entre l'anode et la cathode.

Il est à noter que l'APS étant isolée, on parle aussi souvent de la tension de polarisation (bias voltage) qui est la différence de potentiel entre l'anode et la terre et qui peut être différente de la tension de décharge.

L'obtention d'un plasma nécessite des étapes de préparation préliminaires au dépôt. La première étape est une étape de chauffe de la cathode durant laquelle il se produit une désorption des contaminants introduits lors de la remise à l'air de la chambre. Cela se traduit par différents pics d'augmentation de la pression dans la chambre associés à différentes espèces de contaminants. Cette étape de 300 s est suivie par une mise en route progressive de l'APS avec tout d'abord une tension de décharge limitée entre l'anode et la cathode. Durant cette phase, un obturateur placé au-dessus de la source plasma isole les substrats à déposer de cette dernière. Vient ensuite une étape généralement appelée « etching » associée à une augmentation des paramètres de l'APS jusqu'à des valeurs identiques à celles utilisées pendant le dépôt mais en présence d'argon seulement (i.e. sans oxygène). Cette nouvelle étape de 300 s se fait obturateur ouvert et permet de stabiliser la source avec ces paramètres, mais permet aussi de :

- Nettoyer la surface des substrats des contaminants particuliers qui pourraient subsister après le nettoyage.
- D'ioniser la surface et d'ainsi améliorer l'adhérence des couches.

Dans sa configuration standard, l'APS présente une tension de polarisation de 120 V, un courant de décharge de 55 A et un courant dans la bobine de 1,1 A. L'oxygène est introduit dans le tube avec un flux de 25 cm³/min (sccm).

Cette opération est habituellement considérée comme sans conséquence négative sur les performances du dépôt. Nous avons donc vérifié que cela était également vrai du point de vue de l'absorption. Nous avons donc réalisé un cycle de préparation de la machine sur un substrat de silice fondue Corning 7980 jusqu'à la fin de l'étape d'etching. Le substrat a ensuite été remis à l'air et une mesure de l'absorption par LIT et de pertes par CRD ont été réalisées. On obtient alors une absorption de 161 ± 18 ppm et une diffusion de 312 ± 25 ppm. De tels résultats représentent une augmentation de deux ordres de grandeur pour l'absorption (1,6 ppm d'absorption) et d'un ordre pour la diffusion (33 ppm de diffusion) par rapport aux mesures effectuées sur un substrat propre. Des mesures ont aussi été faites à l'aide spectrophotomètre Perkin-Elmer Lambda 1050. Les mesures dans l'infrarouge ne montrent aucune différence avant et après l'etching (les variations sont bien en dessous du seuil de sensibilité de l'instrument). En revanche dans l'ultraviolet, on constate une baisse de la transmission avec le temps durant lequel on expose le substrat au plasma (Figure 62).

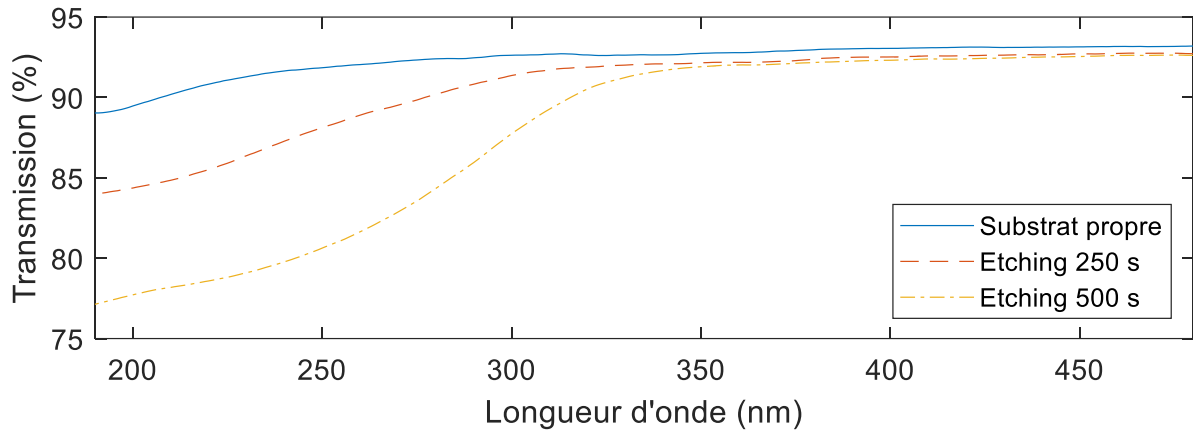


Figure 62 : Spectre d'une silice fondue pour différent temps de préparation.

Nous n'avons pas été en mesure de déterminer l'origine précise de cette augmentation. Néanmoins, la littérature mentionne différentes sources possibles comme la pulvérisation préférentielle des atomes d'oxygène par les ions argon [86], la création de centres colorés ou la potentielle inclusion d'ions argon à la surface de l'échantillon [87].

Ce problème d'augmentation de l'absorption avant tout dépôt peut sembler dans un premier temps un problème majeur. Cependant, comme nous le verrons dans la partie suivante, cet effet semble disparaître avec le dépôt des couches puisque l'absorption mesurée dans les couches est un ordre de grandeur au-dessous de celle obtenue après etching. Pour expliquer cette diminution, nous avons alors posé l'hypothèse que l'augmentation de la température de l'échantillon au cours du dépôt (entre 80 et 130°C) pouvait mener à une réduction de cette absorption (l'APS est connue pour être un procédé froid). Pour valider cette hypothèse, le même etching a été réalisé sur le même type de substrat, mais celui-ci a été maintenu à 80°C pendant 40 min ensuite. L'absorption redescend alors à $6,8 \pm 0,8$ ppm et 266 ± 25 ppm de diffusion. Ces mesures sont synthétisées dans la Figure 63. Alors que la diffusion reste relativement élevée, l'absorption induite par l'APS est effectivement bien annihilée par le traitement thermique.

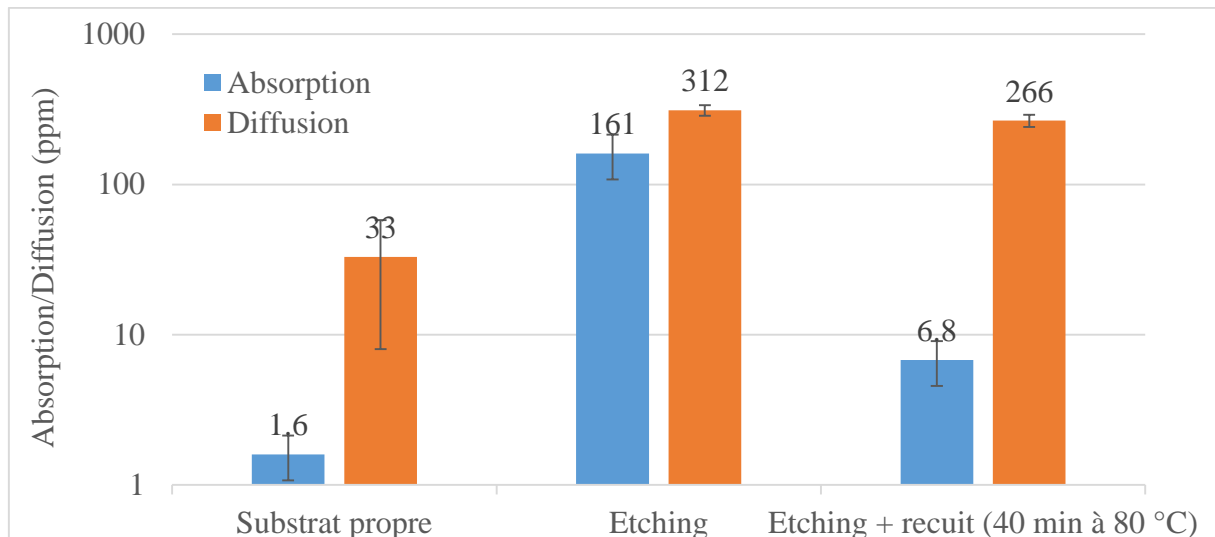


Figure 63 : Evolution de l'absorption et de la diffusion lors de la préparation du substrat.

3. Étude de l'absorption de monocouches diélectriques

3.1. Variation de l'absorption lors d'un dépôt

Nous avons tout d'abord étudié les fluctuations de l'absorption mesurées sur différents échantillons déposés simultanément. Des monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm ont été déposées sur des substrats de silice fondue. Ils ont été placés sur un même rayon du porte-substrat afin d'obtenir les conditions de dépôt les plus proches les unes des autres. Des mesures LIT et CRD ont ensuite été effectuées. Les résultats pour les 11 échantillons fabriqués sont présentés sur les Figure 64 et Figure 65. On constate des valeurs d'absorption entre les différents échantillons, comprises entre 13 et 24 ppm, montrant que l'ordre de grandeur mesuré sur un échantillon est représentatif des autres. Ces fluctuations de l'absorption peuvent très probablement être expliquées par la contamination locale de la couche par des particules. La diffusion mesurée par CRD est elle dans la gamme 100-200 ppm.

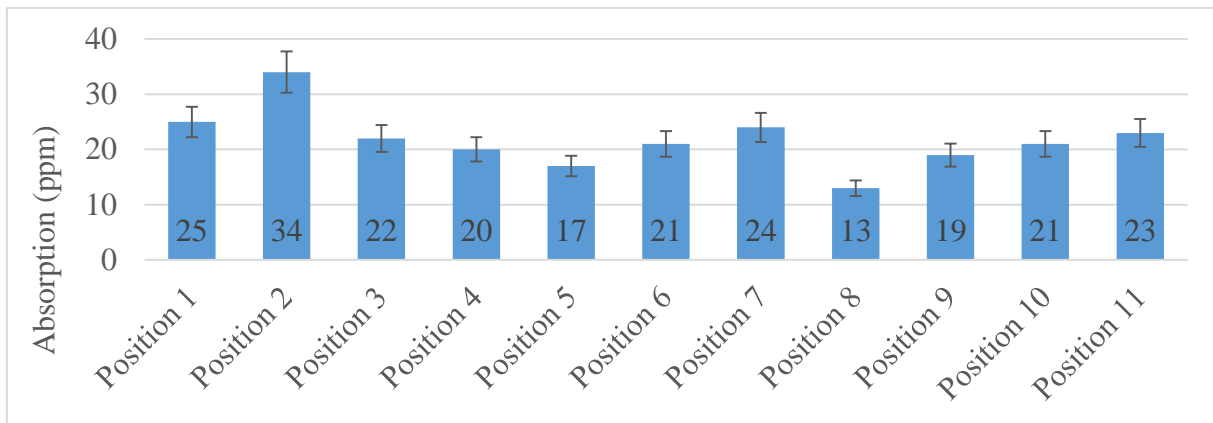


Figure 64 : Absorptions mesurées par LIT d'échantillons monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm déposés en même temps.

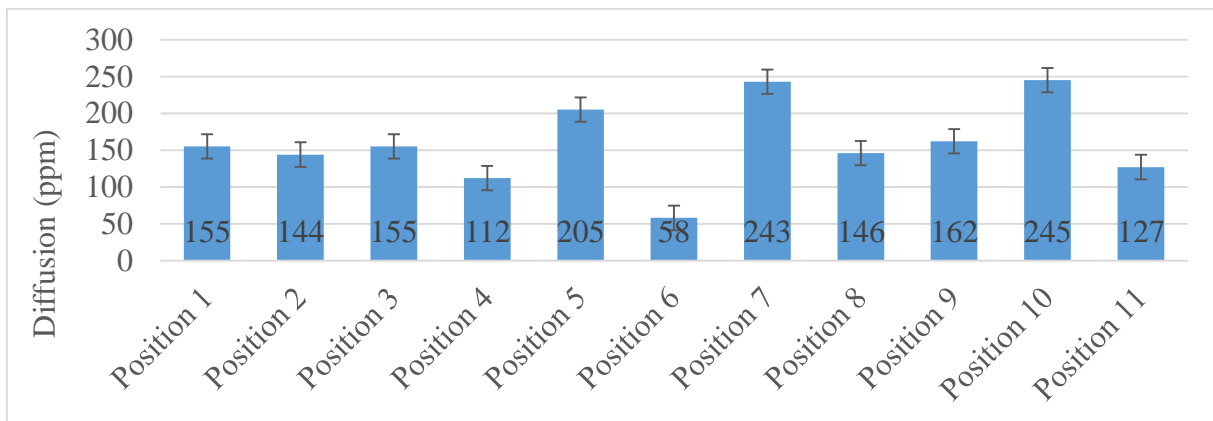


Figure 65 : Diffusions mesurées par CRD d'échantillons monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm déposés en même temps.

3.2. Variation de l'absorption entre dépôts successifs

Nous avons ensuite étudié les fluctuations de l'absorption d'un dépôt à l'autre. Six expérimentations consécutives de dépôts ont été réalisées avec des paramètres et des conditions nominale-ment identiques, en accordant une attention particulière à la propreté des différentes parties de la machine de dépôt (obturbateurs, boucliers, anode APS...). Des mesures LIT et CRD ont été effectuées sur chaque échantillon, et les valeurs mesurées sont présentées sur les Figure 66 et Figure 67.

Des fluctuations plus importantes sont observées (d'environ un facteur 3) par rapport aux échantillons fabriqués au cours du même dépôt, mais ces valeurs restent dans le même ordre de grandeur. Ces fluctuations supplémentaires peuvent être facilement expliquées par la

répétabilité imparfaite des conditions expérimentales, comme la quantité de matière dans le creuset, l'état légèrement différent du matériau après la pré-fusion dans le creuset, la préparation et la propreté du tube anodique de l'Advanced Plasma Source (APS). La diffusion présente des valeurs jusqu'à deux fois supérieures à celles du premier essai, ce qui peut s'expliquer par une contamination par des particules.

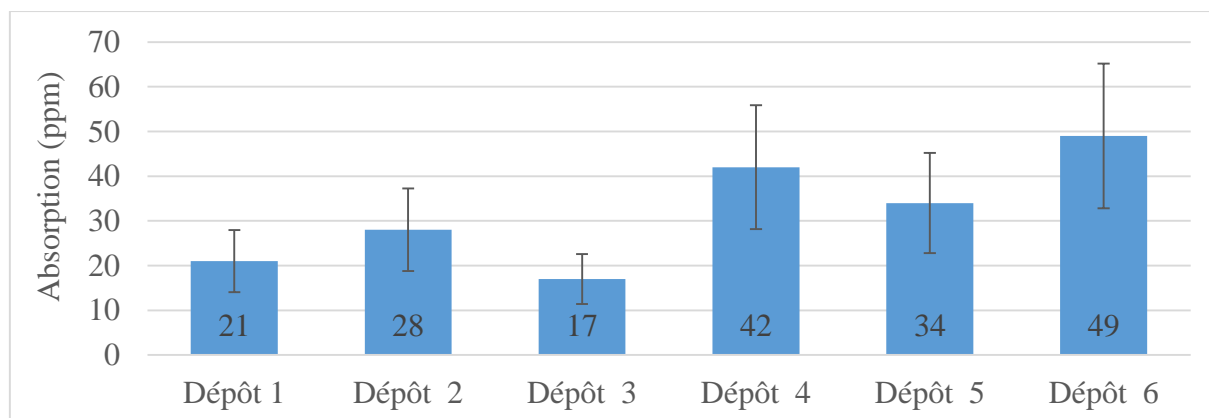


Figure 66 : Absorptions mesurées par LIT d'échantillons monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm fabriqués lors de dépôts consécutifs. Le résultat du dépôt 1 est la valeur moyenne des résultats indiqués dans le Figure 64.

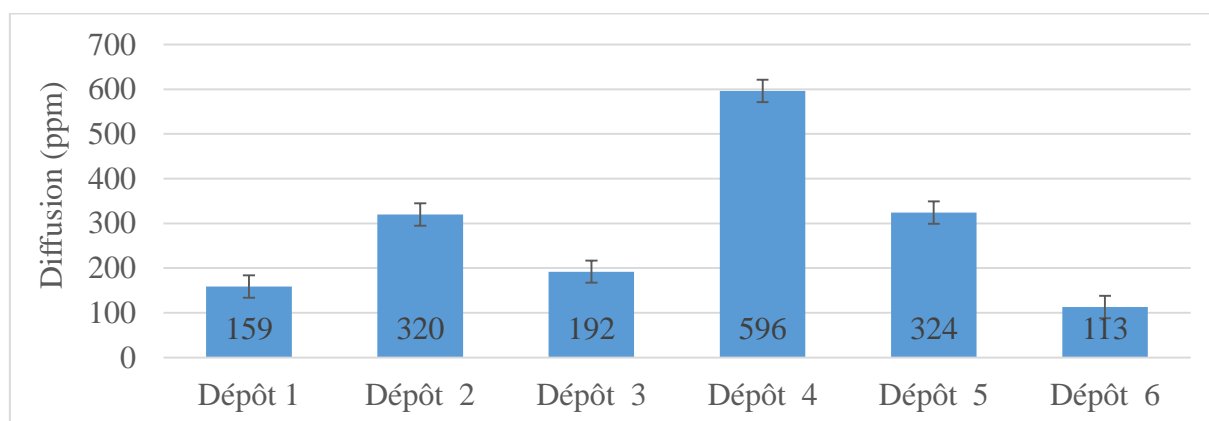


Figure 67 : Diffusions mesurées par CRD d'échantillons monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm fabriqués lors de différents dépôts consécutifs. Le résultat du dépôt 1 est la valeur moyenne des résultats indiqués dans le Figure 65.

3.3. Absorption de couches d'oxydes métalliques.

De manière classique, l'industrie et la recherche dans le domaine des couches minces optiques utilisent des matériaux oxydes pour les applications dans le visible ou le proche infrarouge. Parmi ces matériaux on peut notamment citer : HfO_2 , Ta_2O_5 , TiO_2 , Nb_2O_5 pour les matériaux haut indice et SiO_2 pour les matériaux bas indice. Cette liste est en réalité plus importante (ZrO_2 ...), mais nous l'avons restreinte aux matériaux disponibles de façon standard à l'Institut Fresnel. Nous avons donc étudié l'absorption de ces matériaux en couches minces. Deux séries d'échantillons présentant une couche d'une épaisseur de 300 et 600 nm déposée sur substrat de silice ont été produites. Les paramètres de dépôt sont ceux optimisés au sein de l'équipe couches minces optiques et permettant d'obtenir des couches homogènes et avec des paramètres optiques comparables à la littérature [88]. Pour les couches à base de matériaux haut-indice, les vitesses de dépôt étaient de l'ordre de 0,25 nm/s tandis que pour la silice, la vitesse était de 0,5 nm/s. L'absorption des échantillons produits est mesurée à l'aide de la LIT et le logiciel de simulation de couches minces Open Filters a été utilisé pour retrouver le coefficient d'extinction n'' connaissant l'épaisseur des couches. Pour ce faire, nous avons simulé, pour un matériau à une épaisseur donnée, la variation d'absorption en fonction du coefficient d'extinction (Figure 68). On obtient une dépendance linéaire comme suggéré par l'équation 60, dans le cas de faible absorption.

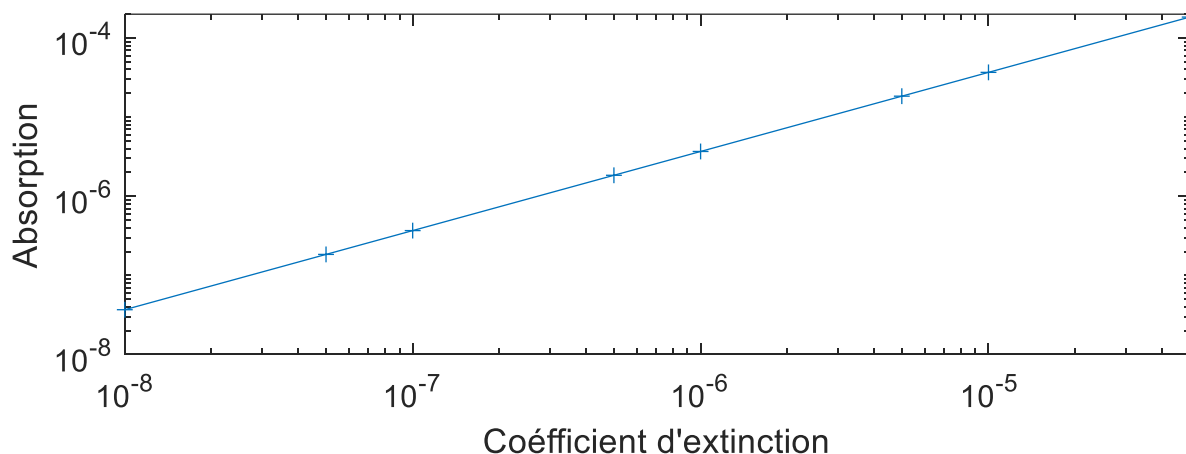


Figure 68 : Évolution de l'absorption en fonction du coefficient d'extinction simulée pour un indice de réfraction de 1,88 (HfO_2) et une épaisseur de 300 nm.

On peut alors aisément déduire pour chaque matériau le coefficient d'extinction à la longueur d'onde d'irradiation à partir des mesures d'absorption. Les valeurs d'absorption et du coefficient d'extinction mesurées sur chacun des échantillons fabriqués sont rapportées dans le Tableau 9. Il est à noter que cette approche pose comme hypothèse que l'ensemble de l'absorption vient de la couche et non de l'interface.

Tableau 9 : Absorption mesurée sur des monocouches de HfO_2 , Ta_2O_5 , TiO_2 et Nb_2O_5 réalisées par dépôt par faisceau d'électrons assisté par plasma et pour différentes épaisseurs (300 et 600 nm).

	Absorption A (ppm)		Coef. d'extinction n''	
	300 nm	600 nm	300 nm	600 nm
HfO_2	18 ± 2	29 ± 3	$4,76 \times 10^{-06}$	$3,98 \times 10^{-06}$
Ta_2O_5	$2,4 \pm 0,3$	18 ± 2	$6,54 \times 10^{-07}$	$2,89 \times 10^{-06}$
TiO_2	27 ± 3	33 ± 4	$8,39 \times 10^{-06}$	$5,99 \times 10^{-06}$
Nb_2O_5	21 ± 2	21 ± 2	$5,66 \times 10^{-06}$	$3,75 \times 10^{-06}$
SiO_2	$5,1 \pm 1$	$7,6 \pm 1$	$1,45 \times 10^{-06}$	$1,08 \times 10^{-06}$

Tout d'abord, nous pouvons remarquer que l'absorption maximale mesurée dans tous les échantillons ne dépasse pas ~ 30 ppm. Tous les échantillons d'une épaisseur de 600 nm présentent une absorption proche ou supérieure à celle des échantillons fabriqués avec le même matériau, mais d'une épaisseur de 300 nm.

Le coefficient d'extinction calculé à partir de l'absorption mesurée varie donc fortement avec l'épaisseur. Comme expliqué plus haut, ce calcul des coefficients d'extinction s'appuie sur l'hypothèse que l'absorption mesurée est due à l'absorption intrinsèque de la couche. Or l'absorption peut être également créée par des défauts propres aux interfaces. Par ailleurs, ces interfaces correspondent à des utilisations transitoires de la machine. Par exemple, lorsque le dépôt d'une couche débute, l'obturateur de l'assistance ionique n'est ouvert que quelques secondes après l'ouverture de l'obturateur du creuset. Il y a donc au début du dépôt un moment pendant lequel le dépôt de la couche est réalisé sans assistance ionique. Ainsi, dans le cas d'une absorption de surface, il serait important de pouvoir discerner l'absorption venant de la couche de celle venant des interfaces. Le montage LIT n'est pas en mesure de réaliser cela de manière directe, mais par mesure et analyse d'échantillons d'épaisseurs différentes, il serait possible

d'en faire une détermination indirecte. En considérant que l'absorption totale est la somme de l'absorption dans la couche et aux interfaces, il serait possible de remonter à la répartition de l'absorption entre couches et interfaces.

Cependant, les conclusions préliminaires suivantes peuvent être tirées :

- Les couches de SiO₂ présentent une très faible absorption dans le proche IR et constituent donc un matériau à faible indice de réfraction intéressant pour les applications laser continu.

- Les couches de Ta₂O₅ semblent être le matériau à indice de réfraction élevé avec la plus faible absorption. Bien que ces résultats ne puissent pas être généralisés, ils tendent à montrer qu'avec notre procédé de dépôt, des filtres en couches minces peuvent être produits avec de faibles effets thermiques induits par laser.

- Les couches de TiO₂, le matériau avec l'indice de réfraction le plus élevé à la longueur d'onde considérée (2,3 à 1,07 μm) [89], montrent la plus grande absorption parmi les échantillons mesurés.

- Les autres matériaux (HfO₂ et Nb₂O₅) ont le même niveau d'absorption à 10 % près.

Si l'on compare ces valeurs aux meilleures valeurs rapportées dans le Chapitre 1, on constate que :

- Le HfO₂ est comparable à la littérature même s'il est environ 2 fois plus absorbant pour les mesures effectuées dans cette thèse ($4,4 \times 10^{-6}$) que dans la littérature ($1,9 \times 10^{-6}$).

- Le coefficient d'extinction du Ta₂O₅ rapporté dans la littérature ($2,1 \times 10^{-7}$) est un ordre de grandeur en dessous de la mesure pour la couche à 600 nm ($2,89 \times 10^{-6}$).

- Le même écart que pour Ta₂O₅ est constaté sur du TiO₂ (littérature à $1,1 \times 10^{-7}$).

- Le Nb₂O₅ est environ 5 fois plus absorbant que dans la littérature (1×10^{-6}).

- Enfin le SiO₂ est environ 3 fois plus absorbant que dans la littérature (4×10^{-7}).

Par conséquent, cette comparaison montre que pour certains matériaux comme le HfO₂ ou le SiO₂, les valeurs sont du même ordre de grandeur que les meilleures valeurs reportées dans la littérature alors pour le Nb₂O₅ ou le TiO₂, il serait nécessaire d'optimiser les paramètres de fabrication de couches afin de diminuer cette absorption.

4. Imagerie d'absorption pour la détection de défauts

Un avantage de la technique LIT est qu'étant basée sur de l'imagerie, dans la configuration qui a été implémentée, elle permet de réaliser des cartographies de l'absorption. Ces cartographies permettent de déterminer si l'absorption est uniforme sur toute la surface de l'échantillon. Comme expliqué dans le Chapitre 2, pour mesurer l'absorption intrinsèque de nos échantillons, il est alors nécessaire de séparer sur les images LIT l'absorption provenant de macro-défauts absorbants de l'absorption intrinsèque. Dans le cas où ces défauts absorbent significativement plus que le matériau de la couche lui-même, ils peuvent biaiser la valeur d'absorption intrinsèque mesurée. Cependant, cette sensibilité de la technique aux défauts peut aussi être utilisée pour cartographier l'absorption extrinsèque de l'échantillon. Avec le montage déjà présenté (Cf. Chapitre 2 - 2.3), la densité de ces défauts en fonction de la technique de dépôt peut déjà être analysée. Deux jeux d'échantillons composés de monocouches de SiO_2 déposées par évaporation par canons à électrons (Bühler SYRUSpro) et par pulvérisation cathodique magnétron (Bühler HELIOS) avec différentes épaisseurs ont été mesurés par LIT (Figure 69). Les défauts apparaissent comme des zones de l'image avec un signal plus haut que le niveau de signal moyen et ne respectant pas la forme gaussienne attendue du signal. Ici on peut constater que la pulvérisation magnétron crée plus de défauts que l'évaporation ce qui a déjà été constaté par d'autres moyens dans la littérature [90].

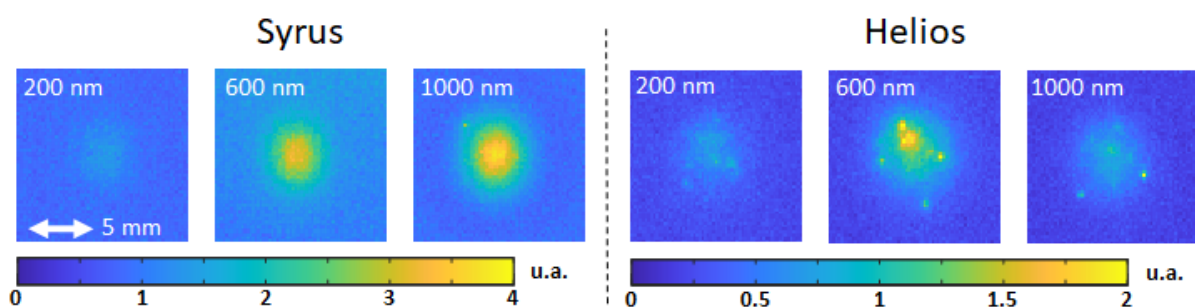


Figure 69 : Images LIT de monocouches de SiO_2 réalisées par pulvérisation magnétron assistée par plasma (HELIOS) et dépôt par évaporation par canons à électrons assistée par plasma (SYRUSpro). Le dépôt HELIOS montre plus de défauts locaux que le dépôt SYRUSpro.

Si une première analyse peut, comme nous venons de le montrer, être conduite avec le montage multi-passages, celui-ci est cependant limité pour réaliser de réelles cartographies de défauts.

En effet pour réaliser nos passages multiples nous devons avoir un faisceau peu divergent, ce qui est obtenu avec un faisceau gaussien large. La forme gaussienne du faisceau rend une stratégie de balayage de l'échantillon plus compliquée, car les bords du faisceau contiennent suffisamment d'énergie pour échauffer (voire endommager) le porte échantillon. Cela crée de plus une source externe d'échauffement à l'échantillon qui contribue au signal thermique global mesuré (le porte échantillon étant dans le champ de la caméra thermique) et peut chauffer par conduction l'échantillon biaisant ainsi la mesure. La solution retenue pour tester la cartographie des macro-défauts d'absorption est alors de créer un faisceau homogène en intensité (top-hat) qui limitera l'énergie résiduelle à l'extérieur du faisceau et permettra d'illuminer toute la zone d'intérêt avec la même densité de puissance. Un montage spécifique a donc été développé pour cette application.

4.1. Montage de thermographie synchrone top-hat pour la caractérisation de défauts.

L'idée avec ce montage est de partir d'un laser multimodes focalisé afin d'obtenir un faisceau top-hat au point focal puis d'imager le point focal sur l'échantillon avec un grandissement approprié. Le montage réalisé est présenté sur la Figure 70. Comme le faisceau est fortement divergent, la configuration multi-passages est ici abandonnée. Le faisceau laser multimodes est focalisé par une lentille de focale 1 m puis le plan focal (où le faisceau est top-hat) est imagé avec un doublet de courte focale 30 mm. Le faisceau est alors réfléchi jusqu'au porte-échantillon par deux miroirs derrière lesquels on place des dissipateurs pour absorber le faisceau transmis résiduel ($\approx 1\%$). Le porte échantillon est placé de telle sorte que l'on récupère la partie transmise et réfléchi du faisceau laser par l'échantillon, qui sont ensuite dirigées vers un dissipateur.

Le laser utilisé est un laser continu multimodes (SPI redPOWER® QUBE) avec une puissance allant de 200 W à 2 kW à une longueur d'onde de 1070 nm. La modulation est obtenue de la même façon que pour le montage multi-passages, le laser étant construit par SPI, il utilise les mêmes protocoles de contrôle. La lentille de focale 1m est une lentille UVFS plan-convexe avec un traitement antireflet sur les deux faces de 50 mm de diamètre (EKSMA) et le doublet est une optique pour forte puissance laser à 1064 nm (ACA254-030-1064 - Thorlabs). Les deux miroirs de renvoi sont des miroirs de diamètre 50 mm UVFS à 1064 nm (EKSMA).

Le dissipateur de fin de ligne est un calorimètre refroidi (UP55C-2.5KW-HD-INT–Gentec EO) afin de tenir les hautes puissances. Le tout est monté dans un système de cage (Optical Cage System - Thorlabs) afin de faciliter l’alignement. La caméra thermique est reprise du précédent montage. Elle est associée au logiciel LIT que nous avons développé qui permet de synchroniser la modulation du laser et la prise d’image par la caméra thermique.

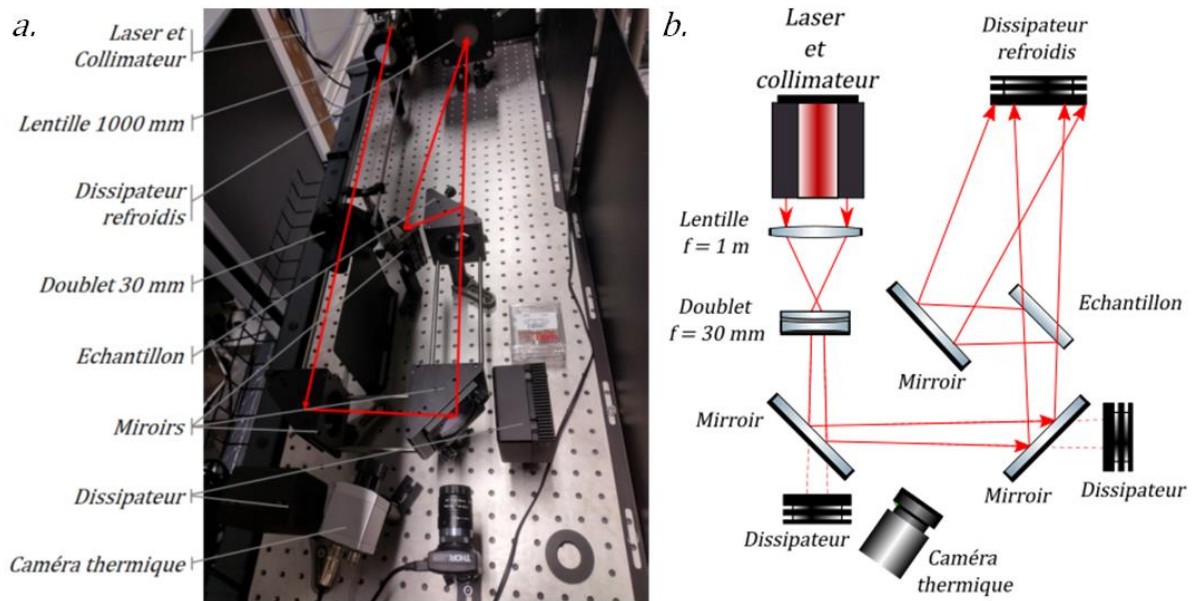


Figure 70 : Montage de cartographie de macro-défauts. Sur la partie gauche la photo du montage (a.) et sur la partie droite le schéma optique (b.). Sur le schéma, deux rayons sont dessinés pour représenter la divergence du faisceau top-hat.

Le faisceau top-hat a été étudié à l’aide d’un analyseur de profil (Beamage – Gentec). Le faisceau a un profil top hat sur une grande distance après le doublet. Ce top-hat présente de nombreuses irrégularités comme on peut le voir sur la Figure 71. Cependant, ne cherchant pas ici à fournir des mesures quantitatives, mais simplement une cartographie, on peut négliger l’impact ces légères inhomogénéités.

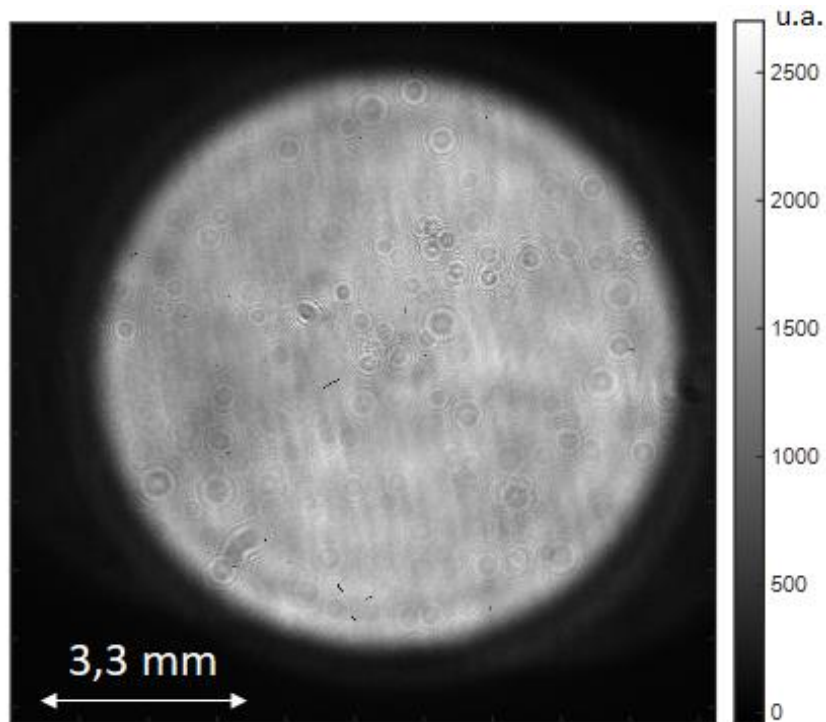


Figure 71 : Profil spatial du faisceau.

À partir du profil du faisceau nous avons mesuré le diamètre et de la largeur des bords du top-hat tels que définis sur la Figure 72 pour différentes distances du doublet. On constate sur la Figure 73 que ces deux grandeurs augmentent linéairement avec la distance au doublet et que le rapport entre les deux quantités reste constant (≈ 7). Cette propriété a, par la suite, été utilisée pour ajuster la taille de surface de l'échantillon à illuminer en choisissant la distance au doublet appropriée.

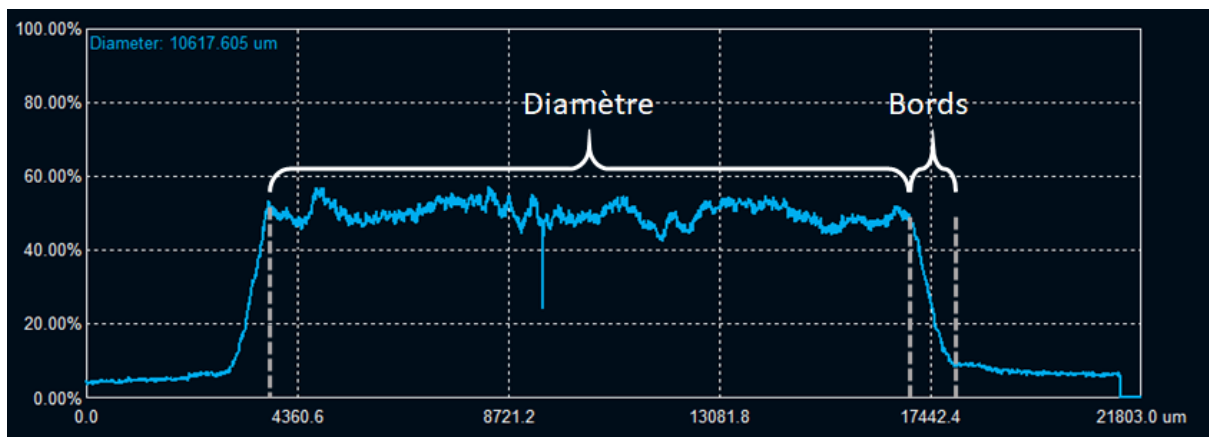


Figure 72 : Profil du faisceau top-hat mesuré à une position du doublet à 27,5 cm de la lentille.

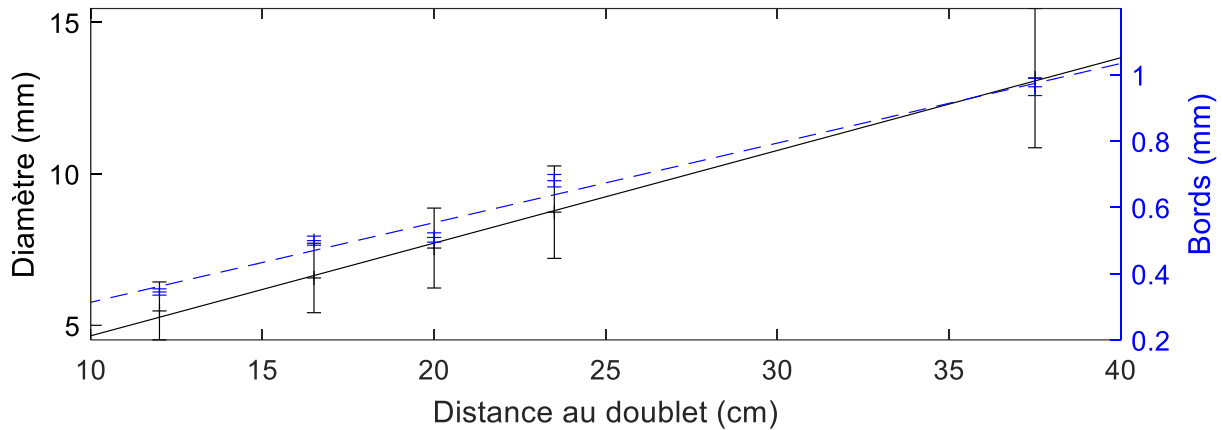


Figure 73 : Évolution du diamètre et de la largeur bords du faisceau top-hat.

4.2. Caractérisation des défauts de monocouches

Nous avons utilisé le montage précédemment décrit pour observer les défauts absorbants sur des échantillons en couches minces. Pour cela, nous avons déposé sur des substrats de silice UV de 50 mm de diamètre des monocouches de 300 nm d'épaisseur de HfO_2 (déposées à partir de HfO_2) et de Nb_2O_5 . Nous avons dans un premier temps étudié un échantillon de HfO_2 car ce type de matériau tend à présenter plus de défauts du fait de la projection de particules de HfO_2 durant l'évaporation vers la surface déposée contribuant à créer des nodules [91]. Nous avons ensuite cherché à déterminer comment les paramètres de mesures influençaient le résultat final. Le premier paramètre étudié est celui de la puissance laser utilisée. L'intensité de puissance maximale I_{max} que l'on obtient pour un faisceau gaussien de puissance moyenne P_{moy} et de waist w (à $1/e^2$) s'exprime :

$$I_{max} = 2 \frac{P_{moy}}{w^2} \quad (61)$$

Ce qui conduit dans notre cas pratique ($w = 3,375 \text{ mm}$ et $P_{moy} = 150 \text{ W}$) à une densité de puissance $I_{max} = 838 \text{ W.cm}^{-2}$. Pour atteindre une telle densité de puissance dans le cas du faisceau top-hat de 50 mm de diamètre, il faudrait une puissance laser de presque 16,5 kW pour se placer dans des conditions similaires. On peut noter cependant, comme le montre la Figure 69 présentée avant, que des défauts fortement absorbants apparaissent également sur les bords du faisceau où la densité de puissance est plus faible. Nous avons cherché à effectuer des mesures

avec le maximum de puissance, cependant nous n'avons pas dépassé 1000 W pour limiter les effets thermiques dans le montage.

Nous avons ensuite évalué le rôle de la fréquence de modulation (Figure 74). Deux fréquences ont été utilisées : une valeur standard correspondant aux précédentes mesures (0,05 Hz), et une autre valeur un ordre de grandeur au-dessus (0,5 Hz). On constate une diminution du signal de fond (qui peut être observée en moyennant la valeur des pixels d'une zone sans défaut) de 1 u.a. à 0,4 u.a sans pour autant entraîner de réduction de signal des défauts. La détection et la localisation des défauts sont ainsi plus efficaces sur les mesures effectuées à 0,5 Hz. On notera également que nous n'avons pas appliqué la procédure d'étalonnage ici, car la nature, la dimension et la position dans le dépôt des défauts n'étant pas connue, il est difficile de corréler le signal mesuré à l'absorption intrinsèque mesurée sur l'échantillon étalon. Une étude plus approfondie sur ce point serait certainement à conduire dans le futur.

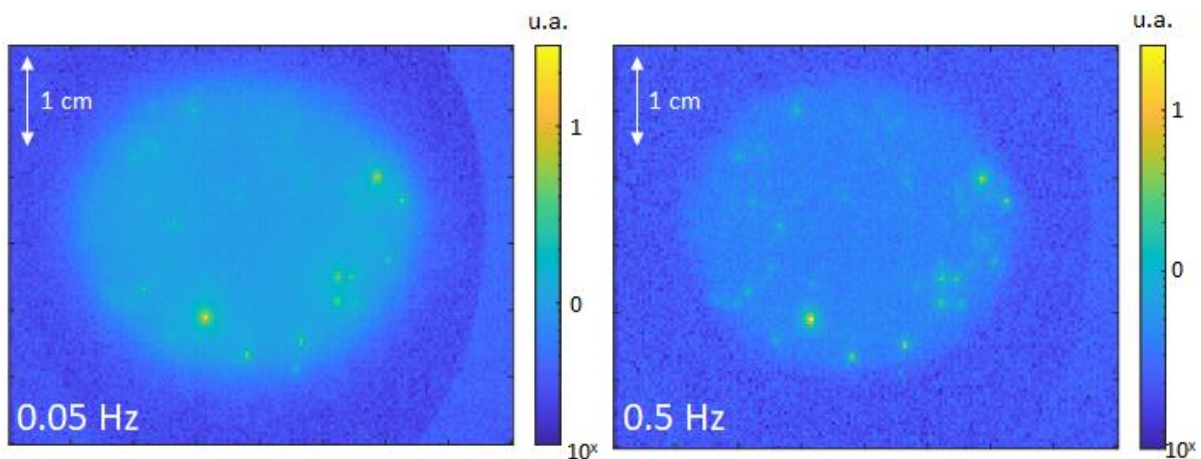


Figure 74 : Comparaison de cartographies LIT de défauts d'une monocouche de HfO_2 réalisées pour deux fréquences de modulation différentes.

Un des effets attendus de l'augmentation de fréquence de modulation est l'amélioration de la résolution spatiale de l'image. En augmentant cette fréquence, on réduit la diffusion de la chaleur dans le matériau et on réduit donc sur chaque pixel l'influence de la température des pixels proches. Pour valider cette hypothèse, nous avons réalisé une mesure similaire mais avec un objet constitué d'un défaut métallique millimétrique sur un substrat de verre (mire de résolution) présentée sur la Figure 75. Cette mire étant très absorbante, la puissance du laser a été réduite comme pour l'étalonnage en ajoutant au montage un miroir infrarouge réfléchissant

98 % et en ne conservant que la partie transmise. Le résultat de cette mesure est présenté sur la Figure 76. On constate une nette amélioration de la résolution avec l'augmentation la fréquence de modulation puisque la forme générale de la mire est mieux reconnaissable à 0,5 Hz qu'à 0,05 Hz. Toutefois aucun des détails qui permettent de quantifier la résolution ne peut être observé du fait de la faible résolution de la caméra, la résolution globale de notre technique étant au mieux de l'ordre du millimètre. Quoiqu'il en soit cette résolution ne pourra descendre en dessous des $\sim 250 \mu\text{m}/\text{pixel}$ pour un objet situé à 30 cm (distance minimum de mise au point de l'objectif) avec notre caméra thermique.



Figure 75 : Mire de résolution 1951 USAF.

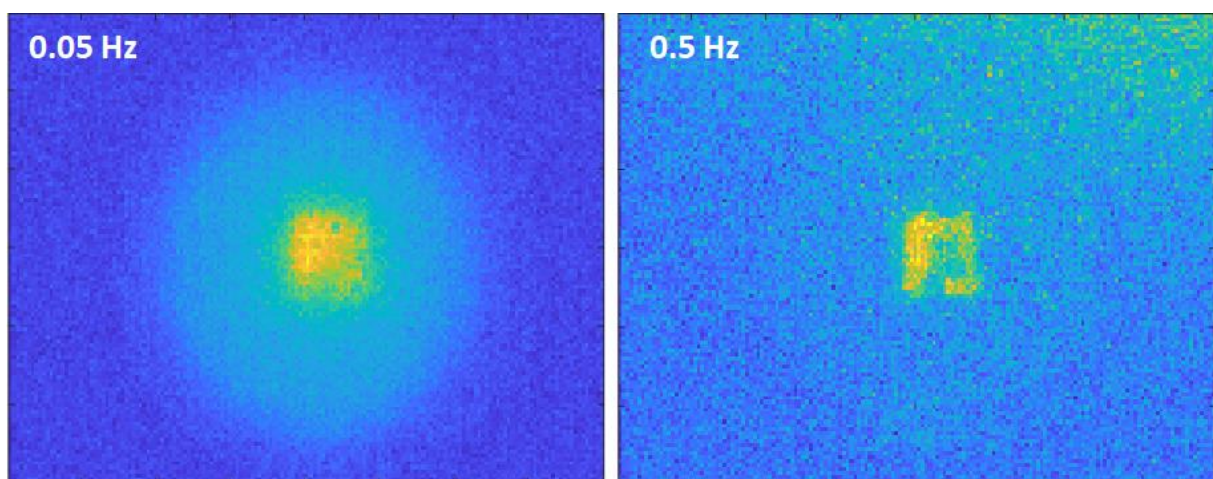


Figure 76 : Cartographie LIT de la mire 1951 USAF.

Nous avons enfin analysé le gain que peut apporter le temps d'intégration sur la qualité de la mesure. Nous avons réalisé une cartographie de l'échantillon de HfO_2 pour des temps d'intégration allant de 64 à 1024 périodes (maximum permis par la mémoire disponible sur le logiciel LIT). Les résultats sont présentés sur la Figure 77. Comme pour la mesure d'absorption, le bruit de l'image est réduit avec l'augmentation du nombre de périodes ce qui permet de mettre en valeur de façon de plus en plus nette les défauts. Toutefois, on peut voir que des mesures sur 256 périodes représentent un bon compromis entre rapport signal sur bruit et temps de mesure.

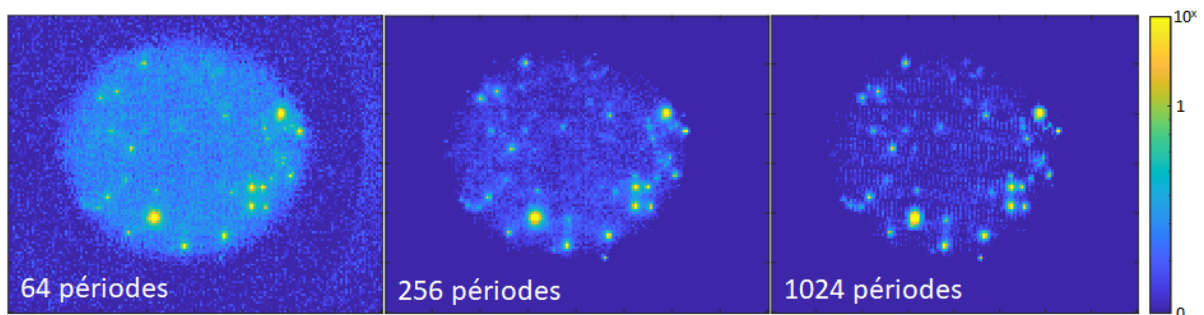


Figure 77 : Comparaison des cartographies LIT de défauts d'une monocouche de HfO_2 réalisées pour différents temps d'intégration. L'image présentée pour 256 périodes est la même que celle présentée dans la Figure 74.

Avec l'étude précédente, nous avons pu optimiser les conditions de mesures qui nous permettent de faire des cartes d'absorption avec un fort contraste au niveau des défauts. Nous avons donc mesuré dans un second temps un échantillon de Nb_2O_5 de 300 nm d'épaisseur déposé par *plasma-assisted electron beam deposition* sur 256 périodes à 1000 W de puissance laser et avec une fréquence de modulation de 0,5 Hz. La comparaison avec la cartographie réalisée sur une couche de HfO_2 dans les mêmes conditions de mesure est présentée sur la Figure 78. Sur cette figure les deux cartographies sont représentées sur la même échelle et la carte de couleur est choisie pour présenter plus de variations afin de mieux identifier les défauts. On constate que le Nb_2O_5 présente beaucoup moins de défauts. De plus, on constate sur cette image que l'essentiel des défauts se concentre sur une même zone, là où les défauts observés sur le HfO_2 semblent répartis de façon plus homogène sur la surface. Pour confirmer cette observation, il serait nécessaire de réaliser un plus grand nombre de dépôts. Il serait aussi pertinent de mener une étude sur un ensemble de matériaux habituellement utilisés dans les couches minces optiques.

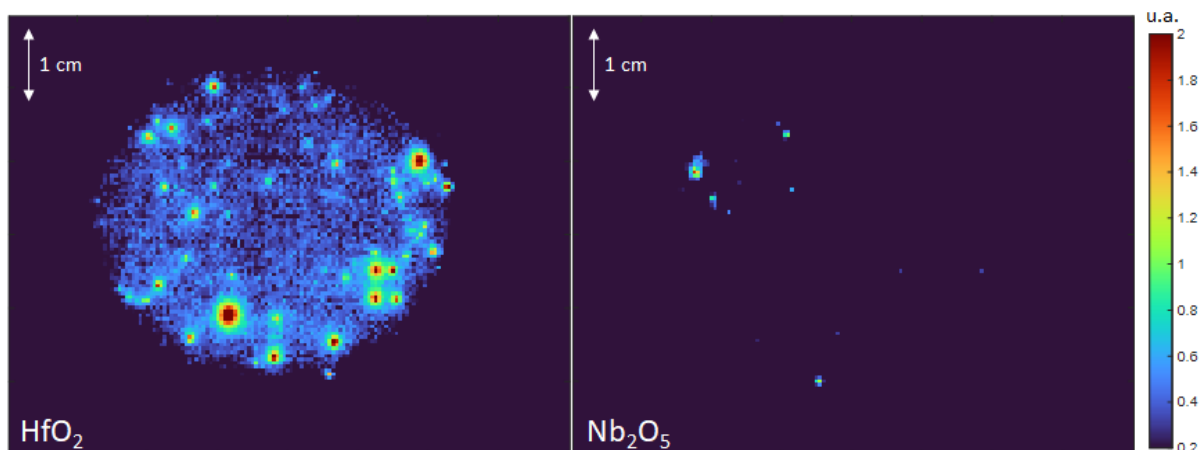


Figure 78 : Comparaison de cartographies LIT de défauts d'une monocouche de HfO_2 et de Nb_2O_5 .

Nous avons pu montrer l'utilisation possible de la LIT pour faire une cartographie de défauts d'absorption. Toutefois l'instrument ne nous fournit pas de données sur leur nature ou leur position dans l'épaisseur de la couche. La cartographie associée à une analyse dans un système de type Focused Ion Beam (FIB) permettant de creuser les couches puis de les observer au microscope électronique par la tranche pourrait aider à répondre à ces questions. Par ailleurs, cette cartographie nous indique des points chauds qui pourraient être initiateurs d'endommagement. Un laser continu focalisé pourrait être utilisé pour tester le seuil de tenue au flux laser de ces points spécifiques et le comparer à celui de zones sans défaut. La corrélation avec la diffusion de ces zones absorbantes pourrait aussi être étudiée. Enfin, à partir des connaissances obtenues sur ces défauts, des solutions pour contrôler la densité et la taille de ces défauts pourraient être explorées.

5. Optimisation des paramètres de dépôts de couches minces optiques

Le début de l'étude a présenté les valeurs d'absorption mesurées avec les paramètres standards de dépôt spécifiés par le fabricant. Nous avons voulu étudier s'il était possible de diminuer l'absorption intrinsèque en ajustant quelques-uns des différents paramètres de dépôts,

en particulier la source plasma (APS) dont nous avons déjà vu qu'elle pouvait avoir un impact important lors de l'etching.

Lors de l'utilisation de l'APS, le tube reçoit une partie du matériau déposé ce qui se traduit par l'apparition d'une couche noire sur la face interne du système. (Figure 79). Il est donc d'usage (et recommandé par le fabricant) de nettoyer après chaque dépôt le tube d'anode APS par microbillage. Il est donc intéressant de se poser la question si cette préparation a un impact sur l'absorption des couches fabriquées.

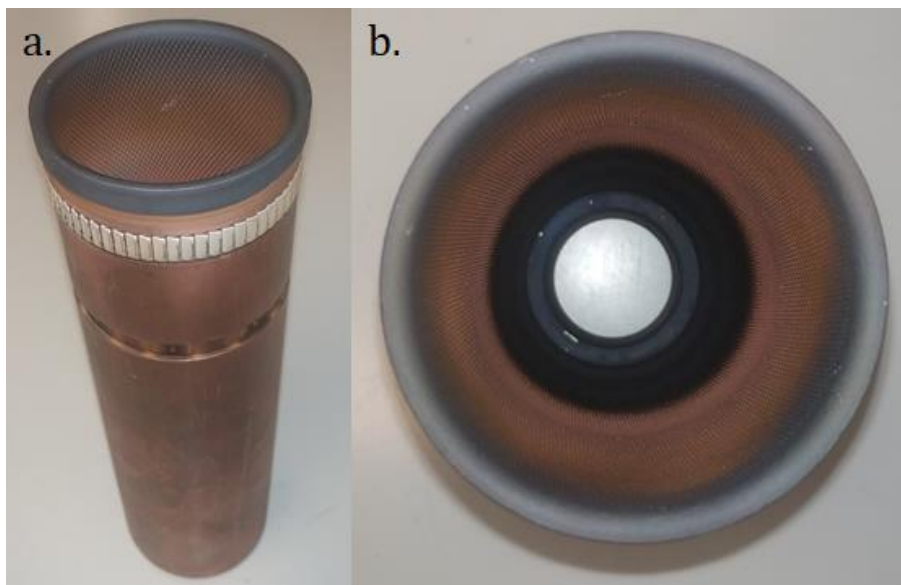


Figure 79 : Photo d'un tube APS après un dépôt. En a. une vue générale du tube et en b. la photo de l'intérieur du tube. On voit que l'extrémité du tube est noircie.

Dans l'étude de l'absorption intrinsèque de monocouches présentée en partie 3, nous avons déjà testé la répétabilité. Si l'on reprend les valeurs rapportées dans la Figure 66 et relatives à l'absorption de couches de Nb_2O_5 de 300 nm d'épaisseur, on obtient une moyenne et un écart-type de respectivement 31,8 ppm et 12,3 ppm. Nous avons donc réalisé une nouvelle série de dépôts identiques (monocouche de Nb_2O_5 de 300 nm), mais cette fois-ci en laissant le même tube APS en place pour chaque dépôt. Les résultats des mesures d'absorption réalisées sur ces dépôts sont présentés sur la Figure 80. L'absorption moyenne est alors de 39,8 ppm avec un écart-type de 15,2 ppm. On voit que ces valeurs sont comparables. De plus, on n'observe pas d'augmentation systématique de l'absorption avec le nombre de dépôts, ce qui montre que

l'état de propreté du tube anode de l'APS n'influence pas l'absorption des couches fabriquées. En revanche, le changement de tube d'anode est requis pour le bon fonctionnement de l'APS.

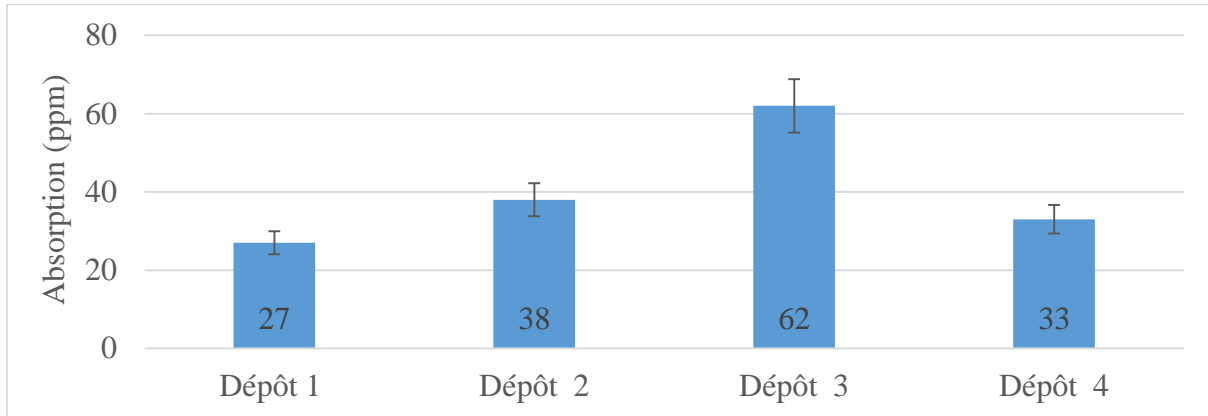


Figure 80 : Absorption mesurée par LIT d'échantillons monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm déposés lors de différents dépôts consécutifs en conservant le même tube APS.

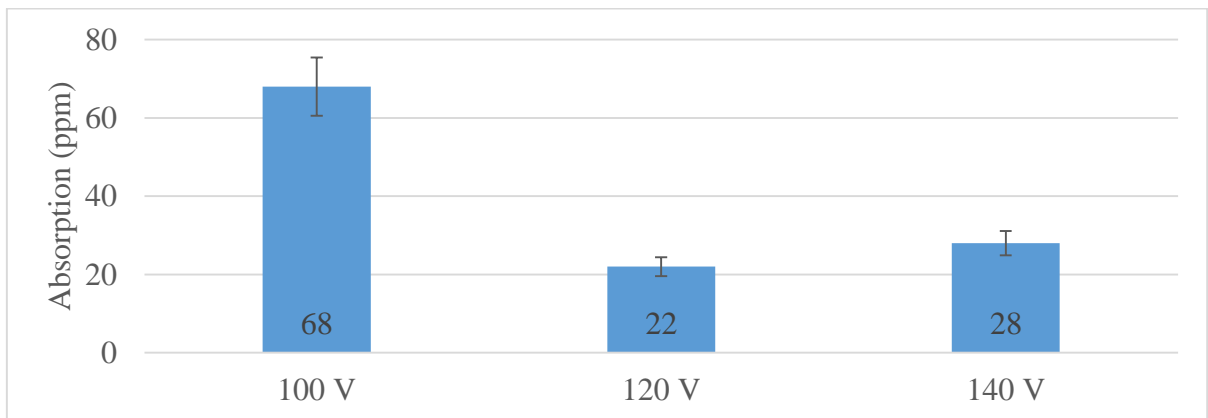


Figure 81 : Absorption mesurée par LIT d'échantillons monocouches de Nb_2O_5 de 300 nm déposés avec différentes tensions de polarisation de l'APS.

Un autre paramètre que nous avons voulu étudier est celui de la puissance de l'APS. Nous avons effectué une nouvelle série de dépôts (Nb_2O_5 – 300 nm) pour différentes tensions de polarisation. En effet, on peut montrer que cette tension est corrélée à l'énergie moyenne du bombardement ionique. Nous avons donc fait varier cette valeur entre 100 et 140 V. Comme on peut le voir sur la Figure 81, l'absorption est la plus basse pour les couches déposées avec une tension standard de 120 V. En revanche, quand la tension est diminuée à 100 V, les couches présentent une absorption presque trois fois supérieure au reste des mesures. Afin de vérifier

cette tendance, il aurait été intéressant de refaire un nouveau dépôt. Mais ces résultats montrant que la valeur standard de la tension de polarisation permet d'obtenir des couches avec la plus faible absorption, nous n'avons pas continué nos investigations.

De plus, une valeur comparable est visible dans la Figure 80 où la tension de polarisation est de 120 V. On remarque que pour ces deux mesures la densité de défauts est importante comme on peut le voir sur la Figure 82. Or il a été observé que la présence en trop grand nombre de ces défauts ou la présence trop près du centre du faisceau de défauts à fort signal pouvaient biaiser l'algorithme d'identification des défauts conduisant à une surévaluation du signal et donc de l'absorption intrinsèque. La présence de zones avec une plus grande densité surfacique de défauts est par ailleurs cohérente avec ce qui a été observé sur la cartographie de défauts du Nb₂O₅ de la Figure 78. Ainsi la valeur supérieure d'absorption peut être reliée à la présence de défauts aussi présents pour d'autres conditions expérimentales. On conclut donc que la puissance de l'APS n'influe pas sur l'absorption intrinsèque de la couche. Il est à noter que Zhu et al. sont arrivés aux mêmes conclusions en mesurant l'absorption par PTD pour diverses tensions de polarisation de l'APS sur du SiO₂ et du HfO₂ [86,92].

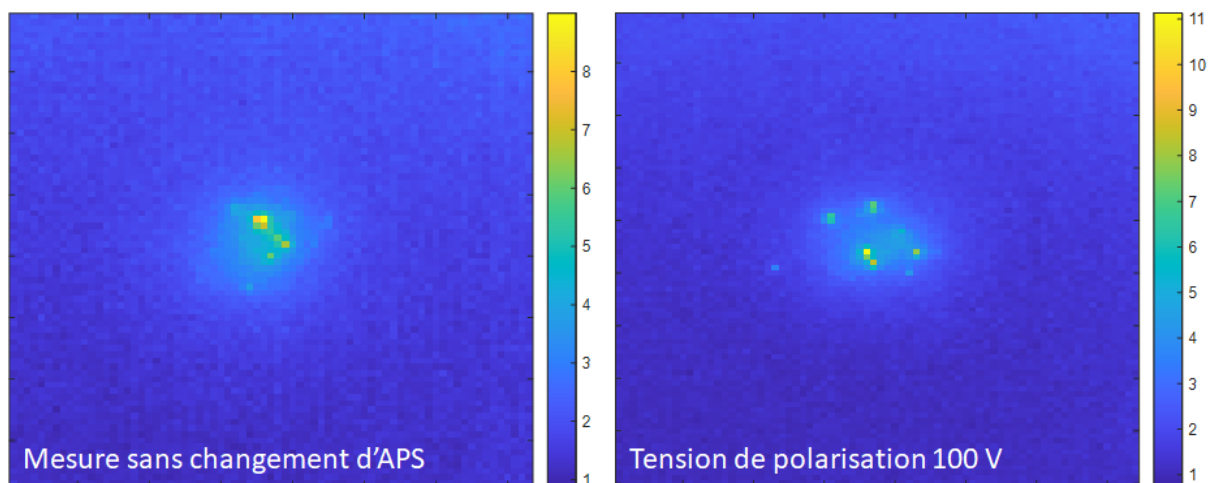


Figure 82 : Images LIT avec de nombreux défauts proches de la zone d'évaluation de l'absorption. Cette proximité peut causer des surestimations de l'absorption mesurée.

Le dernier paramètre analysé est l'influence de la quantité d'oxygène pendant le dépôt sur l'absorption des couches. L'oxygène peut tout d'abord être ajouté au niveau de l'APS. Nous avons donc cherché à augmenter le flux d'oxygène à 50 sccm (le maximum permis par la machine) ce qui représente un flux doublé par rapport aux conditions habituelles, mais les

échantillons obtenus ont montré une absorption supérieure à ceux réalisés dans les conditions standards. Cela peut s'expliquer par un mode de fonctionnement de l'APS a priori non-optimal et instable qui ne lui permet pas de jouer son rôle d'assistance. Nous avons tenté dans un second temps d'introduire de l'oxygène directement dans l'enceinte au niveau du creuset, proche du matériau évaporé, sans plus de réussite.

Au final nous ne sommes pas parvenus ici à trouver de paramètres qui, seuls, permettent de diminuer le niveau d'absorption de façon significative. Cependant aucune des variations de ces paramètres n'a été croisée avec d'autres pour effectuer un véritable plan d'expériences complet permettant d'explorer un large éventail de configurations. Par ailleurs, d'autres paramètres resteraient à étudier : l'influence du niveau de vide dans la chambre (même si au cours de ces travaux des couches ont été déposées avec différents niveaux de vide entre 10^{-7} et 10^{-5} mbar en fonction du temps de pompage de l'enceinte, la valeur d'absorption n'a pas montré de corrélation avec le niveau de vide), la préfusion des matériaux à évaporer avant le dépôt ou le matériau constitutif de certaines pièces de la machine (par exemple le shutter). L'optimisation des paramètres de dépôt est une stratégie ayant pour but de fournir des composants à l'absorption minimisée directement après dépôt. Une stratégie complémentaire consiste à post-traiter le composant pour abaisser l'absorption et c'est ce qui a été étudié par la suite.

6. Recuits de couches minces optiques diélectriques

6.1. Etude bibliographique sur les recuits

Un post-traitement usuel des optiques en couches minces est le recuit thermique. C'est un moyen très souvent utilisé et permettant de modifier la microstructure et la stœchiométrie, résultant en différents effets comme une augmentation de la densité des couches (notamment les couches déposées sans assistance ionique ou plasma) comme on peut le voir sur la Figure 83.

Sur cette même figure, on peut constater que l'augmentation de densité entraîne une augmentation d'indice. Le Tableau 10 résume la tendance d'évolution de l'indice relevée dans la littérature pour divers matériaux. Seul le Nb_2O_5 présente une diminution de l'indice après recuit et aucune réplique de ce résultat n'a été trouvée.

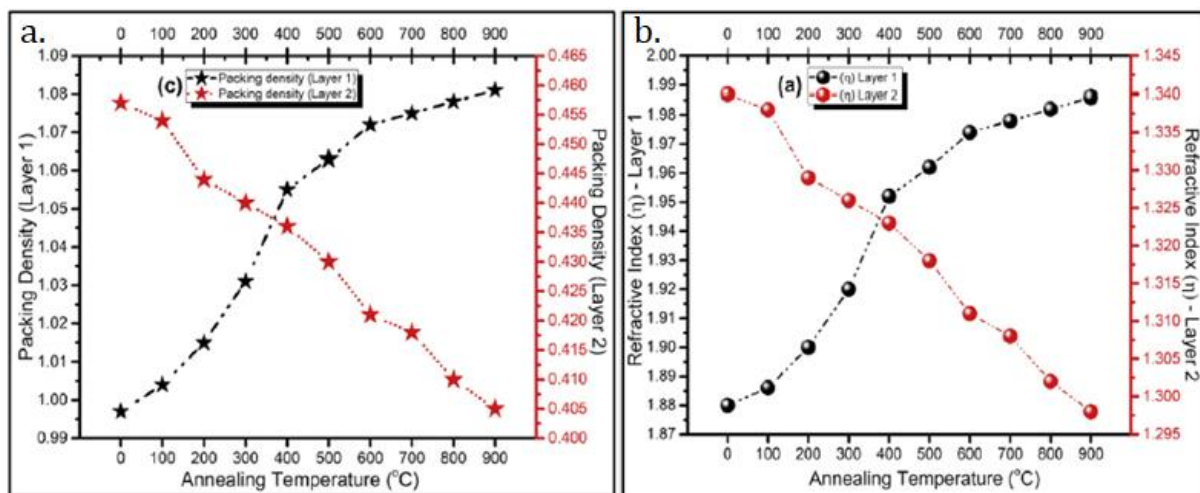


Figure 83 : Effet de la température de recuit sur une couche de HfO₂. On voit que l'évolution de la densité (a.) est corrélée à l'évolution de l'indice de réfraction (b.) [93].

Tableau 10 : Évolutions de l'indice de réfraction de couches minces suite à un recuit rapportées par la littérature.

Matériaux	Tendance de variation de l'indice n	Sources
TiO ₂	Augmente	[94,95]
	Stagne puis baisse à la cristallisation	[96,97]
HfO ₂	Augmente	[37,93]
Nb ₂ O ₅	Diminue	[98]
Ta ₂ O ₅	Augmente	[65,99]
ZrO ₂	Augmente	[100]

On constate aussi une variation d'épaisseur de couches avec les recuits. Toutefois, comme le montre le Tableau 11, ces variations semblent dépendre à la fois des matériaux et de la technologie de dépôts.

Mais dans notre cas c'est la modification du niveau d'absorption associée qui retiendra notre attention. Dans la plupart des articles, ce n'est pas l'absorption, mais les pertes (absorption + diffusion) qui sont rapportées et dans la majorité des cas, une baisse de l'absorption est visible (à l'exception de Nb₂O₅ et ZrO₂). Ces tendances observées en fonction des matériaux sont présentées dans le Tableau 12.

Tableau 11 : Évolutions de l'épaisseur de couches minces suite à un recuit rapportées par la littérature.

Matériaux	Variation d'épaisseur	Sources
TiO ₂	- 20 to - 30 nm à 400 °C	[95]
	- 10 nm à 500 °C	[101]
	- 43 nm entre 400°C et 600°C	[102]
HfO ₂	EBD : -8 nm	[37]
	IAD : -1nm à 400 °C	
ZrO ₂	+ 45 nm entre 250°C et 550°C	[103]
Ta ₂ O ₅	+ 15 à 20 nm à 600°C	[87]
	+ 4 % à 6 % à 400 °C	[97]

Tableau 12 : Évolutions de l'absorption de couches minces suite à un recuit rapportées par la littérature.

Matériaux	Tendance variation de l'absorption	Sources
TiO ₂	Baisse	[96,97,104]
HfO ₂	Baisse	[37,105,106]
Nb ₂ O ₅	Augmentation	[98]
Ta ₂ O ₅	Baisse	[2,65,99]
ZrO ₂	Augmentation	[100]
SiO ₂	Baisse	[2]

On notera par exemple l'explication donnée par Pu *et. al.* résumée dans la Figure 84 reproduite sur l'évolution de l'absorption d'un composant optique (Rugate filter Ta₂O₅/SiO₂) pour différentes températures de recuit.

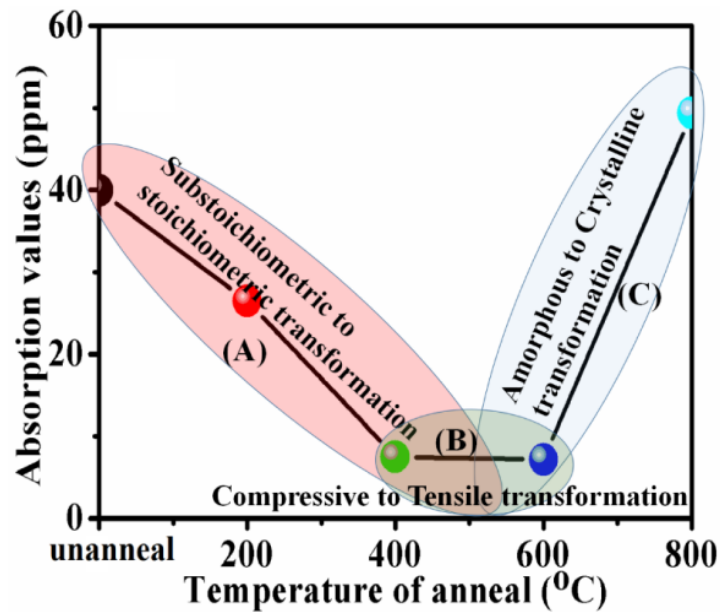


Figure 84 : Évolution de l'absorption d'un filtre Rugate Ta_2O_5/SiO_2 avec la température de recuit [65].

Tableau 13 : Températures de cristallisation des matériaux en couches minces rapportées par la littérature..

Matériaux	Cristallisation	Sources
TiO ₂	200°C - 300 °C	[94–97,101,104,107,108]
Al ₂ O ₃	300 °C	[101]
HfO ₂	EBD : 300 °C (ou 200 °C) IBS : 600 °C	[37,55,93,106,109]
ZrO ₂	Entre 350 °C et 400 °C	[100,103]
SiO ₂	> 900 °C	[102]
Nb ₂ O ₅	Entre 400 °C et 500 °C	[98]
Ta ₂ O ₅	600°C - 700 °C	[65,87,99]

L'absorption baisse d'abord rapidement en raison de la recombinaison entre les atomes déposés et l'oxygène (on note aussi l'éjection de matière - C_nH_n, eau, Argon [87]). Cette baisse s'atténue (voire stagne) alors que les contraintes mécaniques des couches s'inversent. Puis une fois la température de cristallisation atteinte, l'absorption augmente rapidement. La température de cristallisation est aussi un point important puisque l'ensemble de ce qui a été rapporté jusqu'ici (à l'exception du ZrO₂) l'a été pour des couches amorphes. Les températures de

cristallisation sont rapportées dans le Tableau 13, mais il faut garder à l'esprit que ces températures sont dépendantes de la technologie utilisée comme le montre la Figure 85. Nous sommes restés sous cette température de cristallisation dans la plupart des recuits que nous avons réalisés. Les températures de cristallisation pour les espèces que nous avons étudiées ici sont 900 °C pour le SiO₂, 400 °C pour le Nb₂O₅ et 600 °C pour le Ta₂O₅.

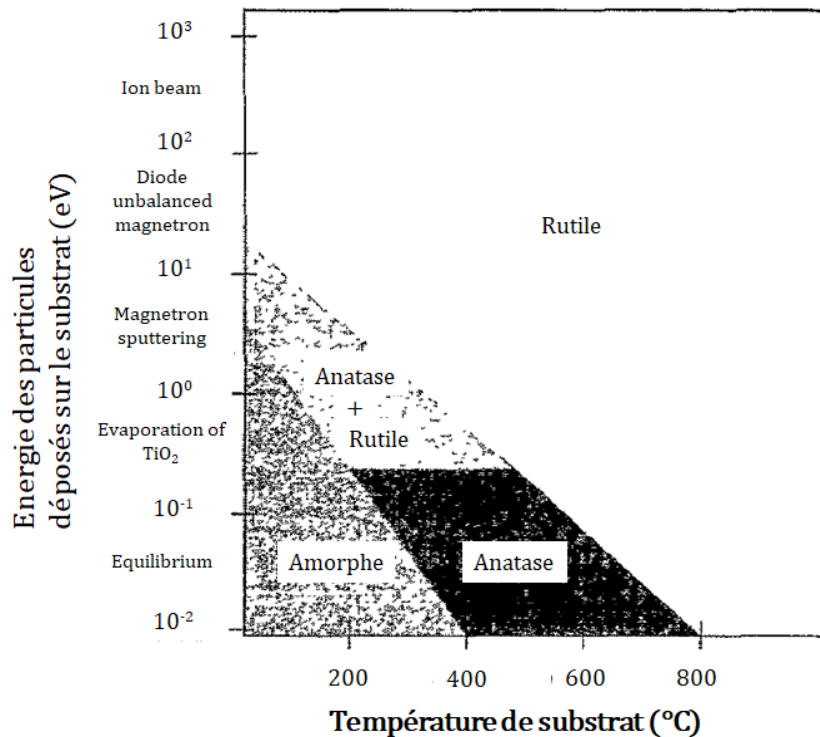


Figure 85 : Phases d'une couche de TiO₂ en fonction de la température du substrat et de l'énergie des matériaux au moment des dépôts [94].

6.2. Détermination des épaisseurs et des indices par la méthode des enveloppes

Pour déterminer les variations d'indices de réfraction et d'épaisseur des couches après recuit, nous nous sommes appuyés sur des spectres de transmission réalisés au spectrophotomètre Perkin-Elmer avant et après les recuits. Le principe de la détermination repose sur le fait que l'amplitude de la modulation d'intensité spectrale d'une monocouche ne dépend que de l'indice de réfraction de la couche et que la distance entre deux extrema dépend de son épaisseur optique ($n' \times e$ avec n' l'indice de réfraction et e l'épaisseur de la couche).

Les pertes (somme de l'absorption et de la diffusion) peuvent être estimées aux longueurs d'onde des maximums, en calculant la distance entre l'amplitude de la transmission à un maximum et la transmission d'un substrat nu à cette même longueur d'onde. Ce principe de détermination des propriétés optiques est représenté sur la Figure 86.

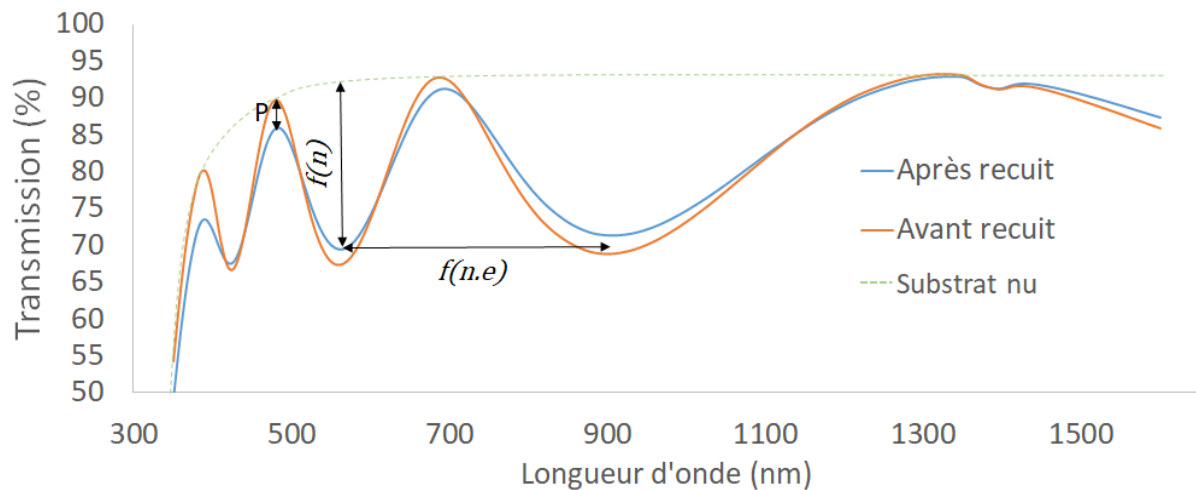


Figure 86 : Réponse spectrale en transmission d'une monocouche de Nb_2O_5 de 300 nm d'épaisseur avant et après recuit de 1 h à une température de 600 °C, soit à sa température de cristallisation. On observe une diminution de l'amplitude des maxima (ici symbolisée par P) permettant d'illustrer les pertes (Absorption + Diffusion) liées à la cristallisation des couches et une diminution de l'amplitude de la modulation correspondant à une diminution de l'indice de réfraction de la couche.

Des méthodes de détermination d'indice précises existent [110], mais nous avons utilisé dans ce travail une méthode approximative plus simple : des résultats issus de la méthode dite des enveloppes ou de Swanepoel [111–113]. Pour ce faire, nous avons utilisé le logiciel de simulation de couches minces open source Open Filters. Nous avons simulé le spectre en transmission d'une monocouche de 300 nm (épaisseur de nos couches) pour différents indices de réfraction. La plage d'indice de réfraction utilisée pour la simulation est choisie pour encadrer largement la valeur d'indice de réfraction du matériau étudié. Nous avons ensuite sélectionné la transmission à une longueur d'onde correspondant à un minimum, et comme présenté sur la Figure 87, simulé l'évolution de cette transmission avec l'indice de réfraction. Celle-ci est linéaire pour de faibles variations de l'indice. A l'aide de cette courbe et en négligeant la dispersion des matériaux, il est simple de retrouver une valeur estimée des indices des couches que l'on veut étudier.

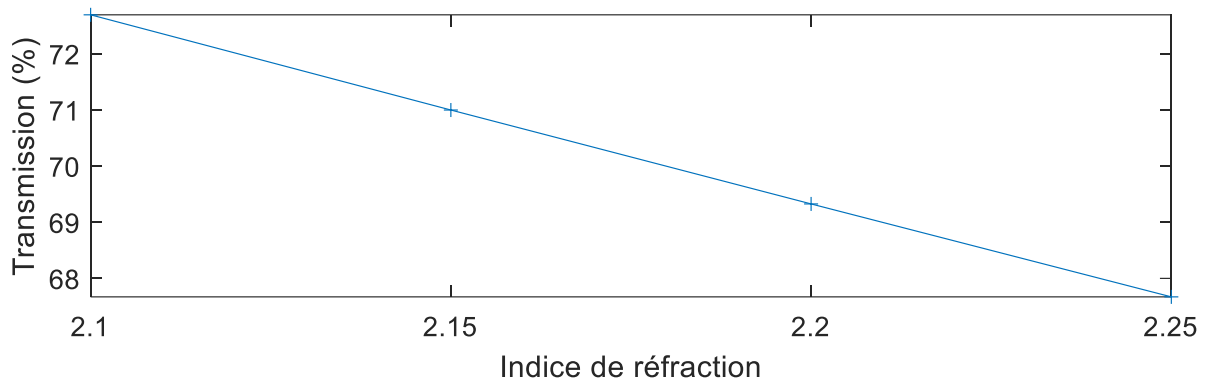


Figure 87 : Évolution de la transmission avec l'indice à un minimum de transmission du spectre d'une monocouche de 300 nm.

Pour calculer les variations d'épaisseur nous avons de nouveau négligé la dispersion d'indice de réfraction, l'épaisseur optique de la couche peut alors s'écrire :

$$n'e = (2m + 3) \frac{\lambda_1}{4} = (2m + 1) \frac{\lambda_2}{4} \quad (62)$$

Où m le nombre de modulations est un entier naturel. λ_1 et λ_2 sont les longueurs d'onde correspondant à deux minima locaux consécutifs du spectre en transmission (avec $\lambda_2 > \lambda_1$). On peut alors calculer m avec :

$$m = \frac{R_\lambda - 3}{1 - R_\lambda} \quad (63)$$

où $R_\lambda = \frac{\lambda_2}{\lambda_1}$. On peut alors déterminer m et e à partir de deux minima sur la mesure d'un spectre de transmission.

6.3. Mesure des effets de recuits.

Pour cette étude de l'influence du recuit thermique sur l'absorption, nous avons préparé une nouvelle série de monocouches de 300 nm d'épaisseur de SiO₂, Nb₂O₅ et Ta₂O₅.

Puis nous avons procédé aux recuits à l'aide d'un four à résistance régulé standard (Gravimetric Furnace LG, LAC), un échantillon de chaque matériau étant présent dans le four en même temps pour chaque expérience. Les traitements thermiques ont été effectués à la pression atmosphérique et à l'atmosphère ambiante. Les échantillons ont été chauffés à 400 °C (pour

rester sous la température de cristallisation du Nb₂O₅) à une vitesse de 10 °C/min (la vitesse de montée en température n'est pas étudiée dans la littérature que nous avons compulsée, nous choisissons donc une montée en température lente comparable à certaines valeurs rapportées) et ensuite maintenus à 400 °C pendant 1, 3 et 6 heures avant d'éteindre le chauffage et de laisser le four refroidir à température ambiante en suivant la décroissance naturelle de la température (avec une décroissance initiale de 5°C /min). L'absorption des couches a été mesurée à l'aide du dispositif LIT avant et après le recuit, et les valeurs mesurées sont répertoriées dans le Tableau 14.

Tableau 14 : Variations de l'absorption pour différents temps de recuit (à 400 °C) de couches de 300 nm de Ta₂O₅, Nb₂O₅ et SiO₂.

Matériaux	Temps de recuit	Absorption (ppm)		Variation d'indice	Variation d'épaisseur (%)
		Avant recuit	Après recuit		
Ta ₂ O ₅	1 h	26 ± 3	9 ± 1	+7,9 × 10 ⁻³	-2,0
	3 h	25 ± 3	13 ± 1	+6,6 × 10 ⁻³	-1,9
	6 h	25 ± 3	10 ± 1	+6,5 × 10 ⁻³	-0,91
Nb ₂ O ₅	1 h	22 ± 2	19 ± 2	+1,9 × 10 ⁻²	-2,3
	3 h	34 ± 4	25 ± 3	+2,2 × 10 ⁻²	-2,5
	6 h	25 ± 3	22 ± 2	+3,0 × 10 ⁻²	-2,8
SiO ₂	1 h	1855 ± 148	75 ± 8	-	-
	3 h	1666 ± 133	75 ± 8	-	-
	6 h	1566 ± 125	25 ± 3	-	-

Un effet clair de réduction de l'absorption peut être observé pour Ta₂O₅, mais cet effet est très faible pour Nb₂O₅. Le SiO₂ présente une absorption très importante juste après dépôt au vu des valeurs mesurées précédemment, sans doute due à un problème lors du dépôt, mais la nature de celui-ci n'a pas été identifiée. Le recuit a eu un impact important sur l'absorption et c'est pourquoi nous avons choisi de présenter ces résultats, mais elle reste tout de même un ordre de grandeur au-dessus des valeurs normales. En revanche, aucun effet du temps de recuit n'a été relevé pour les différents échantillons. L'indice de réfraction a augmenté d'environ 10⁻² tandis que l'épaisseur a diminué de quelques pourcents de l'épaisseur initiale pour le Nb₂O₅ et le Ta₂O₅. Les calculs des épaisseurs et des indices ne peuvent être réalisés pour le SiO₂, car le contraste d'indice est trop petit pour permettre de déterminer précisément des faibles variations.

Les mêmes expériences ont été menées avec différents temps de montée en température de 10, 20 et 40°C/min, suivis de 1 h de recuit (Tableau 15). Des résultats comparables à ceux présentés ci-avant ont été obtenus ce qui montre que le temps de montée en température dans la gamme étudiée n'a pas ou peu d'impact sur l'absorption des couches. Enfin un test de recuit sous vide a été effectué (Tableau 16), mais ces investigations ne se sont pas poursuivies car nous n'avons pas noté d'effet significatif sur l'absorption des couches fabriquées.

Tableau 15 : Variations de l'absorption pour différents temps de montée en température (à 400 °C) de couches de 300 nm de Ta₂O₅, Nb₂O₅ et SiO₂.

Matériaux	Temps de montée en température	Absorption (ppm)		Variation d'indice	Variation d'épaisseur (%)
		Avant recuit	Après recuit		
Ta ₂ O ₅	10 °/min	26 ± 3	9 ± 1	+7,9 × 10 ⁻³	-2,0
	20 °/min	30 ± 3	5 ± 1	+9,4 × 10 ⁻³	-2,0
	40 °/min	33 ± 4	7 ± 1	+1,0 × 10 ⁻²	-1,1
Nb ₂ O ₅	10 °/min	22 ± 2	19 ± 2	+1,9 × 10 ⁻²	-2,3
	20 °/min	20 ± 2	13 ± 1	+2,1 × 10 ⁻²	-2,4
	40 °/min	36 ± 4	17 ± 2	+1,6 × 10 ⁻²	-1,3
SiO ₂	10 °/min	1566 ± 125	25 ± 3	-	-
	20 °/min	1543 ± 123	21 ± 2	-	-
	40 °/min	1483 ± 119	46 ± 5	-	-

Tableau 16 : Variations de l'absorption pour des recuits sous vide (à 400 °C) de couches de 300 nm de Ta₂O₅, Nb₂O₅ et SiO₂.

Matériaux	Absorption (ppm)	
	Avant recuit	Après recuit
Ta ₂ O ₅	28 ± 3	153 ± 17
Nb ₂ O ₅	21 ± 2	40 ± 4
SiO ₂	1566 ± 125	30 ± 3

Les recuits ont montré que cette technique est un moyen permettant d'optimiser sensiblement l'absorption des couches fabriquées. L'impact de ce recuit est dépendant de l'espèce étudiée : le Ta₂O₅ présente des réductions d'absorption d'un facteur allant de 2 à 6

alors que pour le Nb_2O_5 ce facteur n'excède pas 2. Ainsi une étude plus complète sur une liste plus importante des matériaux nous permettrait de chercher les paramètres optimaux de recuit spécifiques à chaque espèce. De plus nous n'avons pas étudié ici quelles sont les relations qui peuvent exister entre l'efficacité du recuit et l'absorption des couches avant dépôt.

Ayant à présent caractérisé les couches une à une et caractérisé les performances des méthodes de dépôt actuelles (répétabilité, niveau d'absorption), nous pouvons utiliser ces données pour étudier des composants multicouches.

7. Etudes des composants multicouches

Les composants présents dans les lasers de forte puissance continue sont constitués d'empilements multicouches. Nous allons à présent nous concentrer sur ces composants optiques et étudier comment l'absorption se comporte en comparant simulations et expérimentations. Nous effectuerons aussi une série de mesures sur des composants produits à l'Institut Fresnel.

7.1. Miroirs quart d'onde

Nous avons étudié l'absorption dans un des composants les plus communément utilisés, à savoir un miroir quart d'onde. Pour cela nous avons déposé une série de miroirs $(HL)^nH$ à 1070 nm (Spectres simulé sur la Figure 88), c'est-à-dire des miroirs composés de n fois la superposition de couches haut indice H et bas indice L avec une dernière couche H , toutes les couches étant quart d'onde à la longueur d'onde de centrage. Nous avons déposé ces miroirs par évaporation assistée par plasma (SYRUSpro). Deux miroirs (HLH) et $(HL)^2H$ ont été réalisés avec les paramètres habituels de dépôt et comme matériaux haut indice du Nb_2O_5 et comme matériau bas indice SiO_2 .

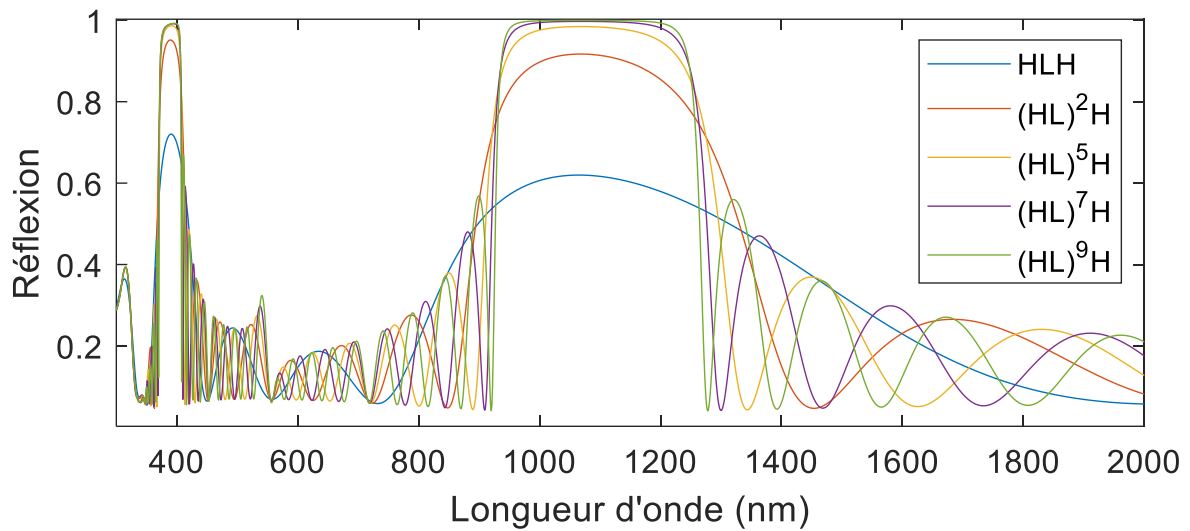


Figure 88 : Spectre en transmission de différents miroirs $(HL)^n H$ à 1070 nm.

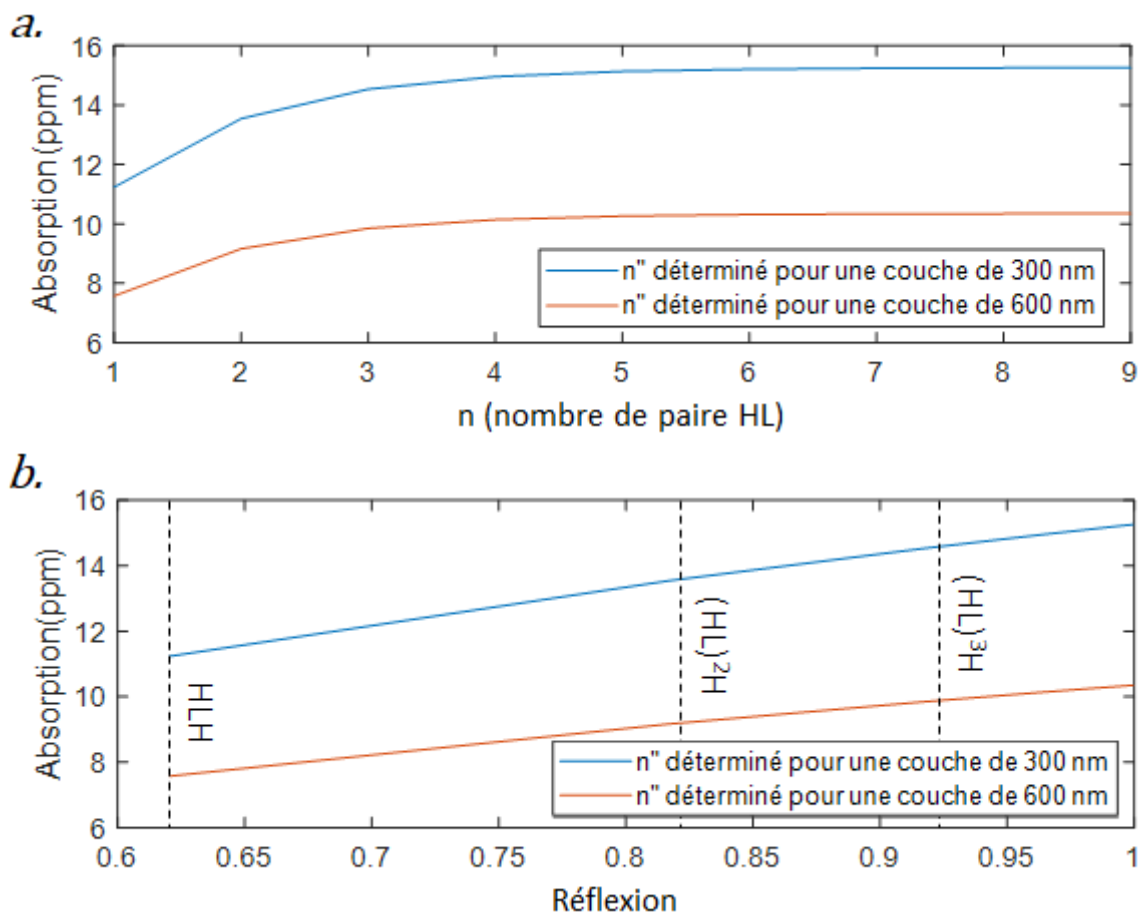


Figure 89 : Dépendance de l'absorption d'un miroir $(HL)^n H$ à son design.

Le logiciel Open Filter a été utilisé pour simuler l'absorption dans ces deux miroirs. Dans un premier temps, nous avons fait l'hypothèse que l'ensemble de l'absorption vient de la couche et qu'aucune ne vient des interfaces. On peut voir sur la Figure 89 que pour l'absorption de miroirs $(HL)^nH$ pour des n allant de 1 à 9, l'impact des premières couches sur l'absorption est prédominant. C'est pour cela que nous nous sommes limités à des miroirs à 5 couches dans la suite. Par ailleurs, la réflectivité du miroir dépendant de ce nombre n , on peut voir sur la même figure une corrélation entre l'absorption et la réflexion. Le calcul a été réalisé pour le coefficient d'extinction déduit des mesures d'absorption sur les couches de 300 nm et 600 nm présentées dans la section 3.3 de ce chapitre.

L'absorption de ces miroirs a ensuite été mesurée par LIT. Deux miroirs HLH ont été déposés lors de deux dépôts distincts et donnent une absorption de 31 ± 3 ppm et 42 ± 4 ppm. Quant aux miroirs $(HL)^2H$, trois ont été déposés lors d'un même dépôt et présentent une absorption de respectivement 54 ± 6 ppm, 49 ± 5 ppm et 48 ± 5 ppm.

Il est à noter que dans la configuration LIT on illumine l'échantillon à la fois par la face avant et arrière. Ainsi dans le cas où l'absorption ne serait pas symétrique dans l'empilement des couches, l'absorption mesurée peut-être une moyenne des absorptions des faces avant et arrière du miroir.

Les résultats présentés dans le Tableau 17 montrent que dans ce cas, l'absorption simulée est inférieure d'un facteur 3 à 5 aux mesures que nous avons présentées.

Tableau 17 : Absorption simulée dans des miroirs HLH et $(HL)^2H$ à 1070 nm ne prenant en compte que l'absorption dans la couche. Ces simulations correspondent à la situation de la « simulation 1 » de la Figure 90.

Miroir	Absorption simulée (ppm)		Moyenne des mesures (ppm)
	n" à 300 nm	n" à 600 nm	
HLH	11,2	7,6	39 ± 4
$(HL)^2H$	13,5	9,2	51 ± 6

Nous avons émis l'hypothèse, plus tôt dans ce chapitre, que l'absorption que nous mesurons dans les monocouches pouvait provenir, non pas seulement de la couche, mais des interfaces. On peut donc simuler l'absorption des miroirs, mais cette fois-ci en négligeant l'absorption dans la couche (en lui donnant un coefficient d'extinction $n'' = 0$) et en donnant

aux interfaces l'absorption mesurée sur les monocouches. Le champ électrique aux interfaces n'étant pas le même, on ne peut pas se contenter de sommer ces absorptions. Il faut donc calculer un coefficient d'extinction à partir des mesures des monocouches pour une couche de 10^{-3} nm simulant une interface (valeur limite d'épaisseur acceptée par Open Filter) puis utiliser cette valeur pour des couches de la même épaisseur que nous intercalons entre les couches d'absorption nulle. Nous utilisons l'absorption mesurée du Nb_2O_5 aux interfaces bien conscient des limites de cette approche. La Figure 90 présente les schémas des différentes configurations testées pour le cas des miroirs HLH.

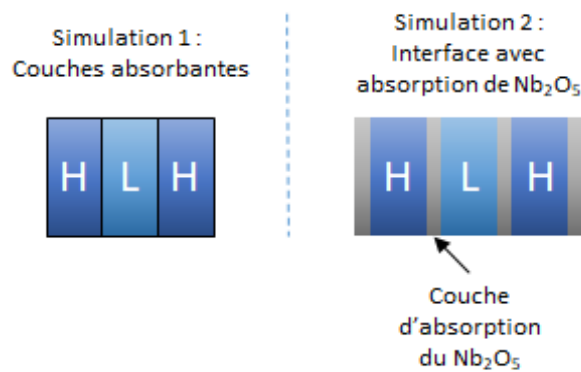


Figure 90 : Schémas des différentes configurations de miroirs HLH simulés.

Tableau 18 : Absorption simulée dans des miroirs HLH et $(\text{HL})^2\text{H}$ à 1070 nm ne prenant en compte que l'absorption aux interfaces. Ces simulations correspondent à la situation de la « simulation 2 » de la Figure 90.

Composant	Absorption simulée (ppm)		Moyenne des mesures (ppm)
	300 nm	600 nm	
HLH	42	46	39 ± 4
$(\text{HL})^2\text{H}$	49	54	51 ± 6

On présente dans le Tableau 18 les simulations effectuées dans le cas où les interfaces ont l'absorption du Nb_2O_5 (Simulation 2). Les absorptions mesurées sur les couches de 300 nm et 600 nm sont considérées. On constate que les absorptions calculées sont plus importantes d'un facteur 3 à 6 que les absorptions calculées pour la simulation avec des couches absorbantes (Simulation 1) et que les valeurs simulées sont proches de celles mesurées.

7.2. Mesures sur des composants fonctionnels

D'autres composants ont également été caractérisés pendant cette thèse :

- Un miroir à 1064 nm à 45°, SiO₂/Ta₂O₅ respectivement d'épaisseur 208 et 135 nm sur 24 couches pour une épaisseur totale de 3,9 µm.
- Un miroir à 1070 nm à 0°, SiO₂/Ta₂O₅ respectivement d'épaisseur 183 et 128 nm sur 24 couches pour une épaisseur totale de 3,3 µm.
- Un antireflet à 1064 nm, SiO₂/HfO₂ respectivement d'épaisseur 238 et 55 nm sur 2 couches pour une épaisseur totale de 290 nm.

L'absorption de ces composants a également été simulée de la même façon que précédemment en considérant que l'absorption provient des interfaces et l'antireflet est simulé en localisant son absorption soit aux interfaces, soit dans la couche. Les résultats pour ces composants sont présentés dans le Tableau 19. Du fait des valeurs d'absorption très différentes mesurées sur les échantillons de diverses épaisseurs de Ta₂O₅, les valeurs simulées varient d'un ordre de grandeur, ce qui rend la comparaison peu précise. Cependant, on constate que la valeur mesurée pour les deux miroirs est égale à la valeur moyenne des absorptions simulées. Quant à l'antireflet les valeurs mesurées sont un ordre de grandeur en dessous des valeurs simulées. En revanche le modèle utilisant l'absorption dans la couche donne des résultats très proches de nos mesures.

Tableau 19 : Absorption simulée et mesurée pour des composants fonctionnels.

Composant	Absorption simulée (ppm)		Moyenne des mesures (ppm)
	300 nm	600 nm	
Miroir à 1064 nm	30	190	119 ± 12
Miroir à 1070 nm	7,8	69	46 ± 5
Antireflet (absorption aux interfaces)	47	75	9 ± 1
Antireflet (absorption dans la couche)	8,1	6,4	

Pour pouvoir confirmer la validité du modèle avec des structures multicouches à base de Ta₂O₅, il serait nécessaire de répéter l'étude de l'absorption sur des monocouches pour confirmer le niveau d'absorption intrinsèque de ces couches. Par ailleurs les absorptions mesurées sur les antireflets montrent que le modèle avec absorption sur les interfaces est insuffisant pour simuler à lui seul l'ensemble des composants optiques et que le modèle avec

absorption dans les couches peut être parfois pertinent. Une fois de plus il serait nécessaire ici d'identifier la contribution des différentes couches et interfaces dans l'empilement.

7.3. Effet de dépôts séquentiels sur l'absorption dans des empilements

Lorsque des composants particulièrement complexes ou épais doivent être déposés, il peut être nécessaire d'ouvrir le bâti de dépôt (remplacement des matériaux, remplissage des creusets...). Cette opération est habituellement considérée comme sans conséquence sur les performances spectrales du composant.

Nous avons voulu étudier l'impact de l'interruption/relance d'un dépôt en déposant les mêmes miroirs $(HL)^nH$ que dans la partie 7.1. Pour cela nous avons dans un premier temps disposé plusieurs substrats dans la machine de dépôt SYRUSpro et effectué le dépôt d'un miroir HLH . Une fois celui-ci terminé, nous avons ouvert la machine, puis l'avons refermée et déposé deux couches HL supplémentaires. Un des miroirs $(HL)^2H$ obtenu a été retiré de la machine puis un bicouche HL a été de nouveau été déposé. On obtient ainsi un miroir $(HL)^3H$. Ces miroirs ont alors été mesurés par LIT et on constate que les absorptions obtenues sont un ordre de grandeur au-dessus de celles attendues avec 574 ± 63 ppm pour le miroir $(HL)^2H$ et 1253 ± 138 ppm pour le miroir $(HL)^3H$. Un autre dépôt similaire d'un miroir $(HL)^2H$ a alors été effectué pour vérifier la répétabilité de cette expérimentation et une valeur d'absorption égale à 623 ± 69 ppm a été mesurée. Ce résultat montre que chaque ouverture du bâti de dépôt a entraîné une augmentation de l'absorption d'environ 600 ppm. Si l'on suppose à nouveau que cette absorption additionnelle est une absorption de surface et qu'elle est située sur les interfaces qui correspondent aux moments de l'ouverture de la machine, on peut ajouter une contribution d'absorption surfacique comme sur la Figure 91, pour simuler cette nouvelle configuration.

Nous avons ensuite fait varier l'absorption de cette interface entre 700 et 1300 ppm dans la simulation. L'évolution de l'absorption des miroirs est présentée sur la Figure 92. On peut constater que les absorptions obtenues pour les valeurs de coefficient d'extinction testées sont du même ordre de grandeur que celles mesurées de quelques centaines à un millier de ppm. Toutefois pour obtenir un écart d'absorption entre les miroirs simulés équivalent à l'écart entre les mesures, il faut utiliser une absorption pour les interface de 1930 ppm ce qui donne des absorptions simulées de 1342 ppm pour le miroir $(HL)^2H$ et 1995 ppm pour le miroir $(HL)^3H$,

soit deux à trois fois au-dessus de nos mesures. La modélisation par simple ajout d'une interface fortement absorbante ne permet pas de décrire l'effet d'augmentation d'absorption observé. Par conséquent, bien qu'elle n'influe pas sur la réponse spectrale finale, l'ouverture du bâti de dépôt a un impact non négligeable sur l'absorption et doit être évitée lorsque l'absorption est un paramètre critique des composants réalisés. Une étude plus approfondie pour connaître les conditions qui permettraient d'éviter cette « sur-absorption » pourrait être menée dans le futur.

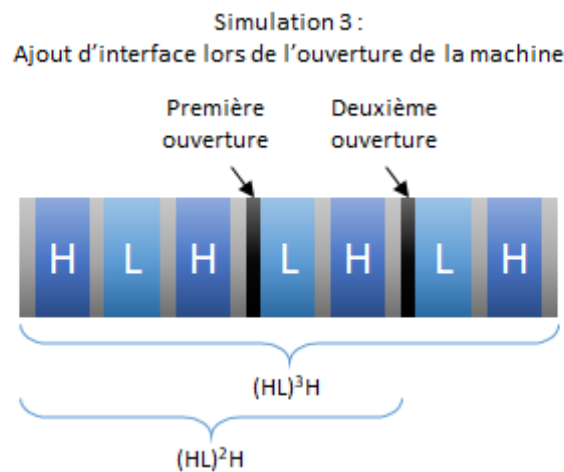


Figure 91 : Schémas de la configuration simulée pour les miroirs $(HL)^2H$ et $(HL)^3H$ avec ouverture de la machine de dépôt.

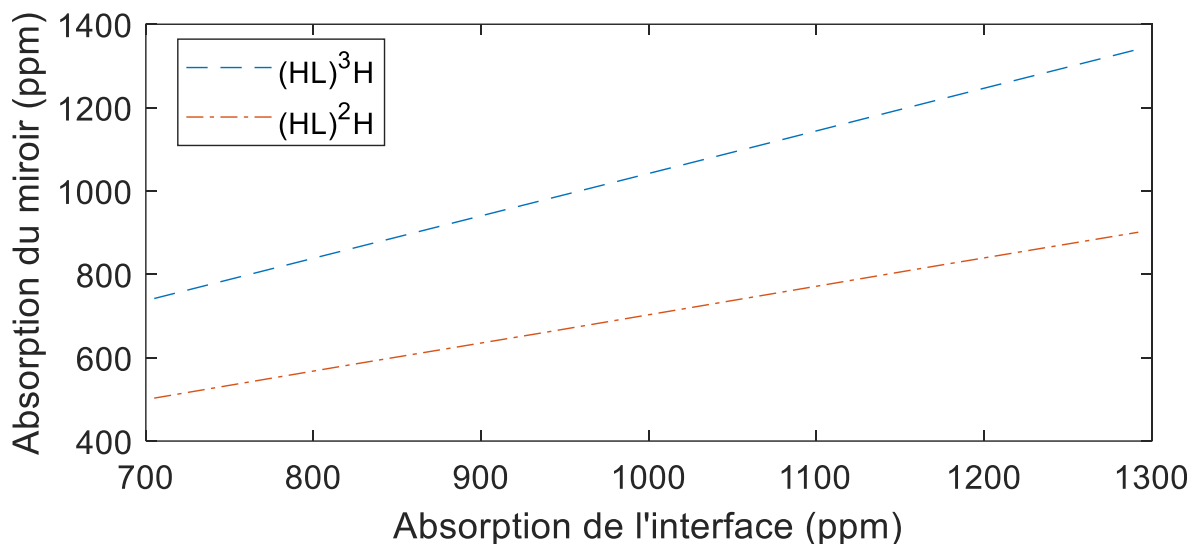


Figure 92 : Évolution l'absorption de composants $(HL)^2H$ et $(HL)^3H$ avec l'absorption des interfaces correspondant à l'ouverture du bâti. La position de ces interfaces est schématisée sur la Figure 91.

8. Conclusion

Ce chapitre était dédié à l'étude de l'absorption dans différents substrat et échantillons traités, monocouches et multicouches.

Les simulations numériques menées dans le cas de monocouches nous ont permis de constater que l'absorption n'est pas une fonction linéaire de l'épaisseur (pour des couches de faibles absorptions) et que les phénomènes d'interférences jouent également un rôle dans l'absorption de la couche.

Préalablement aux mesures de monocouches, nous avons étudié l'absorption des substrats et l'effet de la préparation de ceux-ci sur l'absorption. Les différents substrats de silice fondue présentent des absorptions mesurées inférieures à la dizaine de ppm (à l'exception de l'Infrasil dont l'absorption est particulièrement haute) et inférieures à 2 ppm pour la Corning 7980 utilisée majoritairement pour les échantillons étudiés dans cette thèse. D'autre part, nous avons montré que « l'etching » auquel nous procédons pour préparer et nettoyer les substrats avait pour effet d'augmenter l'absorption, mais le recuit thermique qui se produit avec le dépôt semble faire disparaître l'essentiel de cette augmentation.

Les mesures sur monocouches se sont, dans un premier temps, concentrées sur la répétabilité des absorptions de monocouches de Nb_2O_5 . Des fluctuations d'un facteur 2 à 3 ont ainsi été mesurées. Un ensemble de 5 matériaux, couramment utilisés dans la fabrication d'optiques pour les applications de forte puissance laser, a été mesuré. Les résultats obtenus sont tous inférieurs à la dizaine de ppm. Toutefois les écarts de coefficients d'extinction constatés avec la littérature, vont d'un facteur 2 à 10. Par ailleurs les valeurs de coefficients d'extinction déduits pour des couches d'épaisseur différentes n'étant pas égales, il est à envisager qu'une part de cette absorption ne se fasse pas dans la couche, mais sur les interfaces faussant ainsi la détermination des coefficients d'extinction.

Les différentes mesures d'absorption ayant montré la capacité de la LIT à faire apparaître les macro-défauts d'absorption sur de larges surfaces, nous avons décidé de mettre à profit cette capacité avec un nouveau montage dédié. Ce montage utilisant non plus un faisceau gaussien mais top-hat pour illuminer notre échantillon nous a permis de réaliser des cartographies de défauts sur deux monocouches de HfO_2 et Nb_2O_5 .

Nous avons ensuite essayé de réduire l'absorption de nos couches par deux moyens : l'optimisation des paramètres de dépôt et des recuits avant cristallisation des couches. L'optimisation des paramètres de dépôt s'est concentrée sur les paramètres de l'APS sans parvenir à obtenir une baisse mesurable de l'absorption. Les recuits ont montré une capacité à réduire l'absorption, jusqu'à un ordre de grandeur (de la dizaine de ppm jusqu'à la ppm) dans le cas du Ta₂O₅, mais les gains plus limités obtenus sur le Nb₂O₅ laissent entrevoir que cette solution n'est pas viable de la même façon pour tous les matériaux.

Enfin nous avons déposé une série composants multicouches à l'Institut Fresnel. Les mesures réalisées sur les miroirs montrent que les absorptions constatées s'expliquent mieux si les absorptions sont considérées majoritairement aux interfaces et que l'ouverture de la machine pour opérer à l'intérieur, peut avoir pour conséquence l'apparition d'absorption de plusieurs centaines de ppm à chaque ouverture. Toutefois les mesures réalisées sur des antireflets montrent que cette approche n'est pas suffisante et que l'absorption des monocouches n'est que partiellement corrélée à l'absorption du composant.

Conclusion générale et perspectives

L'absorption optique des composants en couches minces reste un paramètre limitant pour le fonctionnement et l'utilisation des lasers continus d'une puissance supérieure au kilowatt. Cette limitation peut être handicapante pour les industriels utilisateurs ou fabricants de lasers de puissance qui pourraient voir un intérêt dans un meilleur contrôle de l'absorption des composants optiques.

Cette limitation se manifeste par deux phénomènes que sont les modifications de propriétés optiques fonctionnelles (par exemple le décalage de la longueur d'onde de centrage ou la déformation du front d'onde en sortie de l'optique) ou des dommages sur la surface traitée (brûlure, fusion de la couche, décollement, cloquage...). L'analyse de la littérature scientifique que nous avons effectuée montre des absorptions pouvant descendre à quelques ppm pour des composants complexes réalisés sur des machines industrielles. Nous avons donc cherché à développer un instrument permettant de mesurer de tels niveaux d'absorption.

Reprenant les principes fondamentaux des mesures photothermiques utilisées précédemment, nous avons développé un nouveau moyen de mesure. Nous avons pu montrer l'applicabilité de la thermographie à détection synchrone (LIT) pour des mesures de faibles absorptions optiques. Une caractérisation du montage nous a permis d'identifier la fréquence de modulation pour optimiser le rapport signal sur bruit pour les bandes de fréquences étudiées. L'étalonnage a été abordé par deux stratégies différentes. La première consiste à relier un étalonnage de la température sur un corps noir et à s'appuyer sur des simulations thermiques pour remonter à l'absorption. La seconde consiste à directement mesurer les signaux sur un échantillon d'absorption connue pour en tirer une courbe d'étalonnage. A ce stade, les résultats obtenus par les deux méthodes présentent des différences significatives mais donnent accès à un ordre de grandeur de l'absorption. Nous avons opté pour la méthode par échantillon de référence car elle semble permettre de mieux maîtriser les incertitudes de mesure. Sur ce point, il est possible, d'après nos budgets d'étalonnage, de réaliser une mesure d'absorption avec une précision relative de $\pm 11\%$. Cette valeur est valide pour des puissances absorbées supérieures à 2 mW.

Après les développements expérimentaux, nous avons utilisé l'instrument pour caractériser des dépôts effectués à CILAS et à l'Institut Fresnel.

Ces travaux nous ont permis de montrer que la préparation de l'échantillon (etching) pouvait avoir un impact significatif sur l'absorption. Cet impact étant cependant réduit lors du dépôt et l'etching étant indispensable à la qualité d'accroche des couches déposées, une suppression pure et simple de cette étape n'est donc pas envisageable.

Les dépôts de monocouches ont montré des absorptions cohérentes avec la littérature de l'ordre de la dizaine de ppm. Toutefois des améliorations seront à apporter pour atteindre des valeurs d'absorption au niveau de l'état de l'art. Par ailleurs, nous avons constaté des variations d'un facteur de 2 à 3 pour des échantillons déposés dans des conditions comparables (soit dans un même dépôt, soit dans des dépôts successifs). Aucune des optimisations de configuration de la machine de dépôt (essentiellement portées autour de l'APS) ne nous a permis de produire des couches moins absorbantes à ce stade. Nous avons également étudié l'effet de recuits qui ont permis de réduire l'absorption sur un jeu d'échantillons de trois matériaux différents. Cette réduction est en accord avec les ordres de grandeur connus pour ce type de matériaux.

Ces études sur les monocouches nous ont amené à nous questionner sur l'importance et l'influence des macro-défauts dans nos couches. La LIT utilisant déjà la détection de la variation thermique sur une large zone, nous avons travaillé sur l'adaptation de notre principe de mesure à la détection de défauts. Un montage dédié a été réalisé pour montrer la faisabilité de la méthode et des cartographies mettant en évidence des défauts ont été réalisées.

Enfin concernant les composants multicouches, les mesures faites sur différents types de miroirs $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ nous ont permis de constater qu'un modèle basé sur une absorption intrinsèque aux couches sous-évaluait l'absorption du système multicouches alors qu'un modèle basé sur des absorptions de surface était plus adapté. Toutefois des mesures sur des composants fonctionnels ont montré que cette approche n'était pas suffisante. Enfin des tests menés sur des optiques faites en plusieurs dépôts ont permis de constater que des opérations d'arrêt/redémarrage du dépôt n'étaient pas neutres en termes d'absorption.

Cette thèse a initié cette nouvelle activité, relative à l'étude des composants optiques sous flux laser continu intense à l'institut Fresnel en lien avec la société CILAS. Ainsi de nombreuses questions et voies de recherche ont été ouvertes et restent à approfondir.

L'instrument LIT pourrait être amélioré en utilisant des fréquences de modulation plus élevées, notamment avec des puissances plus élevées, afin de gagner en temps de mesure et/ou en rapport signal sur bruit en réalisant des mesures sur un nombre de périodes plus élevé. Ceci nécessiterait cependant l'utilisation de caméras thermiques rapides.

Des écarts ont été constatés entre températures étalonnées et simulées. Des travaux permettant de comparer expériences et simulations sont donc nécessaires pour comprendre ces divergences. Il serait possible par exemple d'étudier la réponse d'un échantillon dont les paramètres thermiques et optiques sont bien maîtrisés (graphite par exemple) et de faire une mesure LIT avec une caméra étalonnée en température.

Par ailleurs, compte tenu des variations d'absorption constatées sur les monocouches Nb₂O₅, il pourrait être utile d'étudier plus avant cette variance. Quel serait l'impact des espèces déposées ? Des paramètres de dépôts ? Quelle est l'origine de cette variation ? Est-elle corrélée au niveau d'absorption ? Comprendre et contrôler cette variation est probablement préférable en prévision de nouvelles études en vue d'abaisser l'absorption.

Les résultats obtenus sur les recuits doivent être approfondis, notamment en élargissant le panel des matériaux testés en vue de déterminer s'il existe de meilleurs paramètres de recuits pour chacun des matériaux. Par ailleurs les couches étudiées l'ont été sur des dépôts avec les paramètres standard. D'autres paramètres pourraient-ils impacter les variations d'absorption dues à un recuit ? L'effet de la température de la chambre pendant le dépôt mériterait également d'être étudié.

Plus généralement, les tests sur des multicouches ont montré la nécessité de rechercher des moyens d'identifier comment se répartit l'absorption dans les couches : différenciation entre absorption intrinsèque et absorption d'interface. Cela permettrait d'améliorer notre connaissance de l'origine de l'absorption et éventuellement d'étudier la possibilité de réaliser des designs plus robustes à l'absorption. Par ailleurs, connaître la répartition serait une connaissance potentiellement utile dans les études de variances et de recuits précédemment proposées.

Nous avons aussi montré que nous étions en mesure de réaliser des cartographies de macro-défauts sur de grandes surfaces. L'instrument pourrait être amélioré en utilisant une caméra avec une vitesse d'acquisition plus importante afin de pouvoir augmenter la résolution de la méthode et la détection des défauts en conservant un temps d'intégration identique. Par ailleurs une procédure d'étalonnage pour réaliser des mesures quantitatives de la température au niveau de ces défauts s'avère nécessaire. Cela nécessiterait cependant une étude de la nature et de la localisation dans la couche de ces défauts, qui pourrait être effectuée en couplant ces moyens de mesure à d'autres instruments d'analyse (FIB/MEB par exemple). La quantification de ces défauts et leurs niveaux d'absorption est nécessaire pour optimiser les procédés de dépôts

de couches minces. Par ailleurs la cartographie d'absorption pourrait aussi être associée à une cartographie de diffusion, en effectuant de l'imagerie à la longueur d'onde d'excitation, pour étudier les corrélations entre ces deux grandeurs. Ces données pourraient être mises à profit pour étudier les liens entre défauts et seuil de tenue au flux laser.

Enfin la connaissance de l'absorption intrinsèque et locale pourrait être utilisée pour simuler et quantifier les effets thermo-induits dans les composants optiques en couches minces : déformations de front d'onde et décalage de fréquence de centrage. A partir de ces résultats, il serait alors peut-être possible de calculer des structures dont la sensibilité aux effets thermiques serait atténuée.

Annexes

A. Expression analytique de l'absorption dans une monocouche.

On part de l'équation décrivant l'absorption dans une couche :

$$A_1 = \frac{4\pi n_1' n_1''}{\lambda N_0} \int_{z=0}^e \frac{|\vec{E}(z)|^2}{|a_0^+|^2} dz \quad (64)$$

Le champ $E_i(z)$ se propageant dans la couche i s'écrit :

$$\vec{E}_1(z) = \vec{a}_1 e^{j\alpha_1 z} \quad (65)$$

Avec $\alpha_1 = \sqrt{k_1^2 - \sigma_0}$ où k est le nombre d'onde. Le champ total est la somme de l'onde progressive et rétrograde dans le milieu.

$$\vec{E}_1(z) = \vec{a}_1^+ e^{j\alpha_1 z} + \vec{a}_1^- e^{-j\alpha_1 z} \quad (66)$$

Ce qui donne en $z = 0$:

$$\boxed{\vec{E}_i(0) = \vec{a}_1^+ + \vec{a}_1^- = \vec{E}_1(0) = \vec{E}_1^+(0) + \vec{E}_1^-(0) = (1+r)\vec{E}_1^+ = (1+r)\vec{a}_1^+} \quad (67)$$

Où r est le coefficient de réflexion.

En utilisant la continuité du champ magnétique tangentiel à l'interface, on peut écrire :

$$H_{0tg}(0) = H_{1tg}(0) \quad (68)$$

Sachant que :

$$\begin{aligned} \vec{H}_{i_{tg}}^+ &= N_i \vec{z} \wedge \vec{E}_i^+ \\ \vec{H}_{i_{tg}}^- &= -N_i \vec{z} \wedge \vec{E}_i^- \end{aligned} \quad (69)$$

À partir de (67) (68) et (69) et sachant que \vec{A}_0^+ est selon l'axe y :

$$\begin{aligned}
 N_0 \vec{z} \wedge \vec{a}_0^+ - N_0 \vec{z} \wedge \vec{a}_0^- &= N_0 \vec{z} \wedge \vec{a}_1^+ - N_0 \vec{z} \wedge \vec{a}_1^- \\
 &\Leftrightarrow \\
 -N_0(1-r)\vec{a}_0^+ &= -N_i a_1^+ \vec{x} - N_i a_1^- \vec{x} \\
 &\Leftrightarrow \\
 \boxed{-N_0(1-r)\vec{a}_0^+ = N_i(a_1^- - a_1^+)} &
 \end{aligned} \tag{70}$$

On peut ainsi résoudre le système d'équations :

$$\begin{cases} \vec{a}_1^+ + \vec{a}_1^- = (1+r)\vec{a}_1^+ \\ -N_0(1-r)\vec{a}_0^+ = N_1(a_1^- - a_1^+) \end{cases} \tag{71}$$

Ce qui donne :

$$\boxed{a_1^\pm = \frac{a_0^+}{2N_1} [N_1(1+r) \pm N_0(1-r)]} \tag{72}$$

Intéressons-nous à présent au carré du champ dans la couche absorbante, on peut écrire que :

$$\begin{aligned}
 \left| \vec{E}_{1tg}(z) \right|^2 &= \left| \vec{a}_1^+ e^{j\alpha_1 z} + \vec{a}_1^- e^{-j\alpha_1 z} \right|^2 \\
 &= |a_1^+|^2 \cdot e^{-j\alpha_1' z} + |a_1^-|^2 \cdot e^{j\alpha_1'' z} + 2\mathcal{R}e\{a_1^+ a_1^{-*} e^{j\alpha_1 z}\}
 \end{aligned} \tag{73}$$

Avec $\alpha_1 = \alpha_1' + j\alpha_1''$. On peut donc écrire que l'absorption dans la couche est telle que :

$$A_1 = \frac{2\pi n_1' n_1''}{\lambda N_0} \left[\underbrace{\frac{|a_1^+|^2}{|a_0^+|^2} \int_0^e e^{-j\alpha_1'' z} dz}_J + \underbrace{\frac{|a_1^-|^2}{|a_0^+|^2} \int_0^e e^{j\alpha_1'' z} dz}_K \right. \\
\left. + \frac{2}{|a_0^+|^2} \underbrace{\int_0^e \mathcal{Re}\{a_1^+ a_1^{-*} e^{j\alpha_1'' z}\} dz}_L \right] \quad (74)$$

Les deux premières intégrales peuvent s'écrire :

$$J = \frac{e^{-2\alpha_1'' e} - 1}{-2\alpha_1''} \quad \text{et} \quad (75)$$

$$K = \frac{e^{2\alpha_1'' e} - 1}{2\alpha_1''}$$

On se concentre à présent sur dernier membre à intégrer L. Sachant que :

$$ba^* - ab^* = 2j\mathcal{Im}\{ba^*\} \quad (76)$$

Si on identifie a, b et c dans (72) :

$$a_1^\pm = \frac{a_0^+}{\underbrace{2N_1}_c} \left[\underbrace{N_1(1+r)}_a \pm \underbrace{N_1(1-r)}_b \right] \quad (77)$$

⇔

$$a_1^+ = c(b+a) \text{ et } a_1^- = c(b-a)$$

L'intégrale devient donc

$$\begin{aligned}
L &= \int_0^e \mathcal{R}e\{a_1^+ a_1^{-*} e^{j\alpha_1 z}\} dz = |c|^2 \int_0^e \mathcal{R}e\{[|a|^2 - |b|^2 + 2j \mathcal{I}m\{ba^*\}] \cdot e^{j\alpha_1 z}\} dz \\
&= |c|^2 \left[(|a|^2 - |b|^2) \int_0^e \mathcal{R}e\{e^{j\alpha_1 z}\} + 2 \mathcal{I}m\{ba^*\} \int_0^e \mathcal{R}e\{j e^{j\alpha_1 z}\} dz \right] \\
&= |c|^2 \left[(|a|^2 - |b|^2) \cdot \mathcal{R}e \left\{ \underbrace{\int_0^e e^{j\alpha_1 z} dz}_I \right\} \right. \\
&\quad \left. + 2 \mathcal{I}m\{ba^*\} \mathcal{R}e \left\{ j \underbrace{\int_0^e e^{j\alpha_1 z} dz}_I \right\} \right] \tag{78}
\end{aligned}$$

Calculons I :

$$\begin{aligned}
I &= \frac{e^{2j\alpha_1 e} - 1}{2j\alpha_1} = -j \frac{\alpha_1^*}{2|\alpha_1|^2} [e^{2j\alpha_1 e} - 1] = -j \frac{\alpha_1^*}{2|\alpha_1|^2} [e^{2j\alpha_1' e} e^{-2\alpha_1'' e} - 1] = \\
&= -j \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [(\alpha_1' - j\alpha_1'') \cdot ((\cos(2\alpha_1' e) + j \sin(2\alpha_1' e)) e^{-2\alpha_1'' e} - 1)] \\
&= -j \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [\alpha_1' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} - j \alpha_1'' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} \\
&\quad + j\alpha_1' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} + \alpha_1'' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} - \alpha_1' + j\alpha_1''] \\
&= \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [-j\alpha_1' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} - \alpha_1'' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} \\
&\quad + \alpha_1' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} - j\alpha_1'' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} + j\alpha_1' + \alpha_1''] \tag{79}
\end{aligned}$$

Soit :

$$\mathcal{R}e\{I\} = \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [\alpha_1'' - \alpha_1'' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} + \alpha_1' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} e^{-2\alpha_1'' e}] \tag{80}$$

$$\mathcal{R}e\{jI\} = \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [\alpha_1' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} + \alpha_1'' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} - \alpha_1'] \tag{81}$$

On obtient donc finalement pour une monocouche l'absorption suivante :

$$\begin{aligned}
A_1 = \frac{2\pi n'_1 n''_1}{\lambda N_0} & \left[\frac{|a_1^+|^2}{|a_0^+|^2} \cdot \frac{e^{-2\alpha_1'' e} - 1}{-2\alpha_1''} + \frac{|a_1^-|^2}{|a_0^+|^2} \cdot \frac{e^{2\alpha_1'' e} - 1}{2\alpha_1''} \right. \\
& + \frac{2}{|a_0^+|^2} |c|^2 \left[(|a|^2 - |b|^2) \cdot \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [\alpha_1'' - \alpha_1'' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} \right. \\
& + \alpha_1' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} e^{-2\alpha_1'' e}] \\
& + 2 \cdot \text{Im}\{ba^*\} \frac{1}{2|\alpha_1|^2} [\alpha_1' \cos(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} + \alpha_1'' \sin(2\alpha_1' e) e^{-2\alpha_1'' e} \\
& \left. \left. - \alpha_1' \right] \right] \quad (82)
\end{aligned}$$

B. Technique de Cavity Ring Down (CRD) pour la caractérisation de faibles pertes optiques

a. Présentation de la technique

La CRD pour Cavity Ring Down Spectroscopy est une technique permettant de mesurer des pertes au ppm (parties par million) [114]. Elle présente l'avantage de ne pas nécessiter d'étalon de perte et d'être insensible aux variations d'intensité de la source laser utilisée. Toutefois, la CRD est incapable de mesurer des pertes importantes (≈ 1000 ppm pour le LossPro). Par ailleurs, il est à noter que contrairement à ce qui est souvent écrit dans la littérature, la CRD ne mesure pas l'absorption, mais les pertes.

L'idée fondamentale de la CRD pour pouvoir mesurer de très petites pertes est de multiplier ces pertes de façon à en faire une quantité mesurable. On va donc utiliser une cavité laser dans laquelle on envoie une impulsion I_{Laser} . Cette impulsion va donc faire des allers-retours dans la cavité à travers le milieu de longueur d dont on veut mesurer les pertes α . Ainsi l'intensité I_n , pour le $n^{ième}$ aller-retour, détectée par un capteur à l'arrière de la cavité décroît de façon exponentielle. À partir de la loi de Beer-Lambert et des moyennes géométriques des réflectances R et des transmittances T des miroirs de la cavité, sachant que $n = \frac{tc}{2L}$ on écrit :

$$\begin{aligned}\frac{I_n}{I_{Laser}} &= T^2 R^2 e^{-\alpha d} \\ &= T^2 e^{(2n \ln(R))} e^{-\alpha d} \\ &= T^2 e^{\frac{tc}{L}(\ln(R) - \alpha d)} \\ &= T^2 e^{\frac{tc}{L}(1-R - \alpha d)} \\ &= T^2 e^{-\frac{t}{\tau}}\end{aligned}\tag{83}$$

Avec τ , la constante de temps de la CRD telle que :

$$\tau = \frac{L}{c(1 - R + \alpha d)}\tag{84}$$

Ainsi, en l'absence d'étalons absorbants, on aura τ_0 qui ne dépendra que de R et L . Les pertes d'un échantillon pourront être déterminées à partir de ce « zéro » simplement par :

$$\tau = \frac{L}{d} \left(\frac{1}{c\tau} - \frac{1}{c\tau_0} \right) \quad (85)$$

La limite de détection imposée par la technique est alors telle que :

$$\begin{aligned} \alpha_{min} &= \frac{L}{d} \left(\frac{1}{c\tau_0^2} \right) \Delta\tau_{min} \\ &= \frac{1-R}{d} \left(\frac{\Delta\tau}{\tau_0^2} \right)_{min} \end{aligned} \quad (86)$$

Il est à noter que ces équations sont valables dans le cas où la cavité n'est pas résonnante, donc où l'impulsion à l'entrée est plus courte que la longueur de la cavité pour ne pas interférer avec elle-même, soit : $t_{max} < \frac{2L}{c}$. Dans le cas contraire il faudra se tourner vers la « Continuous-Wave CRD » (CW-CRD) [115,116]. Dans le cas de l'instrument de CRD (Novawave - LossPro) utilisé à l'Institut Fresnel, la cavité fait 45 cm, dont le temps de parcours correspond à une impulsion de 3 ns.

La première mise en place d'une CRD, réalisée par Herbelin et al, avait pour but la mesure de la réflectivité de miroirs avec une fidélité de 100 ppm [117]. Ce travail fut suivi par celui de Anderson et al, qui mesurèrent à la fois la réflexion, mais aussi la transmission avec une résolution de 5 ppm et une incertitude type minimum de 3 ppm [118]. En 2002, Marcus et Schwettman mesurent les pertes dans une couche mince de C60 sur un substrat de BaF2 avec une limite de détection à 10^{-7} soit 0,1 ppm [119]. Enfin on peut noter l'utilisation d'une technique spécifique de CW-CRD par Li et al, pour mesurer la réflectance et la transmittance en plus des pertes à 1064 nm [120,121]. Notons la publication de deux ouvrages traitant de la technique. L'un porte exclusivement sur la CRD et ses applications, ne traitant pas du cas des couches minces, mais disposant d'un chapitre introductif utile [122]. Le second s'intéresse à la CRDS pour la mesure de réflectivité des miroirs en couches minces, mais sans traiter du cas des mesures d'absorption en transmission [36].

b. Description du NovaWave LossPro

Le NovaWave LossPro est un mesureur de pertes CRD opérant à 355, 532 et 1064 nm. NovaWave revendique une incertitude type relative de 1 % et une étendue de mesure allant de 5 ppm à 1000 ppm. La Figure 93 présente l'intérieur de l'appareil.

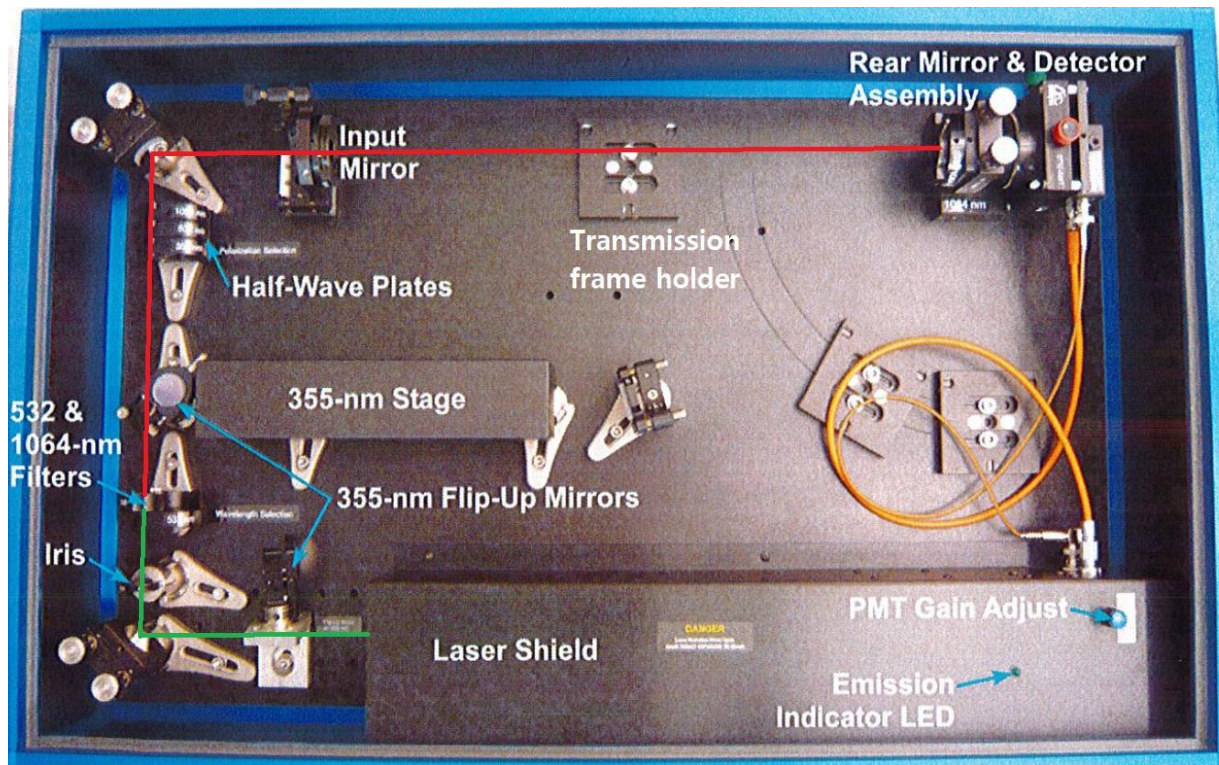


Figure 93 : Intérieur du NovaWave LossPro. Dans notre utilisation, nous n'utilisons pas les polariseurs et la voie à 355 nm. Le chemin optique est indiqué : en vert à la sortie du laser (où celui-ci est en pratique visible en vert) et en rouge à partir du moment où il est filtré dans l'IR.

Bibliographie

1. M. Commandré and E. Pelletier, "Measurements of absorption losses in TiO₂ films by a collinear photothermal deflection technique," *Appl. Opt.* **29**, 4276 (1990).
2. P. Roche, M. Commandré, L. Escoubas, J. P. Borgogno, G. Albrand, and B. Lazaridès, "Substrate effects on absorption of coated surfaces," *Appl. Opt.* **35**, 5059 (1996).
3. A. V. Tikhonravov, M. K. Trubetskov, and G. W. DeBell, "Application of the needle optimization technique to the design of optical coatings," *Appl. Opt.* **35**, 5493 (1996).
4. M. Sozet, "Etude de l'endommagement laser de composants réfléchissants en régime sub-piscoseconde," PhD, Centrale Marseille (2016).
5. T. Begou, F. Lemarchand, and J. Lumeau, "Advanced optical interference filters based on metal and dielectric layers," *Opt. Express* **24**, 20925 (2016).
6. T. Begou, F. Lemarchand, F. Lemarquis, A. Moreau, and J. Lumeau, "High-performance thin-film optical filters with stress compensation," *J. Opt. Soc. Am. A* **36**, C113 (2019).
7. F. Träger, ed., *Springer Handbook of Lasers and Optics*, 2nd ed (Springer, 2012).
8. H. Krol, "Etude de l'endommagement laser dans les composants optiques pour le domaine infrarouge," PhD, Aix-Marseille Université (2006).
9. J.-J. Bessot, "Dépôts par évaporation sous vide.," *Techniques de l'ingénieur* (1985).
10. E. Vella, F. Messina, M. Cannas, and R. Boscaino, "Unraveling exciton dynamics in amorphous silicon dioxide: Interpretation of the optical features from 8 to 11 eV," *Phys. Rev. B* **83**, 174201 (2011).
11. R. M. Wood, *Laser-Induced Damage of Optical Materials*, Series in Optics and Optoelectronics (Institute of Physics, 2003).
12. Georges Gebrayel El Reaidy, "Evaluation expérimentale et modélisation de la contamination induite par laser sur les optiques spatiales," PhD, AIX-MARSEILLE III (2018).
13. *Corning® HPFS® 7979, 7980, 8655 Fused Silica - Optical Materials Product Information* (Corning - Specialty Materials, 2015).
14. X. Cheng and Z. Wang, "Defect-related properties of optical coatings," *Advanced Optical Technologies* **3**, (2014).
15. S. Berciaud, D. Lasne, G. A. Blab, L. Cagnet, and B. Lounis, "Photothermal heterodyne imaging of individual metallic nanoparticles: Theory versus experiment," *Phys. Rev. B* **73**, 045424 (2006).
16. S. Papernov, A. Tait, W. Bittle, A. W. Schmid, J. B. Oliver, and P. Kupinski, "Near-ultraviolet absorption and nanosecond-pulse-laser damage in HfO₂ monolayers studied by submicrometer-resolution photothermal heterodyne imaging and atomic force microscopy," *Journal of Applied Physics* **109**, 113106 (2011).
17. P. A. Temple, "Measurement of thin-film optical absorption at the air-film interface within the film and at the film-substrate interface," *Appl. Phys. Lett.* **34**, 677–679 (1979).
18. A. Firth and U. Srinivasan, "Laser Induced Thermal Stress in Optical Thin Films," in *Optical Interference Coatings Conference (OIC) 2019* (OSA, 2019), p. ThB.8.

19. S. Michel, "Vers une détermination optique directe des coefficients opto-mécaniques et thermo-optiques des couches minces optiques," PhD, AIX-MARSEILLE III (2008).
20. C. A. Klein, "High-energy laser windows: case of fused silica," *Opt. Eng* **49**, 091006 (2010).
21. C. Z. Tan and J. Arndt, "Temperature dependence of refractive index of glassy SiO₂ in the infrared wavelength range," *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **61**, 1315–1320 (2000).
22. M. Stubenvoll, B. Schäfer, and K. Mann, "Measurement and compensation of laser-induced wavefront deformations and focal shifts in near IR optics," *Opt. Express* **22**, 25385 (2014).
23. C. Simonelli, E. Neri, A. Ciamei, I. Goti, M. Inguscio, A. Trenkwalder, and M. Zaccanti, "Realization of a high power optical trapping setup free from thermal lensing effects," *Opt. Express* **27**, 27215 (2019).
24. J. V. Ramsay and P. E. Ciddor, "Apparent Shape of Broad Band, Multilayer Reflecting Surfaces," *Appl. Opt.* **6**, 2003 (1967).
25. A. Macleod, "Phase Matters," (2005).
26. T. Stolberg-Rohr and G. J. Hawkins, "Spectral design of temperature-invariant narrow bandpass filters for the mid-infrared," *Opt. Express* **23**, 580 (2015).
27. H. Takashashi, "Temperature stability of thin-film narrow-bandpass filters produced by ion-assisted deposition," *Appl. Opt.* **34**, 667 (1995).
28. L. N. Taylor, "Going Deeper into Laser Damage: Experiments and Methods for Characterizing Materials in High Power Laser Systems," PhD, University Of Minnesota (2016).
29. K. E. Puttick, R. Holm, D. Ristau, U. Natzschka, G. Kiriakidis, N. Garawal, E. Judd, D. Holland, D. Greening, N. Ellis, M. Wilkinson, M. Garcia Pamies, and C. Sanviti, "Continuous-wave CO₂-laser-induced damage thresholds in optical components," in G. J. Exarhos, A. H. Guenther, M. R. Kozlowski, and M. J. Soileau, eds. (1998), p. 188.
30. R. S. Shah, J. J. Rey, and A. F. Stewart, "Limits of performance: CW laser damage," in G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, D. Ristau, M. J. Soileau, and C. J. Stolz, eds. (2006), p. 640305.
31. L. N. Taylor, A. K. Brown, A. J. Pung, E. G. Johnson, and J. J. Talghader, "Continuous-wave laser damage of uniform and nanolaminate hafnia and titania optical coatings," *Opt. Lett.* **38**, 4292 (2013).
32. *Y1: High Energy Nd YAG Laser Mirrors, 1047-1064nm* (CVI Laser optics, 2021).
33. D. Ristau and J. Ebert, "Development of a thermographic laser calorimeter," *Appl. Opt.* **25**, 4571 (1986).
34. N. K. Sahoo and K. V. S. R. Apparao, "Laser calorimeter for UV absorption measurement of dielectric thin films," *Appl. Opt.* **31**, 6111 (1992).
35. "Lasers and laser-related equipment, test method for absorptance of optical laser components," (2019).
36. O. Stenzel and M. Ohlídal, eds., *Optical Characterization of Thin Solid Films*, Springer Series in Surface Sciences (Springer International Publishing, 2018), Vol. 64.

37. M. Kong, B. Li, C. Guo, P. Zeng, M. Wei, and W. He, "The Optical Absorption and Photoluminescence Characteristics of Evaporated and IAD HfO₂ Thin Films," *Coatings* **9**, 307 (2019).
38. S. Bublitz and C. Mühlig, "Absolute Absorption Measurements in Optical Coatings by Laser Induced Deflection," *Coatings* **9**, 473 (2019).
39. Z. L. Wu, M. Reichling, X.-Q. Hu, K. Balasubramanian, and K. H. Guenther, "Absorption and thermal conductivity of oxide thin films measured by photothermal displacement and reflectance methods," *Appl. Opt.* **32**, 5660 (1993).
40. W. B. Jackson, N. M. Amer, A. C. Boccara, and D. Fournier, "Photothermal deflection spectroscopy and detection," *Appl. Opt.* **20**, 1333 (1981).
41. L. Gallais and M. Commandré, "Simultaneous absorption, scattering, and luminescence mappings for the characterization of optical coatings and surfaces," *Appl. Opt.* **45**, 1416 (2006).
42. J. Dong, R. Lu, T. Zhang, L. Yang, Y. Zhang, Z. Wu, and J. Chen, "Multi-channel averaging detection for fast imaging of weakly absorbing defects in surface thermal lensing," *Review of Scientific Instruments* **89**, 114904 (2018).
43. R. Chow, J. R. Taylor, and Z. L. Wu, "Absorptance behavior of optical coatings for high-average-power laser applications," *Appl. Opt.* **39**, 650 (2000).
44. F. Z. Escola, N. Míngolo, O. E. Martínez, J. J. Rocca, and C. S. Menoni, "Characterization of absorptance homogeneity in thin-film coatings for high-power lasers by thermal lensing microscopy," *Appl. Opt.* **58**, 7233 (2019).
45. M. Leidinger, S. Fieberg, N. Waasem, F. Kühnemann, K. Buse, and I. Breunig, "Comparative study on three highly sensitive absorption measurement techniques characterizing lithium niobate over its entire transparent spectral range," *Opt. Express* **23**, 21690 (2015).
46. K. Vlasova, A. Makarov, N. Andreev, and A. Konovalov, "Minimum Absorption Coefficient Available for Measurements Using Time-resolved Photothermal Common-path Interferometry on the Example of Synthetic Crystalline Quartz," *Sensors & Transducers* **233**, 6–14 (2019).
47. "Optical absorption tests," Stanford Photothermal Solution (2021).
48. N. Lastzka, J. Steinlechner, S. Steinlechner, and R. Schnabel, "Measuring small absorptions by exploiting photothermal self-phase modulation," *Appl. Opt.* **49**, 5391 (2010).
49. J. Steinlechner, L. Jensen, C. Krüger, N. Lastzka, S. Steinlechner, and R. Schnabel, "Photothermal self-phase-modulation technique for absorption measurements on high-reflective coatings," *Appl. Opt.* **51**, 1156 (2012).
50. O. Breitenstein, W. Warta, and M. Langenkamp, *Lock-in Thermography*, Springer Series in Advanced Microelectronics (Springer Berlin Heidelberg, 2010), Vol. 10.
51. F. Liu and L. Gallais, "Absorption measurements in optical coatings by lock-in thermography," *Appl. Opt.* **56**, 9225 (2017).
52. F. Richter, H. Kupfer, P. Schlott, T. Gessner, and C. Kaufmann, "Optical properties and mechanical stress in SiO₂/Nb₂O₅ multilayers," *Thin Solid Films* **389**, 278–283 (2001).

53. L. Yang, E. Randel, G. Vajente, A. Ananyeva, E. Gustafson, A. Markosyan, R. Bassiri, M. Fejer, and C. S. Menoni, "Optical properties and mechanical loss of amorphous Ta₂O₅ thin films bombarded with low energy assist ions," in *Optical Interference Coatings Conference (OIC) 2019* (OSA, 2019), p. FA.6.
54. A. During, C. Fossati, and M. Commandré, "Multiwavelength imaging of defects in ultraviolet optical materials," *Appl. Opt.* **41**, 3118 (2002).
55. S. Papernov, M. D. Brunsman, J. B. Oliver, B. N. Hoffman, A. A. Kozlov, S. G. Demos, A. Shvydky, F. H. M. Cavalcante, L. Yang, C. S. Menoni, B. Roshanzadeh, S. T. P. Boyd, L. A. Emmert, and W. Rudolph, "Optical properties of oxygen vacancies in HfO₂ thin films studied by absorption and luminescence spectroscopy," *Opt. Express* **26**, 17608 (2018).
56. H. Liu, "Atomic layer deposition for high power laser applications: Al₂O₃ and HfO₂," PhD, Leibniz Universität Hannover (2018).
57. V. V. Novopashin, L. A. Skvortsov, and M. I. Skvortsova, "Effect of composition nonstoichiometry on the optical properties of titanium dioxide films," *J. Opt. Technol.* **85**, 803 (2018).
58. F. Z. Escola, N. Mingolo, O. E. Martínez, J. J. Rocca, and C. S. Menoni, "Absorptance homogeneity and its relaxation in thin films by photothermal microscopy," in *Optical Interference Coatings Conference (OIC) 2019* (OSA, 2019), p. TE.2.
59. K. Pfeiffer, S. Shestaeva, A. Bingel, P. Munzert, L. Ghazaryan, C. van Helvoirt, W. M. M. Kessels, U. T. Sanli, C. Grévent, G. Schütz, M. Putkonen, I. Buchanan, L. Jensen, D. Ristau, A. Tünnermann, and A. Szeghalmi, "Comparative study of ALD SiO₂ thin films for optical applications," *Opt. Mater. Express* **6**, 660 (2016).
60. B. Cimma, D. Forest, P. Ganau, B. Lagrange, J.-M. Mackowski, C. Michel, J.-L. Montorio, N. Morgado, R. Pignard, L. Pinard, and A. Remillieux, "Ion beam sputtering coatings on large substrates: toward an improvement of the mechanical and optical performances," *Appl. Opt.* **45**, 1436 (2006).
61. R. Bassiri, C. Clark, I. W. Martin, A. Markosyan, P. G. Murray, J. Tessmer, S. Rowan, and M. M. Fejer, "Investigating the relationship between material properties and laser-induced damage threshold of dielectric optical coatings at 1064 nm," in G. J. Exarhos, V. E. Gruzdev, J. A. Menapace, D. Ristau, and M. Soileau, eds. (2015), p. 963204.
62. R. Flaminio, J. Franc, C. Michel, N. Morgado, L. Pinard, and B. Sassolas, "A study of coating mechanical and optical losses in view of reducing mirror thermal noise in gravitational wave detectors," *Class. Quantum Grav.* **27**, 084030 (2010).
63. Q. Zhang, F. Pan, J. Luo, Q. Wu, Z. Wang, and Y. Wei, "Optical and laser damage properties of HfO₂/Al₂O₃ thin films deposited by atomic layer deposition," *Journal of Alloys and Compounds* **659**, 288–294 (2016).
64. F. Z. Escola, N. Mingolo, O. E. Martínez, J. J. Rocca, and C. S. Menoni, "Investigation of laser annealing mechanisms in thin film coatings by photothermal microscopy," *Opt. Express* **27**, 5729 (2019).
65. Y. Pu, P. Ma, Z. Qiao, M. Zhang, Z. Lu, F. Qiu, and L. Lv, "Annealing effects on microstructure and laser-induced damage threshold of quasi-rugate filters," *Opt. Express* **24**, 23044 (2016).
66. L. Pinard, C. Michel, B. Sassolas, L. Balzarini, J. Degallaix, V. Dolique, R. Flaminio, D. Forest, M. Granata, B. Lagrange, N. Straniero, J. Teillon, and G. Cagnoli, "Mirrors used in

- the LIGO interferometers for first detection of gravitational waves," *Appl. Opt.* **56**, C11 (2017).
67. K. Craig, J. Steinlechner, P. G. Murray, A. S. Bell, R. Birney, K. Haughian, J. Hough, I. MacLaren, S. Penn, S. Reid, R. Robie, S. Rowan, and I. W. Martin, "Mirror Coating Solution for the Cryogenic Einstein Telescope," *Phys. Rev. Lett.* **122**, 231102 (2019).
 68. M. Commandré, P. Roche, J.-P. Borgogno, and G. Albrand, "Absorption mapping for characterization of glass surfaces," *Appl. Opt.* **34**, 2372 (1995).
 69. A. During, M. Commandre, C. Fossati, B. Bertussi, J.-Y. Natoli, J.-L. Rullier, H. Bercegol, and P. Bouchut, "Integrated photothermal microscope and laser damage test facility for in-situ investigation of nanodefekt induced damage," *Opt. Express* **11**, 2497 (2003).
 70. M. Lax, "Temperature rise induced by a laser beam," *Journal of Applied Physics* **48**, 3919–3924 (1977).
 71. C. Wei, "Study of thermal behaviors in CO₂ laser irradiated glass," *Opt. Eng* **44**, 044202 (2005).
 72. M. D. Feit and A. M. Rubenchik, "Mechanisms of CO₂ laser mitigation of laser damage growth in fused silica," in G. J. Exarhos, A. H. Guenther, N. Kaiser, K. L. Lewis, M. J. Soileau, C. J. Stolz, A. Giesen, and H. Weber, eds. (2003), p. 91.
 73. L. Gallais and M. Commandré, "Photothermal deflection in multilayer coatings: modeling and experiment," *Appl. Opt.* **44**, 5230 (2005).
 74. A. Salazar, A. Mendioroz, and A. Oleaga, "Flying spot thermography: Quantitative assessment of thermal diffusivity and crack width," *Journal of Applied Physics* **127**, 131101 (2020).
 75. J.-L. Tissot, "Imagerie IR thermique à base de détecteurs non refroidis," *Techniques de l'ingénieur* (2010).
 76. A. Giesen, H. Hügel, A. Voss, K. Wittig, U. Brauch, and H. Opower, "Scalable concept for diode-pumped high-power solid-state lasers," *Appl. Phys. B* **58**, 365–372 (1994).
 77. A. F. Stewart and W. Hughes, "Measurement of low-absorption optics by thermal imaging," in G. J. Exarhos, A. H. Guenther, K. L. Lewis, D. Ristau, M. J. Soileau, and C. J. Stolz, eds. (2006), p. 64031H.
 78. *Evaluation of Measurement Data — Supplement 1 to the "Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement" — Propagation of Distributions Using a Monte Carlo Method*, BIPM, JCGM 101:2008 (2008).
 79. *Evaluation of Measurement Data — Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement*, BIPM, JCGM 100:2008 (2008).
 80. M. Lequime and C. Amra, *De l'Optique Électromagnétique à l'Interférométrie: Concepts et Illustrations* (EDP Sciences, 2020).
 81. C. Amra and C. Grèzes-Besset, "Couches minces optiques et filtrage interférentiel - Champs et multicouches, synthèse, résonances et modes...," *Techniques de l'ingénieur* (2019).
 82. S. Linow, C. Schneider, S. Geiss, J. Janicka, E. P. Hassel, and F. Rüdiger, "Experimental study of the synthesis of fused silica by direct combustion hydrolysis," *Experiments in Fluids* **32**, 66–75 (2002).

83. F. Nuernberg, M. Stamminger, B. Kuehn, M. Altwein, and R. Takke, "IR grade fused silica for high-power laser applications," (2014).
84. *Quartz Glass for Optics - Data and Propertie* (Heraeus, 2019).
85. J. Harhausen, R. P. Brinkmann, R. Foest, M. Hannemann, A. Ohl, and B. Schröder, "On plasma ion beam formation in the Advanced Plasma Source," *Plasma Sources Sci. Technol.* **21**, 035012 (2012).
86. M. Zhu, K. Yi, D. Arhilger, H. Qi, and J. Shao, "Effect of Advanced Plasma Source bias voltage on properties of HfO₂ films prepared by plasma ion assisted electron evaporation from metal hafnium," *Thin Solid Films* **540**, 17–22 (2013).
87. A. Paolone, E. Placidi, E. Stellino, M. G. Betti, E. Majorana, C. Mariani, A. Nucara, O. Palumbo, P. Postorino, I. Rago, F. Trequattrini, M. Granata, J. Teillon, D. Hofman, C. Michel, A. Lemaitre, N. Shcheblanov, G. Cagnoli, and F. Ricci, "Effects of the annealing of amorphous Ta₂O₅ coatings produced by ion beam sputtering concerning the effusion of argon and the chemical composition," *Journal of Non-Crystalline Solids* **557**, 120651 (2021).
88. M. Polyanskiy, "RefractiveIndex.INFO," <https://refractiveindex.info/>.
89. T. Siefke, S. Kroker, K. Pfeiffer, O. Puffky, K. Dietrich, D. Franta, I. Ohlídal, A. Szeghalmi, E. Kley, and A. Tünnermann, "Materials Pushing the Application Limits of Wire Grid Polarizers further into the Deep Ultraviolet Spectral Range," *Advanced Optical Materials* **4**, 1780–1786 (2016).
90. H. Krol, C. Grèzes-Besset, D. Torricini, and D. Stojcevski, "High performances optical coatings with dual ion beam sputtering technique," in M. Lequime, H. A. Macleod, and D. Ristau, eds. (2015), p. 96270L.
91. X. Liu, D. Li, Y. Zhao, X. Li, and J. Shao, "Characteristics of nodular defect in HfO₂/SiO₂ multilayer optical coatings," *Applied Surface Science* **256**, 3783–3788 (2010).
92. M. Zhu, Y. Kui, F. Zhengxiu, and S. Jianda, "Influence of APS bias voltage on properties of HfO₂ and SiO₂ single layer deposited by plasma ion-assisted deposition," *Chinese Optics Letters* **9**, 023101 (2011).
93. S. B. Khan, Z. Zhang, and S. L. Lee, "Annealing influence on optical performance of HfO₂ thin films," *Journal of Alloys and Compounds* **816**, 152552 (2020).
94. N. Martin, C. Rousselot, D. Rondot, F. Palmino, and R. Mercier, "Microstructure modification of amorphous titanium oxide thin films during annealing treatment," *Thin Solid Films* **300**, 113–121 (1997).
95. N. R. Mathews, E. R. Morales, M. A. Cortés-Jacome, and J. A. Toledo Antonio, "TiO₂ thin films – Influence of annealing temperature on structural, optical and photocatalytic properties," *Solar Energy* **83**, 1499–1508 (2009).
96. S. Chao, W.-H. Wang, M.-Y. Hsu, and L.-C. Wang, "Characteristics of ion-beam-sputtered high-refractive-index TiO₂-SiO₂ mixed films," *J. Opt. Soc. Am. A* **16**, 1477 (1999).
97. C.-C. Lee and C.-J. Tang, "TiO₂-Ta₂O₅ composite thin films deposited by radio frequency ion-beam sputtering," *Appl. Opt.* **45**, 9125 (2006).
98. A. A. Atta, M. M. El-Nahass, A. M. Hassanien, K. M. Elsabawy, M. M. Abd El-Raheem, A. Alhuthali, S. E. Alomariy, and M. S. Algamdi, "Effect of thermal annealing on structural, optical and electrical properties of transparent Nb₂O₅ thin films," *Materials Today Communications* **13**, 112–118 (2017).

99. T. Sertel, N. A. Sonmez, S. S. Cetin, and S. Ozcelik, "Influences of annealing temperature on anti-reflective performance of amorphous Ta₂O₅ thin films," *Ceramics International* **45**, 11–18 (2019).
100. X. Ling, S. Li, M. Zhou, X. Liu, Y. Zhao, J. Shao, and Z. Fan, "Annealing effect on the laser-induced damage resistance of ZrO₂ films in vacuum," *Appl. Opt.* **48**, 5459 (2009).
101. A. S. Hassanien and A. A. Akl, "Optical characterizations and refractive index dispersion parameters of annealed TiO₂ thin films synthesized by RF-sputtering technique at different flow rates of the reactive oxygen gas," *Physica B: Condensed Matter* **576**, 411718 (2020).
102. X. Wang, G. Wu, B. Zhou, and J. Shen, "Thermal Annealing Effect on Optical Properties of Binary TiO₂-SiO₂ Sol-Gel Coatings," *Materials* **6**, 76–84 (2012).
103. A. Méndez-López, O. Zelaya-Ángel, M. Toledano-Ayala, I. Torres-Pacheco, J. F. Pérez-Robles, and Y. J. Acosta-Silva, "The Influence of Annealing Temperature on the Structural and Optical Properties of ZrO₂ Thin Films and How Affects the Hydrophilicity," *Crystals* **10**, 454 (2020).
104. S. Chao, W.-H. Wang, and C.-C. Lee, "Low-loss dielectric mirror with ion-beam-sputtered TiO₂-SiO₂ mixed films," *Appl. Opt.* **40**, 2177 (2001).
105. D. Zhang, C. Wang, P. Fan, X. Cai, G. Liang, J. Shao, and Z. Fan, "Influence of substoichiometer on the laser-induced damage characters of HfO₂ thin films," *Applied Surface Science* **255**, 4646–4649 (2009).
106. G. Abromavičius, S. Kičas, and R. Buzelis, "High temperature annealing effects on spectral, microstructural and laser damage resistance properties of sputtered HfO₂ and HfO₂-SiO₂ mixture-based UV mirrors," *Optical Materials* **95**, 109245 (2019).
107. D. Pjević, M. Obradović, T. Marinković, A. Grce, M. Milosavljević, R. Grieseler, T. Kups, M. Wilke, and P. Schaaf, "Properties of sputtered TiO₂ thin films as a function of deposition and annealing parameters," *Physica B: Condensed Matter* **463**, 20–25 (2015).
108. M. P. Gonullu and H. Ates, "The characteristic evolution of TiO₂/Al₂O₃ bilayer films produced by ALD: Effect of substrate type and wide range annealing temperature," *Superlattices and Microstructures* **142**, 106529 (2020).
109. J. Ni, Q. Zhou, Z. Li, and Z. Zhang, "Oxygen defect induced photoluminescence of HfO₂ thin films," *Appl. Phys. Lett.* **93**, 011905 (2008).
110. L. Gao, F. Lemarchand, and M. Lequime, "Comparison of different dispersion models for single layer optical thin film index determination," *Thin Solid Films* **520**, 501–509 (2011).
111. R. Swanepoel, "Determination of the thickness and optical constants of amorphous silicon," *J. Phys. E: Sci. Instrum.* **16**, 1214–1222 (1983).
112. J.-M. González-Leal, R. Prieto-Alcón, J.-A. Angel, D. A. Minkov, and E. Márquez, "Influence of substrate absorption on the optical and geometrical characterization of thin dielectric films," *Appl. Opt.* **41**, 7300 (2002).
113. J. Sánchez-González, A. Díaz-Parralejo, A. L. Ortiz, and F. Guiberteau, "Determination of optical properties in nanostructured thin films using the Swanepoel method," *Applied Surface Science* **252**, 6013–6017 (2006).

114. A. O'Keefe and D. A. G. Deacon, "Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources," *Review of Scientific Instruments* **59**, 2544–2551 (1988).
115. S. Crunaire, "Développement d'un spectromètre cw-CRDS et son application à l'étude de mécanismes de réaction en chambre de simulation atmosphérique," PhD, Lille I (2005).
116. J. Courtois, "Développements de systèmes multipassages pour application à la spectroscopie d'absorption: Cavity Ring Down Spectroscopy multimode et cellules à passages multiples," PhD, Paris XI Orsay (2009).
117. J. M. Herbelin, J. A. McKay, M. A. Kwok, R. H. Ueunten, D. S. Urevig, D. J. Spencer, and D. J. Benard, "Sensitive measurement of photon lifetime and true reflectances in an optical cavity by a phase-shift method," *Appl. Opt.* **19**, 144 (1980).
118. D. Z. Anderson, J. C. Frisch, and C. S. Masser, "Mirror reflectometer based on optical cavity decay time," *Appl. Opt.* **23**, 1238 (1984).
119. G. A. Marcus and H. A. Schwettman, "Cavity ringdown spectroscopy of thin films in the mid-infrared," *Appl. Opt.* **41**, 5167 (2002).
120. H. Cui, B. Li, S. Xiao, Y. Han, J. Wang, C. Gao, and Y. Wang, "Simultaneous mapping of reflectance, transmittance and optical loss of highly reflective and anti-reflective coatings with two-channel cavity ring-down technique," *Opt. Express* **25**, 5807 (2017).
121. B. Li, H. Cui, Y. Han, L. Gao, C. Guo, C. Gao, and Y. Wang, "Simultaneous determination of optical loss, residual reflectance and transmittance of highly anti-reflective coatings with cavity ring down technique," *Opt. Express* **22**, 29135 (2014).
122. G. Berden and R. Engeln, eds., *Cavity Ring-down Spectroscopy: Techniques and Applications* (Wiley, 2009).