Thermique photo-induite, déflexion photothermique et endommagement laser dans les composants optiques interférentiels.

Mesures d'absorption optique et tenue au flux.

Claude Amra

Institut FRESNEL UMR-CNRS 6133

Sciences et Technologies de l'Optique, l'Électromagnétisme et l'Image

E.N.S.P.M., F-13397 MARSEILLE, FRANCE

clauda.amra@fresnel.fr

1. INTRODUCTION

L'absorption optique et plus récemment la tenue au flux des composants interférentiels est devenue une spécification quasi-incontournable pour une majorité d'applications. Il est ainsi nécessaire de disposer de techniques permettant d'analyser finement les propriétés dissipatives des substrats et matériaux en couches minces pour l'optique. A titre d'exemple et pour fixer les ordres de grandeur, la mise au point d'un matériau en couche mince requiert de réduire son absorption jusqu'à des valeurs inférieures à 10^{-4} ou 10^{-6} du flux incident. Ces absorptions ne sont plus détectables par les techniques classiques de spectrophotométrie (limitées vers 10^{-3}), et il faut faire appel à des procédés plus modernes comme, par exemple, les techniques de déflexion photothermique schématisées en [figure 1 \(a-b\)](#). Le principe de base consiste à dévier un faisceau de faible puissance dit *faisceau sonde* grâce à l'échauffement ou le gradient d'indice provoqué par l'absorption d'un second faisceau dit *faisceau pompe*. On reconnaît ainsi l'effet *mirage* observé sur les autoroutes par forte chaleur, ou la déviation progressive d'un faisceau laser dans un liquide à gradient d'indice (eau sucrée...).

Ainsi l'échantillon à mesurer est, par exemple ([Fig. 1](#)), éclairé sous incidence oblique par un faisceau continu de type laser Argon ou Yag, avec une puissance de l'ordre de la centaine de mW. Ce faisceau pompe est en partie absorbé et il en résulte une élévation de température avec gradient tridimensionnel dans les différents milieux que sont le superstrat (l'air), le composant et le substrat (en général la silice). Le gradient de température crée à son tour un gradient d'indice de réfraction, dans lequel vient se propager un deuxième faisceau (sonde) en incidence rasante ou normale sur l'échantillon. Ce faisceau sonde est dévié par la composante du gradient qui lui est perpendiculaire. La mesure de la déviation ou déflexion du laser sonde est facilitée par les techniques de détection synchrone, à condition de moduler le faisceau pompe à une fréquence Ω relativement basse pour accroître la détectivité du système. Le faisceau sonde est pour cela centré sur un détecteur à deux ou plusieurs quadrants, et l'on mesure, à la pulsation Ω , la différence de tension entre ces quadrants. Ce dernier signal est proportionnel à l'absorption optique du composant que l'on sait alors caractériser moyennant étalonnage préalable incluant la connaissance des paramètres thermiques des milieux. On remarquera que le faisceau sonde peut être parallèle ou perpendiculaire à l'échantillon ; on parle alors de déflexion photothermique transverse ([Fig. 1-a](#)) ou colinéaire ([Fig. 1-b](#)), respectivement.

Cristaux massifs et en couches minces pour l'optique. Élaboration et caractérisation.

© EDP Sciences, 2005

<http://dx.doi.org/10.1051/bib-sfo:20028031>

De façon générale, les phénomènes de thermique photo-induite doivent être maîtrisés dans les filtres optiques, afin de conserver la planéité des échantillons, leur dérive spectrale, réduire les contraintes mécaniques photo-induites ou l'émissivité... Parallèlement, l'endommagement laser ou la tenue au flux des composants, dont l'origine n'est pas exclusivement thermique pour les composants à faibles pertes, mérite une attention particulière que nous développerons ci-après.

a)

b)

FIG. 1. a) Déflexion transverse. b) Déflexion parallèle ou colinéaire.

2. THERMIQUE PHOTO-INDUITE

On se limitera aux phénomènes de conduction de la chaleur, sans traiter les problèmes de convection ou de rayonnement. Cela nous conduira à surestimer les élévations de température. Les paramètres thermiques sont supposés être des scalaires, ce qui signifie que les milieux sont thermiquement isotropes et homogènes.

2.1. Conduction thermique

2.1.1. Conductivité et flux de chaleur

Rappelons qu'il y a écoulement de chaleur lorsque la température n'est pas uniforme. Ceci nous amène à introduire un gradient de température sous la forme d'un vecteur $\mathbf{q}$, densité surfacique de flux de chaleur défini comme :

$$\mathbf{q}(\mathbf{p},t) = -b \text{ grad } T(\mathbf{p},t) \quad (1)$$

où T désigne la température au point $M(\mathbf{p}) = M(\mathbf{r},z) = M(x,y,z)$, b la conductivité thermique du milieu et t le paramètre temps. Cette relation montre tout d'abord que la chaleur s'écoule perpendiculairement aux isothermes. Le vecteur $\mathbf{q}$ permet de quantifier cet écoulement en écrivant le flux de chaleur Q à travers une surface Σ comme :

$$Q = \int_{\Sigma} \mathbf{q} \cdot \mathbf{n} \, d\Sigma \quad (2)$$

où $\mathbf{n}$ désigne la normale à la surface Σ . Ainsi le flux de chaleur à travers le plan $z = 0$ s'écrit par exemple comme :

$$Q_0 = -b \int_r \partial T / \partial z (\mathbf{r},0) \, dr \quad (3)$$

On notera que le flux de chaleur croît avec la conductivité, dont les valeurs en $\text{W/m}^\circ\text{C}$ varient de quelques pour cent (cas de l'air) pour les bons isolants à quelques centaines (cas du cuivre) pour les bons conducteurs.

2.1.2. Equation de la chaleur

En l'absence d'apport d'énergie mécanique (pas de mouvement...) et si l'on néglige la dépendance thermique de la conductivité, on démontre que la répartition spatio-temporelle de la température est régie par l'équation de la chaleur donnée par :

$$\Delta T - (1/a) \partial T / \partial t = -S/b \quad (4)$$

où S désigne la densité volumique de puissance calorifique, caractéristique de la source responsable des phénomènes thermiques. Le paramètre a représente la diffusivité thermique du matériau, dont on verra qu'elle gère la vitesse de transfert des phénomènes thermiques. Ce coefficient vaut, en m^2/s , quelques 10^{-7} pour les isolants et quelques 10^{-5} pour les métaux et gaz. Enfin, diffusivité et conductivité sont liées par la relation :

$$\rho C_p = b/a \quad (5)$$

avec ρ la masse volumique et C_p la chaleur massique du milieu.

2.1.3. Dimensions des grandeurs thermiques

Le flux de chaleur Q donné en (2) est une puissance calorifique et s'exprime donc en watt (W) ou joule par seconde (J.s^{-1}). Le module de la densité de chaleur $|\mathbf{q}| = dQ/dS$ s'exprime ainsi en watt par mètre carré (W.m^{-2}), et la relation (1) donne la conductivité b en watt par mètre et par kelvin ($\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). Enfin, la densité volumique de puissance calorifique S est en W.m^{-3} et l'équation de la chaleur (4) donne la diffusivité a en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$.

2.2. Résolution de l'équation de la chaleur en régime transitoire

Pour simplifier dans une première approche, considérons le problème uni-dimensionnel illustré en [figure 2](#), où seule intervient la coordonnée spatiale z :

$$T = T(z, t) \quad (6)$$

L'équation de la chaleur devient ainsi :

$$\partial T / \partial t (z, t) - a \partial^2 T / \partial z^2 (z, t) = (a/b) S(z, t) H(t) \quad (7)$$

où H désigne la fonction de Heaviside, nulle pour les $t < 0$. Précisons pour notre application que la source de chaleur S n'inclut pas l'apport d'énergie responsable de la température ambiante dans la salle d'expérience. Celle-ci est supposée être initialement en équilibre thermodynamique et tous les éléments qui s'y trouvent sont à la température ambiante T_a . Ainsi l'équation (7) décrit les variations spatio-temporelles de température induites par une source transitoire causale, donc nulle pour les $t < 0$.

FIG. 2. Cas unidimensionnel.

Pour résoudre l'équation (7), on peut tout d'abord l'écrire dans le plan de Fourier et en extraire la solution fréquentielle particulière à l'aide de la fonction de Green du système. On obtient alors une expression analytique simple si l'on suppose que l'aspect temporel de la source est décrit par une impulsion de Dirac :

$$S(z, t) H(t) = S_0(z) \delta(t) \quad (8)$$

$$\Rightarrow T(z, t) = [H(t)/2b] (a/\pi t)^{0.5} \int_{-\infty}^{\infty} S_0(z') \exp[-(z-z')^2/4at] dz' \quad (9)$$

On peut encore simplifier ces expressions si l'on suppose que la source de chaleur est également surfacique et localisée sur le plan $z = 0$:

$$S_0(z) = S_0 \delta(z) \quad (10)$$

$$\Rightarrow T(z, t) = S_0 [H(t)/2b] (a/\pi t)^{0.5} \exp(-z^2/4at) \quad (11)$$

On vérifiera que cette température créée par une source transitoire est nulle à l'origine des temps et à l'infini ([Fig. 3](#)). En un point de côte z , elle est extrême à l'instant $t = z^2/2a$, ce qui montre que la diffusivité croît avec la vitesse de propagation du transfert thermique. Typiquement la constante de temps au voisinage du composant est de l'ordre de quelques μs pour un isolant, pour quelques ns pour un métal. Notons que le « refroidissement » est plus lent avec un comportement asymptotique en $t^{-0.5}$.

FIG. 3. Variation temporelle de la température en un point de côte z .

2.3. Cas du régime harmonique

Revenons maintenant au cas d'une température tri-dimensionnelle dans l'espace :

$$T = T(\mathbf{p}, t) \quad (12)$$

avec $\mathbf{p} = (\mathbf{r}, z)$, et supposons que cette température soit tempérée par rapport à la variable temps. Cela nous autorise à en considérer la transformée de Fourier temporelle :

$$T(\mathbf{p}, t) \rightarrow T(\mathbf{p}, \Omega) \quad (13)$$

$$\text{avec} \quad T(\mathbf{p}, \Omega) = (1/2\pi) \int_t T(\mathbf{p}, t) \exp(j \Omega t) dt \quad (14-a)$$

$$\text{et} \quad T(\mathbf{p}, t) = \int_{\Omega} T(\mathbf{p}, \Omega) \exp(-j \Omega t) d\Omega \quad (14-b)$$

L'équation de la chaleur (4) devient ainsi, dans le plan de Fourier :

$$\Delta T(\mathbf{p}, \Omega) + \alpha^2 T(\mathbf{p}, \Omega) = -S/b \quad (15-a)$$

$$\text{avec} \quad \alpha^2 = j\Omega/a \quad \Leftrightarrow \quad \alpha = (1+j) (\Omega/2a)^{0.5} \quad (15-b)$$

La résolution de (15) nous donnera accès à une solution harmonique qui dépend de la pulsation Ω . En fait cette pulsation variable de Fourier représente la fréquence de modulation du laser pompe :

$$\Omega = 2\pi f \quad \text{avec } f \text{ la fréquence temporelle} \quad (16)$$

Comme précédemment, la fonction de Green du système nous donne immédiatement accès à une solution analytique sous la forme :

$$T(\mathbf{p}, \Omega) = (1/4\pi b) \int_{\mathbf{p}'} [S(\mathbf{p}', \Omega)/|\mathbf{p}-\mathbf{p}'|] \exp[j \alpha |\mathbf{p}-\mathbf{p}'|] d\mathbf{p}' \quad (17)$$

Cette expression se simplifie dans le cas où la puissance calorifique est fournie par un point source :

$$S(\mathbf{p}, \Omega) = S_0(\Omega) \delta(\mathbf{p}) \quad (18-a)$$

$$\Rightarrow T(\mathbf{p}, \Omega) = [S_0(\Omega)/b] (1/4\pi\rho) \exp[-j (\Omega/2a)^{0.5} (1+j) \rho] \quad (18-b)$$

Dans ces conditions, la chaleur diffuse sur une distance R qui est le rayon support de la fonction de Green :

$$R = (2a/\Omega)^{0.5} \quad (19)$$

Cette relation (19) indique que le rayon (la longueur ou largeur, ou profondeur pour une symétrie planaire) de diffusion thermique R varie avec la diffusivité et la fréquence de modulation. Comme illustré en [figure 4](#), ce rayon décroît de quelques centaines de microns à $f = 10$ Hz jusqu'à quelques microns vers le MHz. On pressent donc que, si l'on veut dissocier les paramètres thermiques des couches minces de ceux des milieux extrêmes (superstrat et substrat), il faudra travailler à haute fréquence de modulation.

FIG. 4. Influence de la fréquence de modulation sur le rayon de diffusion thermique.

2.4. Absorption optique comme source de chaleur dans les milieux multicouches et substrats

Considérons à nouveau un système planaire en régime harmonique, avec la symétrie unidimensionnelle ($T = T(z)$). On s'intéresse à un système multicouche plan entre des milieux extrêmes transparents ([Fig. 5](#)). Dans le cas de la thermique photo-induite, la source de chaleur est donnée par l'absorption optique selon la formule connue :

$$dA/dv = (\omega/2) \epsilon'' |E^2(z)| \quad (20)$$

où dA/dv représente la densité volumique d'absorption dans un milieu non-magnétique et E le champ électrique. Les équations se résolvent plus ou moins simplement selon que l'on néglige ou non les variations en z du champ électrique.

Considérons le premier cas, où la longueur de diffusion thermique est grande devant l'épaisseur totale e du multicouche :

$$e \ll R = (2a/\Omega)^{0.5} \quad (21)$$

La source de chaleur peut alors être remplacée par sa moyenne dans l'épaisseur de la couche mince ou du multicouche :

$$S(z) = \langle S \rangle \text{ dans le multicouche} \quad (22-a)$$

$$S(z) = 0 \text{ ailleurs} \quad (22-b)$$

avec $\langle S \rangle = (1/e) \int_z S(z) dz \quad (22-c)$

Précisons que l'approximation (21) n'a de sens que si l'on travaille à basse fréquence de modulation. En effet, comme on l'a vu à propos du rayon de diffusion thermique R en section 2.3, l'utilisation de hautes fréquences confinerait la chaleur dans le multicouche avec un fort gradient vertical (en z).

FIG. 5. Réponse harmonique de la température dans un multicouche, à basse et haute fréquence de modulation.

L'équation (15) est simple à résoudre dans le cas unidimensionnel avec une source constante. Les constantes sont obtenues grâce aux relations de passage traduisant la continuité de la température et des flux de chaleur. On peut également résoudre l'équation de la chaleur dans le cas le plus général, en tenant compte des variations du champ électromagnétique dans le multicouche. On utilisera pour cela, une fois de plus, les fonctions de Green, ce qui revient à remplacer les termes sources par des termes intégraux. De façon générale, les méthodes de résolution sont identiques à celles utilisées pour le calcul de la diffusion lumineuse volumique.

Nous avons discuté jusqu'ici du cas des multicouches. Le cas des substrats absorbants se traite de façon analogue, avec une simplicité accrue par la décroissance exponentielle du champ dans le substrat.

3. DEFLEXION PHOTOTHERMIQUE

La température étant connue, il est aisé d'en déduire le gradient d'indice :

$$\mathbf{grad} n = (\partial n / \partial T) \mathbf{grad} T \quad (23)$$

On va maintenant s'attacher à décrire les différentes déflexions ou déviations que subit le faisceau sonde dans un milieu présentant un faible gradient d'indice.

3.1. Équation eykonale

L'équation eykonale est bien adaptée pour la prédiction de la trajectoire gauche que subit le barycentre de tout faisceau dans un milieu à gradient d'indice de réfraction. On peut l'écrire comme :

$$n(\mathbf{p}) d\mathbf{p}/ds = \int_s \mathbf{grad} n ds \quad (24)$$

où s désigne l'abscisse curviligne du faisceau le long de sa trajectoire ([Fig. 6](#)). Les points $M(\mathbf{p})$ sont placés sur la trajectoire du faisceau. Les déplacements élémentaires de ce faisceau sont ainsi donnés par les projections sur les axes :

$$dx/ds = (1/n) \int_s \partial n / \partial x ds \quad (25-a)$$

$$dy/ds = (1/n) \int_s \partial n / \partial y ds \quad (25-b)$$

$$dz/ds = (1/n) \int_s \partial n / \partial z ds \quad (25-c)$$

Rappelons maintenant que les techniques de déflexion photothermique ne sont indispensables que pour la mesure des faibles absorptions, bien inférieures à 10^{-4} . Les élévations de température et gradients d'indice sont en conséquence très faibles, de sorte que l'on peut négliger, dans la relation ([24](#)), les variations locales de l'indice n devant l'intégrale. Cette approximation permet une intégration directe qui conduit à :

$$\mathbf{p} = s \mathbf{c} + \mathbf{d} \quad (26)$$

Ainsi la trajectoire du faisceau est donnée par une droite de vecteur directeur $\mathbf{c}$ dont les composantes sont données par la relation ([25](#)).

FIG. 6. Déviation du faisceau par un milieu à faible gradient d'indice. Cas transverse.

3.2. Déflexions en configuration transverse et colinéaire

3.2.1. Cas transverse

Plaçons-nous dans le cas d'une configuration transverse, où le faisceau sonde serait parallèle au plan de l'échantillon en l'absence d'absorption. On obtient ainsi, au premier ordre (Fig. 7) :

$$\theta_z = dz/dx = (1/n) \int_x \partial n / \partial z \, dx \quad (27-a)$$

$$\theta_y = dy/dx = (1/n) \int_x \partial n / \partial y \, dx \quad (27-b)$$

Ces expressions donnent les déflexions verticale θ_z et transverse θ_y que l'on pourrait mesurer avec un détecteur à deux quadrants, une fente ou un trou... Le choix de la déflexion à mesurer dépend de l'incidence et la forme du faisceau pompe. On remarquera que c'est bien le gradient perpendiculaire qui crée la déviation.

FIG. 7. Déflexions transverses dans les directions z et y.

3.2.2. Cas colinéaire

Dans le cas d'une déflexion colinéaire (Fig. 8), la relation (26) devient :

$$\theta_x = dx/dz = (1/n) \int_z \partial n / \partial x \, dz \quad (28-a)$$

$$\theta_y = dy/dz = (1/n) \int_z \partial n / \partial y \, dz \quad (28-b)$$

Contrairement au cas transverse, ces intégrales s'effectuent dans les différents milieux.

FIG. 8. Déflexions colinéaires dans les directions x et y.

3.3. Calculs simplifiés de déflexion photothermique

Il ne reste plus qu'à calculer les déflexions données en (27) ou (28). Pour cela, et compte tenu du gradient d'indice en (23), il faut préciser l'expression de la température. De fortes simplifications sont apportées si l'on fait l'hypothèse que la température s'obtient par le produit de la solution unidimensionnelle $T(z)$ par la fonction $f(\mathbf{r})$ qui décrit les variations transverses du faisceau pompe :

$$T(\mathbf{r}, z) = f(\mathbf{r}) T(z) \quad (29)$$

Ceci revient à négliger les effets de diffusion thermique transverse qui s'accroissent lorsque la taille du faisceau pompe diminue. Toutefois la relation (29) va permettre de mettre en évidence des expressions fort utiles pour l'expérimentateur.

3.3.1. Cas transverse

Calculons la déflexion θ_z :

$$\theta_z = dz/dx = (1/n) (\partial n / \partial T) \int_x \partial T / \partial z \, dx \quad (30-a)$$

$$\text{avec} \quad \partial T / \partial z = f(\mathbf{r}) \, dT/dz \quad (30-b)$$

$$\text{On obtient :} \quad \theta_z = (1/n) (\partial n / \partial T) \, dT/dz \int_x f(\mathbf{r}) \, dx \quad (31)$$

Ainsi le signal est proportionnel à la dérivée de la température par rapport à z . On pourra vérifier que cette déviation ne dépend pas de la forme du faisceau pompe, mais seulement de sa puissance. Il s'agit là d'une différence essentielle avec le cas colinéaire. Toutefois ce résultat n'est plus vrai pour la déflexion θ_y .

La phase du signal photothermique est également un paramètre majeur, puisqu'elle caractérise un retard (temporel) du signal thermique par rapport à la référence de modulation. Elle est donnée par l'argument de θ_z . Ce paramètre sera utile pour étalonner la mesure, en particulier pour quantifier l'approche de la surface par le laser sonde.

3.3.2. Cas colinéaire

Le cas colinéaire nous conduit à :

$$\theta_x = dx/dz = (1/n) (\partial n/\partial T) \int_z \partial T/\partial x \, dz \quad (32-a)$$

$$\text{avec} \quad \partial T/\partial x = \partial f/\partial x \, T(z) \quad (32-b)$$

$$\text{On obtient :} \quad \theta_x = (1/n) (\partial n/\partial T) (\partial f/\partial x) \int_z T(z) \, dz \quad (33-a)$$

$$\text{De même :} \quad \theta_y = (1/n) (\partial n/\partial T) (\partial f/\partial y) \int_z T(z) \, dz \quad (33-b)$$

On voit donc cette fois que le facteur de proportionnalité est donné par l'intégrale de la température, et non plus par la dérivée (cas transverse). Cette intégrale se décompose, dans le cas d'une couche mince unique d'épaisseur e , comme :

$$\theta_x = \theta_0 + \theta_1 + \theta_2 \quad (34)$$

$$\text{avec} \quad \theta_0 = (1/n_0) (\partial n_0/\partial T) (\partial f/\partial x) \int_{z<0} T(z) \, dz \quad (35-a)$$

$$\theta_1 = (1/n_1) (\partial n_1/\partial T) (\partial f/\partial x) \int_{0<z<e} T(z) \, dz \quad (35-b)$$

$$\theta_2 = (1/n_2) (\partial n_2/\partial T) (\partial f/\partial x) \int_{z>e} T(z) \, dz \quad (35-c)$$

Ainsi la déflexion colinéaire est la somme des contributions ou déviations dans l'air (θ_0), la couche (θ_1) et le substrat (θ_2). On insistera sur le fait que la somme est algébrique, car les paramètres $\partial n/\partial T$ prennent des valeurs positives ou négatives :

$$(1/n) \partial n/\partial T \approx -1,1 \, 10^{-6} \, K^{-1} \text{ pour l'air} \quad (36-a)$$

$$(1/n) \partial n/\partial T \approx 10^{-5} \, K^{-1} \text{ pour une couche mince} \quad (36-b)$$

$$(1/n) \partial n/\partial T \approx 1,3 \, 10^{-6} \, K^{-1} \text{ pour la silice} \quad (36-c)$$

Ces valeurs peuvent être remises en question pour les couches minces, selon les matériaux et techniques de fabrication.

Contrairement au cas transverse, la relation (35) montre que la valeur de la déflexion dépend du gradient du faisceau pompe via la fonction $\partial f/\partial x$. En conséquence le signal est nul lorsque le faisceau sonde est au centre du faisceau pompe, avec des valeurs extrémales de part et d'autre de cette origine (Fig. 9). Dans le cas d'un faisceau gaussien, de répartition de puissance :

$$P(r) = (P_0/w\sqrt{\pi}) \exp[-(r/w)^2] \quad (37)$$

On obtient les extrema aux valeurs : $x = \pm w/\sqrt{2}$ (38)

FIG. 9. Le signal photothermique colinéaire, dont l'amplitude croît avec l'intégrale de la température, est approximativement proportionnel à la dérivée spatiale du faisceau pompe.

On pourra également montrer que le signal est inversement proportionnel à la taille du faisceau pompe, ou plus exactement à la taille équivalente des faisceaux pompe et sonde (moyenne quadratique des rayons). Enfin, la variation fréquentielle du signal est en $1/\Omega$, ce qui incite à travailler à basse fréquence pour un signal maximal. Cependant, à basse fréquence le signal ne dépend pas des paramètres thermiques de la couche mince, mais uniquement de ceux des milieux extrêmes. Ceci s'explique par la contribution négligeable de l'intégrale 35-b à basse fréquence (Fig. 5). Un compromis est donc nécessaire selon l'objectif recherché (mesure d'absorption ou détermination des paramètres thermiques de la couche). Une alternative existe dans l'utilisation de faisceaux d'impulsions courtes (analogie temps-fréquence).

3.4. Applications et mesure

Différentes configurations peuvent être utilisées pour effectuer des mesures d'absorption par déflexion photothermique (Fig. 10 et Fig. 11). On trouve des faisceaux sonde visible ou Yag, en espace libre (laser He-Ne) ou fibrés (diodes...). Il est vital que ces sources soient stabilisées au mieux, car elles imposent la détectivité du banc de mesure. Les problèmes de bruit (mécanique, acoustique, puissance optique, pointé, parasites électromagnétiques...) sont critiques pour atteindre des performances ultimes. Il faut également contrôler, dans le cas d'une déflexion colinéaire, les modifications de la forme du faisceau pompe au cours du temps.

L'étalonnage constitue également une difficulté majeure ; en effet, il faut disposer d'échantillons étalons dont l'absorption est parfaitement connue. Pour cela, on fait appel à des composants relativement absorbants, du moins dont l'absorption est mesurable par spectrophotométrie. Ceci pose malgré tout plusieurs difficultés :

- Les niveaux d'absorption entre l'étalon ($A > 10^{-3}$) et l'échantillon sous test ($A < 10^{-5}$) sont très différents et l'on peut donc mettre en cause la linéarité de la procédure d'étalonnage, basée sur un développement théorique au premier ordre.

- On a vu que la réponse photothermique est proportionnelle à l'absorption du composant, mais le signal mesuré dépend aussi des paramètres thermiques des milieux substrat et superstrat. En conséquence, il faut un étalon par type de substrat (nature et épaisseur).
- Le cas échéant, selon l'épaisseur du composant et la fréquence de modulation du laser pompe, la réponse photothermique dépend de plus des paramètres thermiques de la couche mince. Il faut alors un étalon par type de matériau.
- Enfin, les étalons utilisés, en raison de leur absorption, sont en général instables et risquent d'évoluer au cours du temps et sous flux laser.

On peut également chercher à augmenter la densité de puissance du faisceau pompe pour améliorer la détectivité, mais on est limité par la potentielle dégradation du composant. Un compromis est donc nécessaire. Enfin, pour créer une sensibilité aux paramètres thermiques de la couche mince, il est indispensable de fonctionner à haute fréquence de modulation ; cependant, l'amplitude du signal photothermique est alors réduite... On retiendra que ces techniques sont d'un accès immédiat dès lors que l'on s'intéresse à des composants métalliques, dont l'absorption est bien supérieure à celle des diélectriques (d'un facteur 10^3 au moins).

FIG. 10. a) Microscope photothermique développé par M. Commandré à l'Institut Fresnel.

FIG. 10. b) Cartographie d'absorption (en ppm) d'un échantillon test (travaux M. Commandré).

FIG. 11. a) Principe du banc de mesure pour l'analyse photothermique des pertes dans un guide d'onde plan (thèses X. Liu, F. Cleva, M. Ranier à l'Institut Fresnel).

FIG. 11. b) Mesure bi-dimensionnelle d'amplitude et de phase du signal photothermique à la propagation guidée planaire dans une couche mince diélectrique (thèse M. Ranier).

4. ENDOMMAGEMENT LASER

L'endommagement des composants optiques sous flux lumineux intense peut avoir différentes origines, selon le mode de fonctionnement du laser (continu ou pulsé, durée de pulse, cadence...), la longueur d'onde d'éclairement (visible, infra-rouge, UV), l'*histoire* de l'échantillon (vieillesse, conditionnement), les conditions de propreté ou nettoyage, le type d'échantillon (matériaux et techniques de fabrication) et les niveaux de pertes, la formule du composant... Ainsi la nature du *claquage* du matériau peut être thermique ou thermo-mécanique (chocs thermiques, fusion, vaporisation, contraintes mécaniques photo-induites), ou électromagnétique (claquage sous champ progressif ou stationnaire). Il faut également prendre en compte les effets non linéaires (autofocalisation, génération d'harmoniques...) et considérer le caractère stochastique du phénomène (densités de défauts, distributions aléatoires de nanocentres), les surintensités dans les hétérogénéités locales... Dans cette partie 4, on se propose de concrétiser une connaissance minimale mais indispensable sur l'endommagement laser.

4.1. Métrologie

La première étape consiste à mettre au point une métrologie de l'endommagement laser. Pour cela l'idée naturelle consisterait à éclairer le composant étudié avec des valeurs d'énergie ou de puissance croissantes, jusqu'à identifier sans ambiguïté une valeur de seuil (Fig. 12) ou LIDT (Laser-Induced Damage Threshold). On disposerait ainsi d'un paramètre macroscopique que l'on pourrait chercher à prédire et analyser via différentes modélisations. Toutefois l'expérience montre que cette approche n'est pas adaptée, pour plusieurs raisons : d'une part, il faut éviter les effets de conditionnement ou de rampe, qui peuvent résulter des éclaircissements répétés sur l'échantillon ; d'autre part, on assiste à une forte dispersion des valeurs de seuil (Fig. 13), liée à la présence de nano- ou micro-centres précurseurs de l'endommagement. Ce résultat complique singulièrement l'investigation des phénomènes de claquage sous flux, et explique les lentes avancées dans le domaine.

FIG. 12. Configuration « idéale ».

Ainsi la procédure utilisée pour la métrologie de l'endommagement laser est la suivante :

- on se place à une énergie ou puissance donnée ;
- la densité d'énergie (ou fluence F) est fixée par l'aire de la zone éclairée ;
- on éclaire N zones de l'échantillon avec cette même densité d'énergie ;
- on compte le nombre $n(F)$ de zones endommagées pour chaque valeur F ;
- on en déduit un estimateur de la probabilité d'endommagement :

$$p(N, F) = n(F)/N \quad (39)$$

- On itère la procédure pour chaque valeur de la densité d'énergie.

On obtient ainsi la courbe de seuil présentée en [figure 13](#). Celle-ci révèle la présence d'une valeur de seuil bas, en dessous de laquelle l'échantillon n'est jamais endommagé ($p = 0$), ainsi qu'une valeur asymptotique de seuil haut, au-dessus de laquelle l'échantillon est toujours endommagé ($p=1$). L'écart entre ces deux valeurs est important et montre une forte dispersion de l'endommagement liée à la présence de micro- ou nano-défauts faiblement distribués, comme nous allons le voir.

a)

b)

FIG. 13. a) 3 zones sur 7 sont endommagées, d'où $p(F) = 3/7$.
b) Courbe de seuil d'endommagement - configuration « réelle ».

Précisons que le critère d'endommagement joue ici un rôle majeur. On peut considérer qu'il y a claquage dès la détection de la moindre modification de l'état de surface ou de volume de l'échantillon ; dans ce cas, il faut préciser la sensibilité des méthodes d'observation (microscope ou diffusion en ligne, AFM à posteriori pour la surface, spectre de luminescence...). Mais on peut également négliger les défauts dont l'évolution sous flux est stationnaire, pour ne retenir que ceux dont l'effet est catastrophique en ligne ; on parle alors de *seuil fonctionnel*. Dans l'un ou l'autre cas, on trouve des valeurs de seuil très différentes mais qui ne doivent pas créer d'ambiguïté si l'on précise bien le critère d'endommagement.

Précisons encore que la procédure citée est adaptée à l'étude de la tenue au flux en laser pulsé, de type *monocoup*. Cela signifie que chaque zone de l'échantillon reçoit, par exemple, une impulsion Yag (1,06 μm) de 7 ns. Aucune zone ne reçoit 2 impulsions, ce qui élimine tout conditionnement potentiel. Mais on peut également, de façon volontaire, conditionner les échantillons en utilisant différentes rampes de puissance, pour chercher à déceler une *fatigue* ou un *durcissement* du matériau sous flux. Enfin, on peut travailler en cadence avec les mêmes procédures..., ou en continu à condition de mesurer les temps d'exposition.

FIG. 14. Banc de métrologie développé à l'Institut Fresnel (en haut) et exemple de mesure (en bas) dans le volume d'un substrat de silice (travaux J.Y. Natoli, thèse L. Gallais).

Un exemple de banc de mesure à coût réduit est présenté en [figure 14](#). Le faisceau Yag utilisé (*laser tir*) délivre une énergie comprise entre 1 mJ et 20 mJ, soit une densité d'énergie pouvant aller jusqu'à 100 ou 10⁴ J/cm², pour des diamètres de spot de 100 µm et 10 µm, respectivement. Notons que les puissances équivalentes (P) sont obtenues en divisant l'énergie (W) par la durée d'impulsion : $P = W/\Delta t$, ce qui conduit à des densités de puissance dépassant le GW/cm² pour un spot de 100 µm de diamètre. Au delà du gain en densité de puissance, l'intérêt de focaliser le faisceau Yag réside dans la possibilité de mesurer l'endommagement en volume, en surface avant ou en surface arrière d'un substrat. Pour obtenir une bonne précision avec des mesures répétables, le faisceau *tir* doit être monomode, avec une répartition spatiale et temporelle contrôlée à chaque tir. Enfin, la probabilité d'endommagement estimée sur N zones conduit à un écart type théorique dont le carré vaut :

$$(\Delta p/p)^2 = (1-p)/Np \quad (40)$$

Cette valeur indique la précision à laquelle il faut s'attendre, indépendamment des performances des instruments. Elle permet de fixer le nombre N de zones à tester à chaque énergie. Un exemple de mesure est donné en [figure 14](#) pour N = 30, ainsi qu'avec 30 valeurs de fluence, soit 900 points de mesure (procédure automatique).

4.2. Approche phénoménologique

Nous montrons ci-dessous qu'une approche phénoménologique, basée sur la présence de nanocentres précurseurs de l'endommagement, permet d'expliquer et d'interpréter avec précision les courbes de seuil mesurées.

4.2.1. Défauts surfaciques

Intéressons-nous à un endommagement à la surface d'échantillons de type substrat ([Fig. 15](#)), et faisons l'hypothèse que le claquage est lié à la présence de nanodéfauts distribués à très faible densité d_s uniforme sur la surface de l'échantillon. On notera T_s le seuil d'endommagement de ces défauts surfaciques.

Considérons maintenant un éclairage $g(r)$ de type gaussien sur l'échantillon en incidence normale :

$$g(r) = F \exp[-2(r/L)^2] = g_{L,F}(r) \quad (41)$$

avec L le rayon du spot à e^{-2} , $F = (\alpha_0/2\omega\mu) E_0^2$ et E_0 le champ électrique. Cherchons maintenant la probabilité pour qu'un défaut de taille bien inférieure au rayon du spot, soit présent et claque sous le faisceau laser. Ceci revient à calculer la probabilité de présence d'un nanocentre dans la région $S_T(F)$ où la densité surfacique d'énergie est plus grande que le seuil d'endommagement T_s des défauts. On obtient rapidement :

$$S_T(F) = (S/2) \ln(F/T_s) \quad (41-a)$$

$$\text{où } S \text{ désigne la surface du spot à } e^{-2}: \quad S = \pi L^2 \quad (41-b)$$

FIG. 15. Présence de défauts de surface, dans l'aire où la densité d'énergie est supérieure au seuil de claquage T_s .

FIG. 16. Tracé de courbes de seuil pour différentes tailles de spot à la surface de substrats, pour une densité de sites de 70 défauts dans un carré de 100 microns de côté.

On pourra alors vérifier simplement que la probabilité de présence de nanocentres dans cette surface S_T est donnée par :

$$p(F) = 1 - \exp[-d_s S_T(F)] = 1 - (F/T_s)^{-(d_s S/2)} \quad (42)$$

En conséquence la courbe de seuil est finalement décrite par :

$$F < T \Rightarrow p(F) = 0 \quad (43-a)$$

$$F > T \Rightarrow p(F) = 1 - \exp[-d_s S_T(F)] \quad (43-b)$$

Ainsi la forme de la courbe de seuil est imposée par la taille du spot d'éclairement et la densité de défauts (**Fig. 16**). Ceci explique l'absence de dispersion (seuil haut $\approx$ seuil bas) des valeurs de seuil lorsqu'on utilise de larges faisceaux (typiquement 1 cm^2) sur des composants en couches minces. Inversement, la mesure de la courbe de seuil avec des petits faisceaux fournit ce paramètre précieux qui est la densité de nano-défauts précurseurs de l'endommagement du matériau. Enfin, précisons pour l'expérimentation que la fluence F ou densité surfacique d'énergie peut être déduite de la mesure E de l'énergie totale (joulemètre étalonné) et de la surface S à e^{-2} (pixélisation de la répartition spatiale du faisceau) :

$$F = 2 E/S \quad (44)$$

4.2.2. Défauts volumiques

Le cas d'une densité volumique de défauts est évidemment plus physique et proche de la réalité. En particulier cette approche permet de travailler indifféremment en surface ou en volume. Par analogie avec le cas surfacique, on pressent que le résultat s'écrira sous la forme :

$$F > T \Rightarrow p(F) = 1 - \exp[-d_v V_T(F)] \quad (45)$$

où d_v est la densité volumique des défauts et V_T le volume dans lequel la densité volumique d'énergie est plus grande que le seuil de claquage volumique T_v des défauts. Ainsi la fonction p représente la probabilité de présence d'un défaut dans le volume V_T .

On peut préciser les valeurs de paramètres à condition de supposer que la propagation du faisceau est décrite par :

$$g(r,z) = F [w_0^2/w^2(z)] \exp[-2r^2/w^2(z)] \quad (46-a)$$

$$\text{avec } w^2(z) = w_0^2 [1 + (z/z_R)^2] \text{ et } z_R = \pi w_0^2/\lambda \quad (46-b)$$

On obtient alors le volume :

$$V_T(F) = (V/2) [u + u^3/6 - \text{Artgu}] \quad (47-a)$$

$$\text{avec } u = (-1 + F/T_v)^{0.5} \quad (47-b)$$

$$\text{et } V \text{ un volume de spot défini comme : } V = (4/3) \pi w_0^2 (2z_R) \quad (47-c)$$

On insistera sur le fait que cette modélisation s'applique lorsque le faisceau est focalisé en surface ou en volume. Le cas d'une focalisation en surface revient à diviser le volume par 2. Enfin, la

généralisation à plusieurs types de défauts, dans les substrats ou multicouches, est immédiate dans le principe.

5. CONCLUSION

Les techniques de microscopie photothermique sont aujourd'hui bien maîtrisées et fournissent un outil unique pour scruter les faibles hétérogénéités de l'indice imaginaire dans les composants optiques, qui ne sont pas accessibles via l'étude des flux radiatifs. La localisation spatiale et verticale de centres isolés ou couches de transition dissipatifs apparaît ainsi comme une clé pour rétro-agir sur la fabrication de composants irréprochables, avec des absorptions de l'ordre de quelques 10^{-6} du flux incident. Ces mêmes techniques doivent permettre de détecter de façon non destructrice les centres initiateurs de l'endommagement sous flux, ce qui demeure un challenge à ce jour.

De nombreux progrès sont attendus quant à la tenue au flux des systèmes optiques, compte tenu de l'activité dans le domaine. Le problème de la métrologie est bien résolu et devrait permettre de rapides progrès dans l'analyse des processus de claquage. On conclura en rappelant les ordres de grandeur de la tenue au flux pour un éclairnement de type monocoup, à la longueur d'onde de $1,06\text{ }\mu\text{m}$, et pour une durée d'impulsion de 7 ns :

- Le volume des substrats de silice supporte une valeur de seuil de l'ordre de 100 J/cm^2 . La densité de sites volumiques est proche de 50 défauts dans un cube de $100\text{ }\mu\text{m}$ de côté.
- La surface de ces substrats polis révèle des valeurs proches de $20\text{ à }50\text{ J/cm}^2$. Les densités de sites sont bien plus importantes (plusieurs ordres de grandeur) et sont liées à la présence de couches de contamination laissées après polissage et (ou) nettoyage.
- Enfin, les couches minces de qualité standard présentent des valeurs de seuil allant de $0,1\text{ à }50\text{ J/cm}^2$, selon les matériaux, formules de filtres et technologies de fabrication.

Ces valeurs sont données pour un critère optimal d'endommagement (« la moindre modification sous flux »), différent du critère *fonctionnel*. On remarquera que les densités de sites initiateurs sont faibles, ce qui rend extrêmement difficile leur localisation par les techniques non optiques classiques (MEB, TEM, FIB, AFM, PSTM...). Enfin, les seuils mesurés correspondent à des valeurs de champ électrique (électromagnétique) de l'ordre de 10^6 V/m - 10^8 V/m , qui sont donc proches des seuils de claquage diélectrique. Avec cet ordre de grandeur, les effets non linéaires doivent être pris en compte.

6. RÉFÉRENCES

L'expertise acquise pour ce cours est le résultat d'actions de recherche menées à l'Institut Fresnel depuis près de 15 ans. En particulier la microscopie photothermique y a été introduite par M. Commandré, professeur à l'ENSPM. Par ailleurs, les techniques de déflexion photothermique à la propagation guidée ont été développées par plusieurs doctorants (X. Liu, F. Cleva, M. Ranier). Enfin et plus récemment, les études d'endommagement laser ont été réalisées en collaboration avec J.Y. Natoli (maître de conférences à l'ENSPM), au cours des thèses de L. Gallais et P. Volto.

1. A.C. Boccara, D. Fournier, W. Jackson et N.M. Amer, Sensitive photothermal deflection technique for measuring absorption in optically thin media, *Opt. Lett.* **5** (1980) 377-379.

2. N.M. Amer, New approaches to photothermal microscopy, *J. Phys.* **44:C6** (1983) 185-190.
3. M. Commandré et E. Pelletier, Measurements of absorption losses in TiO₂ films by a colinear photothermal deflection technique, *Appl. Opt.* **29** (1990) 4276-4283.
4. Z.L. Wu, M. Reichling, X.-Q. Hu, K. Balasubramanian et K.H. Guenther, Absorption and thermal conductivity of oxide thin films deposited by reactive low voltage ion plating measured by photothermal displacement and reflectance methods, *Appl. Opt.* **32** (1993) 5660-5664.
5. E. Welsch et M. Reichling, Micrometer resolved photothermal displacement inspection of optical coatings, *J. Mod. Opt.* **40** (1993) 1455-1475.
6. A. Bodemann, N. Kaiser, M. Reichling et E. Welsch, Micrometer resolved inspection of defects and laser damage sites in UV high-reflecting coatings by photothermal displacement microscopy, *J. Phys. IV* **4** (1994) C7:611-614.
7. M. Reichling, E. Welsch, A. Duparré et E. Matthias, Photothermal absorption microscopy of defects in ZnO₂ and MgF₂ single layer films, *Optical Engineering* **33** (1994) 1334-1342.
8. V. Lorient, J.P. Roger, A.C. Boccara, P. Gleyzes et J.M. Mackowski, Probing of low loss materials at 1.064 μ m for interferometric gravitational wave detection, *J. Phys. IV* **4** (1994) C7:631-634.
9. M. Commandré, P. Roche, J.P. Borgogno et G. Albrand, Absorption mapping for characterization of glass surfaces, *Appl. Opt.* **34** (1995) 2372-2379.
10. E. Welsch et D. Ristau, Photothermal measurements on optical thin films, *Appl. Opt.* **34** (1995) 7239-7253.
11. E. Welsch, Absorption measurements, in *Handbook of Optical Properties Vol I (Thin films for optical coatings)*, R.E. Hummel and K.H. Guenther Eds., CRC Press, Boca Raton (1995).
12. M. Commandré et P. Roche, Characterization of absorption by Photothermal Deflection, in *Thin Films for Optical Systems*, F. Flory Ed., Marcel Dekker Inc. (1995) 329-365.
13. M. Commandré et P. Roche, Characterization of optical coatings by photothermal deflection, *Appl. Opt.* **35** (1996) 5012-5034.
14. R. Chow, J.R. Taylor, Z.L. Wu, C.A. Boccara, U. Broulik, M. Commandré, J. Dijon, A. Giesen, Z.X. Fan, P.K. Kuo, R. Lalezari, K. Moncur, H.J. Oramski, D. Reicher, D. Ristau, P. Roche, B. Steiger, M. Thomas, et M. von Gunten, Absorptance measurements of optical coatings – A Round Robin, *SPIE* **4347** (2001) 62-73.
15. A. Gatto et M. Commandré, Multiscale mapping technique for the simultaneous estimation of absorption and partial scattering of optical coatings, *Appl. Opt.* **41** (2002) 225-234.
16. A. During, C. Fossati et M. Commandré, Multi-wavelength imaging of defects in UV optical materials, *Appl. Opt.* **41** (2002) 3118-3126.
17. N. Bloembergen, Roles of cracks, pores, and absorption inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectric, *Appl. Opt.* **12** (1973) 661-664.
18. P.A. Temple, Examination of laser damage sites of transparent surfaces and films using internal reflection microscopy, *Natl. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.* **568** (1979) 333-341.
19. T.W. Walker, A.H. Guenther et P. Nielsen, Pulsed laser-induced damage to thin-film optical coatings. II Theory, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-17** (1981) 2053-65.
20. R. Wood, *Laser damage in optical materials*, Adam Hilger Press (1986).

21. M.R. Kozlowski et R. Chow, The role of defects in laser damage of multilayer coatings, *SPIE* **2114** (1994) 640.
22. C. Stolz et M.R. Kozlowski, Reduce defects to increase laser damage threshold, *Laser Focus World* **30** (November 1994).
23. M. Reichling, A. Bodeman et N. Kaiser, New insight into defect-induced damage in UV multilayer coatings, *Proc. SPIE* **2428** (1995) 307-316.
24. S. Papernov, A.W. Schid, J. Anzelotti, D. Smith et Z.R. Chrzan, AFM-mapped, nanoscale, absorber-driven laser damage in UV high-reflector multilayers, *SPIE* **2714** (1996) 384-394.
25. J. Dijon, T. Poiroux et C. Desrumeaux, Nano absorbing centers: A key point in laser damage of thin films, *SPIE* **2966** (1997) 315-325.
26. E. Welsch, P. Thomsen-Schmidt, D. Schafer et N. Kaiser, Investigation of the absorption induced damage in ultraviolet dielectric thin films, *Optical Engineering* **36** (1997) 504-514.
27. M.D. Feit, J. Campbell, D. Faux, F.Y. Genin, M.R. Kozlowski, A.M. Robenchik, R. Riddle, A. Salleo et J. Yoshiyama, Modeling of laser-induced surface cracks in silica at 351 nm, *SPIE* **3244** (1998) 350-355.
28. M.F. Koldunov, A.A. Manenkov et I.L. Pokotilo, Thermoelastic and ablation mechanisms of laser damage to the surface of transparent solids, *Quantum Electron.* **28** (1998) 269-273.
29. J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri et C. Amra, Laser-induced damage of materials in bulk, thin-film and liquid forms, *Appl. Opt.* **41** (2002) 3156-3166.
30. L. Gallais, J.Y. Natoli et C. Amra, Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses, *Optics Express* **10** (2002) 1465-1474.
31. L. Gallais et J.Y. Natoli, Optimized metrology for laser damage measurement: application to multiparameter study, *Appl. Opt.* **42** (Février 2003).