

MATÉRIAUX À HAUTE TENUE AU FLUX LASER : MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT ET PROCÉDÉ D'ÉLABORATION

G. DUCHATEAU, A. DYAN, N. MARCHET, P. BELLEVILLE, P. PRENÉ
CEA - Le Ripault

Dans le cadre du programme LMJ, la compréhension et la maîtrise des phénomènes d'endommagement des optiques soumises à un flux laser sont cruciales. En 2007, cette problématique a bénéficié d'avancées significatives, tant au niveau théorique qu'expérimental. Un modèle thermique simple, fondé sur l'agrégation de défauts, a permis de rendre compte des principaux faits expérimentaux. Ce modèle fournit des indications sur la nature des défauts précurseurs responsables de l'endommagement laser. D'autre part, un aspect plus empirique consiste à identifier et à sélectionner les matériaux constitutifs des revêtements sol-gel déposés sur les optiques. Cette sélection de matériaux se fait par des mesures de résistance au flux laser dans les conditions représentatives de l'exploitation sur chaîne, et par une maîtrise des conditions d'élaboration de ces couches minces par voie chimique.

Les composants optiques installés sur les chaînes lasers de puissance doivent répondre à des spécifications sévères en terme de résistance au flux laser (*quelques dizaines de $J.cm^2$*). Il convient de considérer, d'une part la tenue au flux laser du substrat, d'autre part celle des traitements de surface déposés pour lui conférer une propriété optique particulière (*antireflet, réfléchissante, polarisante*). Dans la première partie de cet article, nous présentons une modélisation de l'endommagement laser. Dans la seconde, nous abordons la synthèse expérimentale de matériaux hybrides, dont la mise en forme conduit à des couches minces à haute tenue au flux laser.

La démarche de modélisation que nous avons entreprise consiste à développer une approche fondée sur des hypothèses raisonnables. Elle permet de dresser, de manière indirecte, des conclusions sur la nature des défauts responsables de l'endommagement laser, à partir de la connaissance de quelques grandeurs physiques mesurées expérimentalement [1]. Il est maintenant admis que l'endommagement laser dans les cristaux de *KDP* (KH_2PO_4) résulte d'une forte élévation locale de température [2]. Puisque nous travaillons avec des durées d'interaction de quelques nanosecondes, la diffusion de la chaleur joue un rôle important dans l'évolution temporelle de la température. Par ailleurs, des observations expérimentales montrent la présence

d'hétérogénéités constituées d'agrégats de défauts nanométriques dans le cristal. Notre modèle repose donc essentiellement sur la résolution de l'équation de *Fourier*, où un terme source rend compte de l'absorption de chaque défaut. Pour une configuration donnée des défauts, le champ de température obtenu après le passage de l'impulsion laser permet alors de dire s'il y a eu endommagement. En effectuant des tirages aléatoires de cette configuration, nous en déduisons une probabilité d'endommagement qui dépend de la fluence laser. La *figure 1* illustre le type de résultats obtenus pour la probabilité d'endommagement avec ce modèle.

Nous avons effectué des calculs 1D et 3D pour lesquels la diffusion de la chaleur est permise, respectivement, dans une, puis dans trois directions de l'espace. La géométrie associée des défauts est, respectivement, planaire ou sphérique. La comparaison aux résultats expérimentaux montre que les calculs 1D sont les meilleurs. Nous en déduisons que les défauts responsables de l'endommagement laser dans les cristaux de *KDP* sont, en fait, une collection de défauts planaires qui pourraient être des réseaux de dislocations, des bandes de croissance, ou des défauts d'empilement.

Ainsi, la modélisation nous permet d'identifier des familles de défauts potentiellement responsables de l'endommagement laser des matériaux massifs. En ce qui concerne les matériaux déposés en couche mince, ils doivent satisfaire *a minima* le critère de transparence, et posséder une énergie de gap élevée dans la gamme de longueur d'onde d'utilisation (1053 nm ou 351 nm). En se basant sur ces critères physiques (*largeur de bande interdite, indice de réfraction*) et chimiques (*stabilisation des solutions, nature des solvants*), une identification de matériaux à haut indice de réfraction et à haute tenue au flux a mis en avant l'intérêt des matériaux hybrides organiques-inorganiques synthétisés par le procédé sol-gel [3]. Ce mode d'élaboration, utilisant la dispersion de nanoparticules d'oxydes métalliques ($\gamma\text{-AlO}(\text{OH})$ et ZrO_2) dans un polymère organique, a montré que la tenue au flux d'un composé hybride est significativement améliorée par rapport aux matériaux oxydes de référence [4]. Le verrou principal à lever dans la préparation d'une telle solution hybride consiste à rendre compatible les nanoparticules d'oxydes à surface hydrophile avec les polymères organiques de nature hydrophobe. Cette compatibilité est obtenue par fonctionnalisation des particules (*c'est-à-dire par greffage d'acides carboxyliques ou d'organosilanes*). Elle ne modifie ni la qualité optique des revêtements, ni leur seuil d'endommagement laser. Ainsi, l'optimisation de la fonctionnalisation, grâce au choix des agents de greffage et à l'ajout d'un polymère de haute tenue au flux laser, permet d'améliorer nettement la résistance à l'endommagement d'un matériau oxyde (*figure 2*).

L'étude de l'endommagement laser des matériaux est un sujet vaste et complexe. La recherche de matériaux à haute résistance au flux nécessite de mener, en parallèle et en synergie, des approches théorique et expérimentale. Ce n'est que grâce à cette double démarche que nous comprendrons complètement les phénomènes à l'origine des endommagements sous flux laser, et que nous pourrons maîtriser la durée de vie des composants sur une chaîne laser.

Références

- [1] G. DUCHATEAU, A. DYAN, "Coupling statistics and heat transfer to study laser-induced crystal damage by nanosecond pulses", *Opt. Express*, **15**, p. 4557-4576 (2007).
- [2] C. W. CARR et Al., "Localized dynamics during laser-induced damage in optical materials", *Phys. Rev. Lett.*, **92**, p. 087401 (2004).
- [3] P. BELLEVILLE, C. BONNIN, J.-J. PRIOTTON, "Room-temperature mirror preparation using sol-gel chemistry and laminar-flow coating technique", *J. Sol-Gel Sci. & Tech.*, **19**, p. 223-226 (2000).
- [4] N. MARCHET, P. BELLEVILLE, P. PRENÉ, "Stabilization of inorganic nanoparticles in non-polar solvents for hybrid coatings", soumis à *European Journal of Inorganic Chemistry*.

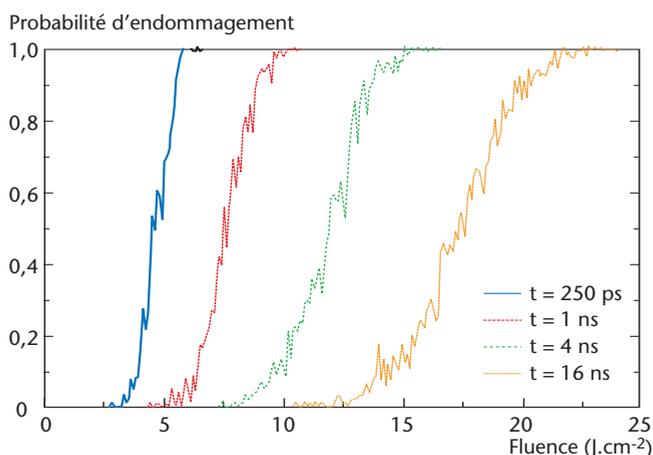


Figure 1
Évolution de la probabilité d'endommagement en fonction de la fluence laser, pour quatre durées d'impulsion (de 0,25 à 16 ns).

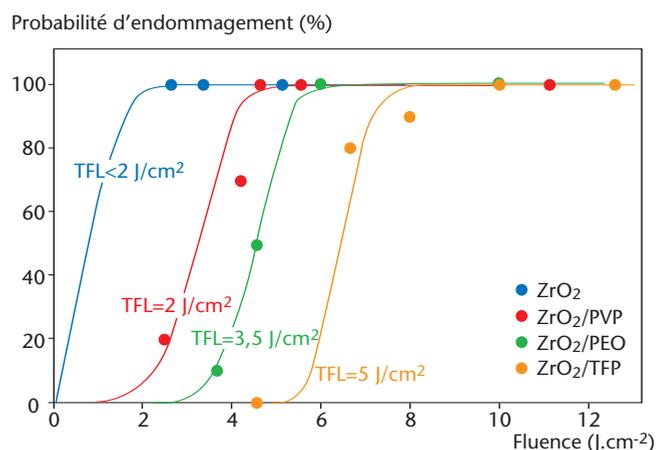


Figure 2
Évolution de la probabilité d'endommagement en fonction de la fluence laser, pour l'oxyde de zirconium et trois matériaux hybrides organiques-inorganiques à base d'oxyde de zirconium et de polymère. La tenue au flux laser (TFL) est mesurée à $\lambda = 351$ nm, durée d'impulsion 12 ns, mode S-on-1.