Endommagement laser multi-longueur d'onde des cristaux de KDP

Sur la base de résultats expérimentaux obtenus en conditions représentatives de l'endommagement laser des cristaux de KDP en régime de conversion de fréquence, nous avons développé un modèle d'endommagement. Ce dernier, qui inclut la présence simultanée de deux impulsions laser de longueur d'onde différente, se fonde sur le transfert de chaleur, la théorie de Mie et un modèle de Drude. La comparaison des résultats expérimentaux et théoriques permet de mieux comprendre les mécanismes physiques mis en jeu. En particulier, on montre qu'un processus d'absorption de 3 photons à 3ω initie l'endommagement laser.

S. Reyné • L. Lamaignère CEA-Cesta G. Duchateau CEA-Le Ripault J.-Y. Natoli Institut Fresnel, Marseille

fin de produire des impulsions laser Nd : verre nanoseconde à 3ω (λ = 351 nm), des cristaux non linéaires de DKDP (KD₂PO₄) sont utilisés en fin de chaîne du LMJ pour sommer l'harmonique fondamental 1ω ($\lambda = 1054$ nm) et le second harmonique 2ω ($\lambda = 532$ nm). Cependant, il a été montré expérimentalement que ces cristaux s'endommagent dans les conditions opérationnelles de conversion de fréquence avec une fluence dont l'ordre de grandeur est $F \approx 10 \text{ J/cm}^2$. Afin d'augmenter la tenue au flux des cristaux dans ce régime, il est donc nécessaire de comprendre les mécanismes physiques d'Endommagement laser (EL) lorsque plusieurs impulsions de longueurs d'onde différentes sont présentes. Pour cela, nous avons mesuré l'évolution de la densité de dommages en fonction des fluences 3ω ($F_{3\omega}$) et 1ω ($F_{1\omega}$) sur un banc laser de laboratoire. L'adaptation d'un modèle d'endommagement mono-longueur d'onde [1] au cas qui nous intéresse nous a alors permis d'interpréter les données expérimentales et d'en déduire des informations sur le scénario de l'EL dans les cristaux de KDP [2].

L'étude expérimentale a été menée avec le laser BLANCO du CEA-Cesta [3]. Il délivre des impulsions d'environ 6 ns avec une largeur de faisceau gaussien à mi-hauteur (1/e) de 450 µm et 700 µm respectivement pour le 3ω et le 1ω . Les tests ont été effectués avec des faisceaux parallèles sur toute l'épaisseur du cristal et une procédure 1/1 [2] pour générer les sites endommagés. Ces derniers sont détectés en utilisant un laser hélium-néon. Sur cette base, la **figure 1** représente l'évolution de la densité de dommages ρ en fonction des fluences 3ω et 1ω . Un motif particulier apparaît : pour les plus grandes densités (> 3 dom./mm³), les courbes iso-densité sont des droites. On peut ainsi écrire $F_{(3\omega,1\omega)} = sF_{1\omega} + F_{3\omega}$ où $F_{(3\omega,1\omega)}$ représente la fluence 3ω induisant une certaine densité de dommages lorsqu'une impulsion 1ω est présente. On voit ainsi qu'il existe un couplage entre les deux longueurs d'onde qui est notamment confirmé par le fait que $\rho(F_{3\omega}F_{1\omega}) > \rho(F_{3\omega}) + \rho(F_{1\omega})$ où $\rho(F_{3\omega})$ et $\rho(F_{1\omega})$ sont les densités de dommages mono-longueur



Figure 1. Évolution de la densité de dommages en fonction des fluences 3ω et 1ω . Les résultats expérimentaux et du modèle (avec $\delta = 3$) sont représentés avec l'échelle de couleurs et les traits pointillés blancs respectivement.



d'onde. Ainsi, il apparaît que la pente *s* rend compte du couplage et, pour les plus grandes densités, sa valeur est s \approx -0,29.

Afin d'interpréter ces comportements, nous avons développé un modèle adapté au cas à deux longueurs d'onde. Ce modèle repose sur l'approche DMT (Drude-Mie-Thermique) [2]. En substance, ce modèle permet de prédire l'élévation de température d'une distribution (en taille) de défauts précurseurs nanométriques qui se transforment rapidement en boules de plasma. Leur absorption Q_{abs} est obtenue avec la théorie de Mie où les indices optiques, qui dépendent de la densité d'électrons de conduction, sont évalués avec un modèle de Drude. La résolution de l'équation de Fourier en géométrie sphérique permet d'obtenir la température T des boules de plasmas à la fin de l'impulsion laser. Lorsque T est supérieure à une température critique ($\approx 10000 \text{ K}$ [4]), on suppose qu'il y a EL. En outre, on peut montrer que $T \propto Q_{abs}^{(\omega)} F_{\omega}$. Dans le cas à deux longueurs d'onde, on a :

$$T \propto Q_{abs}^{(3\omega)}(3\omega, 1\omega)F_{3\omega} + Q_{abs}^{(1\omega)}(3\omega, 1\omega)F_{1\omega}$$

où les coefficients d'absorption, proportionnels à la densité électronique n_e en régime de Rayleigh, dépendent des deux longueurs d'onde dans le cas général car chacune d'elle participe à la production du plasma par absorption multiphotonique. Dans notre cas, on suppose que c'est l'harmonique 3ω qui produit essentiellement les électrons de bande de conduction (BC) car le nombre de photons nécessaires pour la transition $BV \rightarrow BC$ (BV = bande de valence) est significativement plus faible qu'à 1ω et le processus multiphotonique est non linéaire. On peut alors montre [2] que :

$$\begin{split} &Q_{abs}^{(3\omega)}(3\omega,1\omega)\approx Q_{abs}^{(3\omega)}(3\omega)\\ \text{et}\\ &Q_{abs}^{(1\omega)}(3\omega,1\omega)\approx\beta F_{3\omega}^{\delta}\,Q_{abs}^{(1\omega)} \end{split}$$

Figure 2. Évolution de la pente théorique s en fonction de l'ordre multiphotonique δ .

où β et δ sont respectivement une constante et l'ordre multiphotonique associé à l'énergie de photon $3\hbar\omega$. À partir de ce modèle, on est alors capable de prédire l'évolution de la densité de dommages en fonction des fluences $F_{3\omega}$ et $F_{1\omega}$, et en particulier de prédire la valeur de la pente *s*.

La figure 2 montre l'évolution de la pente s en fonction de l'ordre multiphotonique δ . Le meilleur accord avec les données expérimentales (s = -0.29) est obtenu pour δ = 3. Les prédictions en densité de dommages associées à cette valeur de δ sont reportées sur la **figure 1** où l'on voit que l'accord avec le résultat expérimental est bon pour les grandes densités de dommages (courbe en pointillés blancs). La différence qui apparaît aux faibles densités peut s'expliquer par certaines approximations du modèle [2]. Ainsi, ces résultats montrent que la production du plasma, i.e. l'initiation d'un EL, est due à un mécanisme d'absorption de 3 photons d'énergie 3,54 eV (3ω) . Ce mécanisme est cohérent avec la valeur du gap E_g de KDP qui est de l'ordre de 8 eV [5]. En effet, l'absorption de 3 photons est nécessaire pour amener aux électrons une énergie supérieure à E_g afin d'assurer leur (modérées) mises en jeu, on notera que des états intermédiaires dans le gap [5] sont nécessaires afin d'atteindre une densité d'électrons en BC suffisante pour chauffer jusqu'à une température de l'ordre de 10000 K. On en déduit ainsi que l'influence des défauts précurseurs sur la structure électronique de KDP est d'introduire des états supplémentaires dans le gap.

RÉFÉRENCES

[1] A. DYAN, F. ENGUEHARD, S. LALLICH, H. PIOMBINI, G. DUCHATEAU, "Scaling laws in laser-induced potassium dihydrogen phosphate crystal damage by nanosecond pulses at 3 omega", *J. Opt. Soc. Am.*, **25**(6), p. 1087-1095 (2008).

[2] S. REYNÉ, G. DUCHATEAU, J.-Y. NATOLI, L. LAMAIGNÈRE, "Pump-pump experiment in KH_2PO_4 crystals: Coupling two different wavelengths to identify the laser-induced damage mechanisms in the nanosecond regime", *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 121102 (2010).

[3] L. LAMAIGNERE, T. DONVAL, M. LOISEAU, J.C. PONCETTA, G. RAZE, C. MESLIN, B. BERTUSSI, H. BERCEGOL, "Accurate measurements of laser-induced bulk damage density", *Meas. Sci. Technol.*, 20(9), 095701 (2009).

[4] C.W. CARR *et al*, "Localized dynamics during laser-induced damage in optical materials", *Phys. Rev. Lett.*, **92**(8), 087401 (2004).

[5] C.W. CARR, H.B. RADOUSKY, S.G. DEMOS, "Wavelength dependence of laser-induced damage: Determining the damage initiation mechanisms", *Phys. Rev. Lett.*, **91**(12), 127402 (2003).