

N° d'ordre : 3356

THESE

Présentée à

L'UNIVERSITE BORDEAUX I

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES CHIMIQUES

Par **Stéphanie PALMIER**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPECIALITE : CHIMIE-PHYSIQUE

Etude de la pollution particulaire d'une chaîne laser de puissance

Soutenue le **30 mars 2007**

Après avis de :

M. Thibault de RESSEGUIER, Chargé de Recherche CNRS,
M. Philippe THOMAS, Directeur de Recherche CNRS,

Rapporteur
Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

Mme Evelyne FARGIN, Professeur de l'Université de Bordeaux I,
M. Thibault de RESSEGUIER, Chargé de Recherche CNRS,
M. Philippe THOMAS, Directeur de Recherche CNRS,
M. Jean Yves NATOLI, Professeur de l'Université de Marseille,
M. Semyon PAPERNOV, Professeur de l'Université de Rochester,
M. Guillaume RAVEL, Ingénieur CEA Grenoble,
M. Laurent SERVANT, Professeur de l'Université de Bordeaux I,
Mme Isabelle TOVENA, Ingénieur CEA,

Présidente
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Examineur
Examineur
Examineur

Membres invités :

Mme Delphine FAYE, Ingénieur CNES,
M. François GENSDARMES, Ingénieur IRSN.

Remerciements

Les remerciements témoignent qu'une thèse est avant tout une entreprise collective. Si ce travail a été mené à son terme, je le dois à de nombreuses personnes dont je ne pourrai faire la liste exhaustive ici. Je tiens néanmoins à témoigner ma profonde reconnaissance à ceux qui m'ont encadrée, aidée, encouragée.

J'aimerais tout d'abord remercier Bruno Le Garrec, Vincent Dubar et Nathalie Ferriou Daurios de m'avoir successivement accueillie au sein de leur laboratoire du CEA/CESTA et Jean-Claude Rayez au Laboratoire de Physico-Chimie Moléculaire de l'université de Bordeaux 1.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à messieurs Thibault de Resseguier et Philippe Thomas d'avoir accepté la charge de rapporteur. Je voudrais également exprimer ma gratitude à Jean Yves Natoli, Guillaume Ravel, Semyon Papernov, Delphine Faye, et François Gensdarmes qui ont accepté de faire partie du jury de cette thèse, ainsi qu'à Evelyne Fargin qui m'a fait l'honneur de le présider.

Je remercie Laurent Servant et Isabelle Tovina, directeur et responsable de thèse respectivement, pour la liberté qu'ils m'ont laissée dans la réalisation de ce travail. Celui-ci n'aurait pu être réalisé sans l'active collaboration de nombreuses personnes. Je souhaite donc associer à ce travail et remercier particulièrement Jean Luc Rullier pour l'intérêt qu'il a manifesté pour cette étude, ses conseils et les nombreuses discussions que nous avons eues souvent autour d'un thé ainsi que Séverine Garcia pour son aide, sa gentillesse et ses fameux cannelés.

J'adresse également mes remerciements à :

- Colette Belin pour les mesures en AFM, son support et ses conseils toujours avisés,
- Bernard Desbat pour l'aide qu'il m'a apportée pour les mesures en ellipsométrie, spectroscopie infrarouge, sa disponibilité et ses récits de voyage,
- Laurent Lamaignère, Thierry Donval, Marc Loiseau, Roger Courchinoux et Michel Josse pour m'avoir fait bénéficier de leur expérience en « destruction d'optiques »,
- Elisabeth Sellier pour les mesures au MEB et nos discussions autour de ces résultats,
- Karine Vallée et Laurence Beaurain pour leur accueil lors de mes déplacements au laboratoire Sol Gel du CEA le Ripault et leur aide dans le traitement antireflet de mes échantillons,
- Alain Roques à qui j'associe Patrick Combis et Florian Bonneau pour les simulations numériques,
- David Talaga et Jean Luc Bruneel pour les mesures en spectroscopie Raman,
- Bertrand Bertussi et Jérémie Capoulade pour les mesures en microscopie photothermique.

Je tiens également à remercier les personnes qui m'ont conseillée pour conclure au mieux ce travail : Hervé Bercegol, Jérôme Néauport, Claude Rouyer, Jean Paul Goossens et Mireille Commandré.

J'exprime également toute ma sympathie à l'ensemble des personnes qui m'ont accompagnée au cours de cette thèse et qui m'ont permis de trouver ma place dans les différents laboratoires où j'ai été accueillie. Je citerai en particulier Hélène l'unique, Gabrielle

ma « office mate », Nathalie, ma marraine SCAL, Patrick, monsieur propre et les anciens thésard du LPCM où ceux en devenir : Aurélie et Nicolas pour leur gentillesse, Stéphane pour son silence si mystérieux, Javi pour nos longues discussions autour de tapas, Wissam pour son charme libanais, Mathieu, Kilian, Etienne et Pierre Marie l'équipe de chimistes atmosphériques pour nos sympathiques repas au CAES et nos discussions autour du café du 16h.

Enfin, un grand merci à mes parents qui m'ont toujours soutenue, aux « filles » car elles sont toujours là et à celui qui m'a également soutenue, m'a permis de positiver les petits tracas quotidiens et surtout pour sa patience sans faille.

Sommaire

Introduction	5
---------------------------	----------

Chapitre I : Propreté des composants optiques d'une chaîne laser de puissance	8
--	----------

1. Un laser de puissance	8
1.1. <i>Principe de fonctionnement d'un laser</i>	8
1.2. <i>Les lasers de puissance</i>	9
1.3. <i>La Ligne d'Intégration Laser</i>	10
2. Les composants optiques d'un laser de puissance.....	11
2.1. <i>Les plaques amplificatrices</i>	12
2.2. <i>Les miroirs</i>	12
2.3. <i>Les réseaux</i>	13
2.4. <i>Les cristaux non linéaires</i>	13
2.5. <i>Les lentilles et les hublots</i>	13
3. La pollution particulaire d'un laser de puissance	14
3.1. <i>Les différentes pollutions</i>	14
3.2. <i>Description de la pollution particulaire d'une salle propre</i>	15
3.3. <i>Transfert et dépôt de la pollution particulaire</i>	17
3.4. <i>Adhésion de la pollution particulaire sur les surfaces</i>	19
4. Interaction rayonnement laser/matière.....	20
4.1. <i>Cas des particules métalliques</i>	21
4.2. <i>Cas des particules non métalliques</i>	22
4.3. <i>Simulation de l'interaction rayonnement laser/matière</i>	23
4.4. <i>Interaction laser/particule/substrat</i>	24
4.5. <i>Simulation de l'interaction laser/particule/substrat</i>	25

Chapitre II : Démarche expérimentale	27
---	-----------

1. Pastilles carbonées polluées dans la Ligne d'Intégration Laser	27
1.1. <i>Préparation et pollution des pastilles carbonées</i>	28
1.2. <i>Caractérisation de la pollution</i>	30
2. Substrats de silice pollués dans la Ligne d'Intégration Laser.....	32
2.1. <i>Préparation et pollution des échantillons</i>	33
2.2. <i>Caractérisation de la pollution particulaire</i>	35
2.3. <i>Irradiation des disques de silice pollués</i>	36
2.4. <i>Analyse après irradiation</i>	40
3. Substrats de silice pollués par des particules « modèles »	40
3.1. <i>Préparation des échantillons</i>	41
3.2. <i>Caractérisation de la pollution</i>	44
3.3. <i>Irradiation des disques pollués</i>	44
3.4. <i>Analyse après irradiation</i>	45

Chapitre III : Pollution particulaire sous flux laser à 1064 nm.....	47
1. Différents types de pollution étudiés.....	47
1.1. <i>Les particules collectées dans la LIL et particules «modèles»</i>	47
1.2. <i>Les zones de prélèvement de la LIL</i>	48
2. Caractérisation de particules déposées par sédimentation	52
2.1. <i>Taux de pollution</i>	53
2.2. <i>Composition chimique élémentaire</i>	58
2.3. <i>Comparaison entre deux périodes de prélèvement</i>	62
2.4. <i>Conclusion</i>	67
3. Irradiation des particules déposées par sédimentation	67
3.1. <i>Particules collectées sur les substrats de silice</i>	68
3.2. <i>Irradiation des particules</i>	68
3.3. <i>Comparaison avec des particules présentes dans le revêtement antireflet</i>	71
3.4. <i>Conclusion</i>	72
4. Irradiation des particules «modèles».....	73
4.1. <i>Différentes natures de particules</i>	73
4.2. <i>Effet de la fluence du laser</i>	75
4.3. <i>Effet de la forme et de la taille des particules</i>	81
4.4. <i>Influence du nombre d'impulsions laser</i>	88
4.5. <i>Conclusion</i>	92
5. Simulation de l'interaction rayonnement laser/particule/ substrat.....	92
5.1. <i>Effet de l'épaisseur du substrat</i>	93
5.2. <i>Comportement des différents métaux</i>	95
5.3. <i>Prise en compte de l'interface aluminium/silice</i>	96
5.4. <i>Effet de la fluence</i>	98
5.5. <i>Effet de la taille de la particule</i>	103
5.6. <i>Conclusion</i>	104
6. Comparaison de l'effet d'irradiation sur des particules déposées par sédimentation et sur des particules «modèles»	105
6.1. <i>Modification du substrat à l'emplacement initial de la particule</i>	105
6.2. <i>Modification du substrat autour de l'emplacement de la particule</i>	109
6.3. <i>Peu d'évolution de la modification de surface</i>	110
6.4. <i>Conclusion</i>	111
7. Synthèse de l'étude de la pollution particulaire sous flux laser à 1064 nm.....	111
Chapitre IV : La pollution particulaire sous flux laser à 355 nm	113
1. Différents types de pollution étudiés.....	113
1.1. <i>Les particules collectées dans la LIL et les particules « modèles »</i>	113
1.2. <i>Les zones de prélèvement</i>	114
2. Caractérisation des particules déposées par sédimentation	117
2.1. <i>Taux de pollution</i>	117
2.2. <i>Composition chimique élémentaire</i>	120
2.3. <i>Comparaison entre deux sections où la longueur d'onde du laser est différente...</i>	123
2.4. <i>Conclusion</i>	124
3. Caractérisation de la pollution particulaire en suspension dans l'air.....	125
3.1. <i>Concentration volumique des particules pendant une campagne de tirs laser...</i>	125
3.2. <i>Evolution de la concentration volumique émise lors d'un tir laser</i>	128
3.3. <i>Conclusion</i>	129
4. Irradiation à 355 nm de substrats de silice pollués	129

4.1. Particules collectées sur les substrats de silice	129
4.2. Irradiation des particules.....	130
4.3. Irradiation des particules présentes dans le revêtement antireflet.....	131
4.4. Conclusion.....	132
5. Irradiation des particules « modèles ».....	132
5.1. Effet de la fluence du laser.....	133
5.2. Influence de la taille de la particule.....	136
5.3. Conclusion.....	140
6. Simulations numériques de l'interaction rayonnement laser/particule/substrat	140
6.1. Effet de la fluence.....	141
6.2. Effet de la durée d'impulsion	145
6.3. Conclusion.....	147
7. Comparaison entre les résultats obtenus après irradiation à 355 nm et à	
1064 nm	147
7.1. Effet de la longueur d'onde sur le comportement de la particule.....	147
7.2. Effet de la longueur d'onde sur l'état de surface de la silice	149
7.3. Résultats d'irradiation de particules collectées dans la LIL	150
7.4. Conclusion.....	151
8. Synthèse de l'étude de la pollution particulaire sous flux laser à 355 nm.....	151
Chapitre V : Elimination des particules sous flux laser	153
1. Les mécanismes d'enlèvement de particules sous un rayonnement laser	153
1.1. Adhésion d'une particule sur une surface.....	154
1.2. Les techniques d'élimination de particules par irradiation laser.....	155
1.3. Les mécanismes physiques à l'origine du « nettoyage par voie sèche ».....	156
2. Comparaison entre une surface traitée antireflet et une autre non traitée	157
3. Comparaison du positionnement des particules en « face avant » ou en « face	
arrière »	160
3.1. Enlèvement de particules collectées dans la LIL	160
3.2. Enlèvement de particules métalliques « modèles ».....	161
4. Comparaison entre deux longueurs d'onde d'irradiation.....	162
5. Effet de la fluence	164
6. Recommandations	166
Conclusion générale	169
Annexe: les moyens de caractérisation.....	171
1. La microscopie électronique à balayage couplée à un spectromètre à dispersion	
d'énergie.....	171
2. La profilométrie.....	172
3. La microscopie à force atomique	172
4. La microscopie photothermique	173
5. La micro-spectroscopie Raman.....	174
6. Le compteur optique de particules	175

Introduction

Le laser Mégajoule

Jusqu'en 1996, la Direction des Applications Militaires (DAM) du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) réalisait, au Centre d'essais du Pacifique, des expérimentations pour valider, en grandeur réelle, le fonctionnement des armes nucléaires. Après la signature du Traité d'interdiction complète des essais nucléaires, le gouvernement français a confié au CEA la mise en oeuvre du programme Simulation. C'est sur ce programme que va désormais reposer la garantie de la sûreté et de la fiabilité des armes de dissuasion. Il vise à fournir les outils nécessaires à la maîtrise des différents domaines de fonctionnement d'une arme nucléaire. Il comporte trois volets : la physique de base, la simulation numérique et la validation expérimentale. La physique de base est l'ensemble des études destinées à comprendre et à modéliser au plus près de la réalité chaque phénomène de physique élémentaire intervenant dans le fonctionnement des armes. La simulation numérique permet, au moyen de puissants logiciels de calcul, de simuler le fonctionnement d'une arme nucléaire. La validation expérimentale est fondée sur l'exploitation des résultats des essais nucléaires passés et des résultats d'expériences sur de grands outils expérimentaux, que sont Airix et le laser Mégajoule. Airix est une machine radiographique installée en 1999 à Moronvilliers, près de Reims. Le laser Mégajoule (LMJ) sera opérationnel à la fin de la décennie au Centre d'Etudes Scientifiques et Techniques d'Aquitaine (CESTA). Son rôle est de recréer à l'aide de faisceaux laser les conditions de densité et de température nécessaires à la fusion d'une microcible constituée d'atomes de deutérium et tritium. C'est la méthode dite de fusion par confinement inertiel. En apportant une énergie de 1,8 mégajoule par la mise en parallèle de 240 faisceaux laser, l'objectif est d'atteindre l'ignition dans quelques dixièmes de milligramme de matière fusible. C'est cet ensemble des 240 faisceaux laser qui est désigné sous le vocable de laser Mégajoule (LMJ). Le prototype du LMJ, la Ligne d'Intégration Laser (LIL), a été mis en service en 2002 au CESTA. Les composants optiques de telles installations sont nombreux et de grandes dimensions, jusqu'à 40 cm × 80 cm, pour répartir la puissance lumineuse sur une grande surface et éviter leur dégradation prématurée. En effet, bien qu'étant réparti sur une grande surface, le faisceau laser peut provoquer l'endommagement des composants optiques. L'initiation et la croissance des endommagements sont des sujets de recherche majeur pour maintenir les performances attendues (énergie, profil spatio-temporel...) et maîtriser les coûts de maintenance des pièces optiques et d'exploitation de l'installation.

Problématique

Les endommagements laser sur les composants optiques apparaissent sous forme de cratères, filaments ou autres. Dans certaines configurations, ces dommages peuvent croître et limiter ainsi la durée de vie des composants. Ils peuvent également perturber la propagation du faisceau laser et nécessiter le remplacement des pièces ainsi endommagées. De nombreux types d'initiateurs intrinsèques aux composants optiques ont été révélés. Leur nature varie suivant le type de composant considéré : défaut de volume dans le verre ou le cristal, défauts de surface ou de sub-surface induit par le procédé de polissage, défaut intrinsèque au traitement du composant (les nodules par exemple). Des sources externes telles que les contaminants de surface des composants optiques peuvent également jouer un rôle. Le terme contamination désigne tout élément indésirable dans un milieu. Il est très largement utilisé dans la communauté scientifique mais, dans le contexte du LMJ, nous employons le terme

pollution. Ainsi nous évitons les éventuels amalgames entre la contamination synonyme d'empoussièrement et la contamination radiologique. Dans une chaîne laser de puissance, la pollution de surface se présente sous deux formes essentielles : moléculaire et particulaire. L'impact technologique de la pollution moléculaire a été mis en évidence dans les années 1990. Des travaux de recherche montrent que, dans certaines configurations, elle peut être à l'origine d'endommagements laser^{1, 2}. Concernant la pollution particulaire, dans les années 70, I.A. Fersman et L.D. Khasov sont parmi les premiers à s'intéresser au lien entre ces particules et l'apparition d'endommagement laser³. Ce thème a été repris en 1997 par F.Y. Génin, notamment, pour les besoins du projet américain similaire au LMJ, le National Ignition Facility (NIF). Il a mis en évidence l'endommagement de composants optiques en silice induit par l'irradiation d'une pollution de surface^{4, 5}. Notons que ces expériences se sont déroulées dans des conditions particulières : irradiations à fluences très élevées, non représentatives des conditions de fonctionnement du NIF/LMJ. Dans le cadre de la LIL, la pollution particulaire en surface des composants optiques est une préoccupation récente. Bien que sa présence ait été observée, aucune étude n'a permis de connaître avec précision les caractéristiques de ces particules. Un état des lieux de cette grande installation est alors nécessaire. Mais les moyens de contrôle et/ou de caractérisation de la pollution particulaire surfacique ne sont pas standards et sont inexistantes sur la LIL. De plus, peu de travaux ont été réalisés pour qualifier l'évolution d'une réelle pollution particulaire sous un flux laser intense ainsi que son éventuelle implication dans le processus d'endommagement laser des optiques.

Objectif de la thèse

L'objectif de ma thèse est d'étudier la pollution particulaire déposée sur un substrat représentatif d'un composant optique et soumis au rayonnement laser. Cette thèse est la première étude permettant de faire un état des lieux de la pollution particulaire sur des optiques de grandes dimensions, dans une installation abritant un laser de puissance en exploitation tel que la LIL. De par les différents environnements, leur volume, leur gaz ambiant et les matériaux présents, la pollution émise en diverses zones de la LIL peut varier. La caractérisation de cette pollution particulaire de surface a été réalisée dans deux parties de la LIL : celle où le laser se propage à une longueur d'onde de 1053 nm, et celle où il se propage à 351 nm. Elle consiste à déterminer un taux de pollution des surfaces, la dimension et la composition chimique élémentaire des particules. Cette étape nécessite au préalable un prélèvement des particules présentes dans la chaîne laser et l'utilisation des moyens suivants : microscope optique, microscopie électronique à balayage couplé à un spectromètre à rayon X.

Nous avons placé des substrats représentatifs des composants optiques dans la LIL, afin de collecter des particules émises dans chacune des zones étudiées. Ces substrats ainsi pollués sont irradiés en laboratoire sur des bancs de tenue au flux du CEA/CESTA selon des paramètres comparables à ceux du faisceau laser de la LIL. Nous analysons ensuite le comportement de cette pollution particulaire sous flux laser ainsi que les éventuels effets causés sur le substrat.

¹ F.E. Hovis, B. Shepherd, C. Radeliffe, H. Maliborski. Mechanism of contamination induced optical damage in lasers, Proc. of SPIE **2428**, 72 (1994).

² F.E. Hovis, B. Shepherd, C. Radeliffe, A.L. Bailey, W.T. Boswell. Optical damage at the ppm level : the rôle of trace contamination in laser-induced optical damage, Proc. of SPIE **2114**, 145 (1994).

³ I.A. Fersman, L.D. Khasov. The effect of surface cleanliness of optical elements on their radiation resistance, Optiko Mechnicheskaya Promyshlennost, translation Soviet journal of Optical Technology **37**, 627 (1970).

⁴ F.Y. Génin, K. Mitchlitsch, J. Furr, MR. Kozwolski, P. Krulevitch. Laser induced damage of fused silica at 355 and 1064 nm initiated at aluminum contamination particles on the surface, Proc. of SPIE **2966**, 126 (1997).

⁵ K. Mitchlitsch. Laser induced damage initiated on the surface of particle contamination fused silica at 1064 nm, rapport UCRL-LR-130583 (1998).

Parallèlement, nous avons conçu et préparé des substrats de silice représentatifs des pièces optiques de la LIL, porteurs de polluants spécifiques dits « modèles ». L'irradiation des ces échantillons est suivi d'une caractérisation morphologique et optique au moyen notamment de microscopies optique, à force atomique, et photothermique. L'intérêt de cette étude est de maîtriser toutes les caractéristiques des particules, du substrat et du laser. L'ensemble des résultats permet de dégager les paramètres et grandeurs qui pilotent l'interaction laser/particule/substrat optique. Cette étude expérimentale est complétée par des résultats de simulation numérique. La synthèse de ce travail permettra de montrer le comportement des particules sous un rayonnement laser intense sur une surface optique.

Afin de présenter l'ensemble de cette étude, ce manuscrit est structuré comme suit. Dans le chapitre I, nous présentons les principales caractéristiques des lasers de puissance et, en particulier, les propriétés des composants optiques. Nous qualifions ainsi deux des trois composantes de l'interaction laser/particule/composant optique. Nous nous concentrons ensuite sur la pollution particulaire déposée sur les optiques et leur interaction avec le faisceau laser. Le chapitre II est consacré à la description des méthodes et moyens expérimentaux utilisés pour l'étude des échantillons d'optiques pollués dans la LIL et des échantillons « modèles ». Cette démarche s'articule autour de trois étapes essentielles : l'observation voire la caractérisation de la pollution, l'irradiation laser des substrats représentatifs des composants optiques pollués et une nouvelle observation. Les chapitres III et IV ont la même structure ; L'un est consacré aux résultats obtenus sur l'étude de la pollution particulaire sous irradiation laser à 1064 nm et l'autre sur l'étude de la pollution particulaire sous irradiation laser à 355 nm. Il s'agit, d'abord, de déterminer un taux de pollution et la composition chimique des particules collectées dans la partie de la LIL où la longueur d'onde du faisceau laser est 1053 nm ou 355 nm. L'évolution des substrats représentatifs des composants optiques et pollués est observée. Cette étude est complétée par l'analyse d'échantillon porteurs d'une pollution « modèles » soumis au rayonnement laser et la simulation numérique. Dans le dernier chapitre V, nous montrons l'évolution non pas des substrats mais de la pollution particulaire sous le rayonnement laser. Nous étudions ainsi l'élimination des particules sous l'effet d'un rayonnement laser impulsionnel en faisant varier différents paramètres.

Chapitre I : Propreté des composants optiques d'une chaîne laser de puissance

Un laser de puissance est un ensemble de composants optomécaniques et optiques capables de générer et de transporter un faisceau laser de puissance élevée (quelques terawatts). Comme tout système en fonctionnement, cet ensemble génère une pollution susceptible de perturber la propagation du laser. Cette pollution se présente essentiellement sous deux formes : particulaire et moléculaire. Dans ce travail de thèse, nous nous concentrons sur l'étude de la pollution particulaire d'un laser de puissance tel que la Ligne d'Intégration Laser (LIL). Nous nous interrogeons quant à son éventuel impact sur l'endommagement laser des composants optiques. Dans ce chapitre, nous présentons quelques notions utiles pour aider la lecture de ce manuscrit.

1. Un laser de puissance

Le contexte de notre étude est la LIL et le LMJ. Dans cet environnement, la pollution émise est caractéristique de l'activité de la LIL. Nous présentons donc la LIL. Dans cette partie, le principe de fonctionnement et les principales caractéristiques des lasers de puissance sont rappelés brièvement.

1.1 Principe de fonctionnement d'un laser

Le terme « laser » est un acronyme signifiant *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, c'est-à-dire amplification de la lumière par émission stimulée de rayonnement. Un laser est essentiellement composé :

- d'un milieu actif ou milieu amplificateur constitué d'atomes, de molécules, d'ions ;
- d'une source d'énergie pour exciter ces atomes (énergie lumineuse, électrique, chimique, ...)
- d'un résonateur ou cavité optique qui permet de confiner le faisceau laser.

Il existe un nombre considérable de lasers différents selon la combinaison milieu amplificateur - source d'excitation utilisée. Quels que soient le milieu amplificateur et la source d'énergie, les lasers fonctionnent selon le même principe schématisé sur la figure I-1.

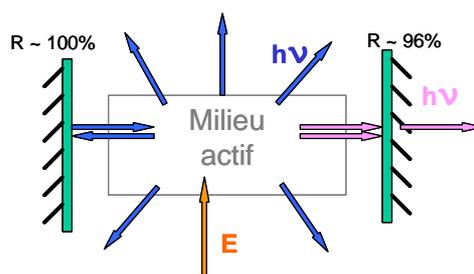


Figure I-1 : Schéma du principe du laser.

Le résonateur est constitué du milieu actif situé entre deux miroirs : un réfléchissant ($R \sim 100\%$, R étant le coefficient de réflexion) et l'autre semi - réfléchissant ($R \sim 96\%$). Le procédé d'excitation consiste à transférer de l'énergie, notée E , au milieu actif. Les atomes (ou molécules ou ions) sont ainsi promus à un niveau d'énergie supérieur. Ils se désexcitent ensuite en émettant des photons, d'énergie $h\nu$, dans toutes les directions à une fréquence fixe et déterminée. C'est le phénomène d'émission spontanée. Certains photons sont réfléchis par les miroirs et renvoyés dans le milieu actif. Ils provoquent l'émission de photons de même énergie par les atomes excités du milieu. Ces derniers sont émis dans la même direction et en phase. C'est le phénomène d'émission stimulée⁶. L'amplification est la succession d'excitation et de désexcitation permettant de générer un nombre de photons identiques de plus en plus important. Elle est entretenue si et seulement si la condition d'inversion de population est respectée : le nombre d'atomes excités est supérieur au nombre d'atomes dans le niveau d'énergie inférieur. Une partie de ce rayonnement est transmise à l'extérieur du résonateur par le miroir semi réfléchissant et constitue le faisceau laser utile.

1.2 Les lasers de puissance

Pour obtenir un faisceau de forte puissance, les différents milieux actifs disponibles sont⁷:

- solides (à rubis, à verre silicate dopé, à grenat dopé, à verre au phosphate...),
- chimiques (à iode, à halogénures de gaz rares...),
- gazeux (gaz carbonique, mélange gazeux, azote).

La longueur d'onde électromagnétique, délivrée par la cavité optique de tels lasers est directement dépendante des propriétés physico-chimiques du milieu actif mis en œuvre. Les plus connus sont : le laser à CO_2 , le laser Nd : YAG, le laser à excimères. Le laser peut fonctionner en régime continu ou pulsé. En régime pulsé, une forte puissance peut être atteinte en un temps court voire très court (jusqu'à la femtoseconde). Selon les applications, un laser sera utilisé en régime pulsé ou continu mais seuls les lasers pulsés à milieu actif solide sont adaptés pour obtenir les conditions physiques (température et densité) nécessaires à la fusion thermonucléaire. C'est donc ce moyen qui a été choisi par le CEA dans les années 60 pour initier la fusion de deux noyaux de deutérium et de tritium.

La réaction de fusion se déclenche par une élévation soudaine de température et de pression. Pour obtenir ces conditions, il a fallu développer des lasers impulsions extrêmement puissants délivrant des énergies de l'ordre du mégajoule en quelques nanosecondes. Une vingtaine d'années a été nécessaire pour mettre au point la technologie laser. Cette nouvelle technologie a été intégrée sur le prototype du LMJ, la Ligne d'Intégration Laser (LIL) qui représente aujourd'hui quatre des 240 faisceaux du futur LMJ. Ce sont des lasers Nd : verre, dont la fréquence est triplée ($\lambda = 351 \text{ nm}$). Les longueurs d'onde élevées engendrent des instabilités lors de l'implosion de la cible. C'est pourquoi des lasers tels que le laser CO_2 ne sont plus utilisés pour ce type d'application. La réalisation d'un laser permettant d'atteindre les conditions requises représente de nombreux défis technologiques : pour que les optiques résistent aux importants flux d'énergie, il est par exemple nécessaire de diminuer la densité d'énergie et d'utiliser plusieurs faisceaux de plusieurs dizaines de centimètres de diamètre, amplifiés séparément puis focalisés simultanément sur la cible. L'amplification en énergie pour le LMJ est réalisée sur un rayonnement de longueur d'onde

⁶ TH. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby, Nature **187**, 493 (1960).

⁷ J.F. Eloy. Les lasers de puissance, Ed. Masson (1985).

1053 nm avant sa conversion de fréquence (UV) en fin de chaîne pour l'interaction finale sur la cible. Quelques caractéristiques de ce faisceau laser sont données et sont comparées avec celles d'un laser commercial Nd :YAG sur la tableau I-1.

	Nd :YAG	Nd : verre pour la LIL/LMJ
Domaine de longueur d'onde	1064 nm/532 nm/355nm	1053 nm/351 nm
Durée d'impulsion	De ps à ms Continu	De l'ordre de ns
Énergie	100 mJ – quelques J	20 kJ/7,5 kJ par faisceau
Cadence typique	10 Hz	quelques impulsions/jour

Tableau I-1: Caractéristiques des lasers de puissance.

Un faisceau laser de la LIL/LMJ fournit une énergie environ 10000 fois plus importante mais à une cadence très faible qu'un laser YAG : Nd. Cette performance est atteinte sur la LIL en utilisant une cavité laser d'une centaine de mètres de longueur, des composants optiques de très haute résistance au flux laser et un faisceau laser de section carrée de 40 cm de côté. Le faisceau laser amplifié est ensuite converti dans l'ultraviolet pour être focalisé sur la cible.

1.3 La Ligne d'Intégration Laser

La LIL est une des trente chaînes laser du LMJ (chacune composée de 8 faisceaux laser). Elle mesure plus de 100 m de long, de 2,5 m de haut et 2 m de large⁸. Cette chaîne laser est composée d'un grand nombre de composants⁹ qui d'un point de vue fonctionnel peuvent être regroupés en trois sous-ensembles principaux représentés sur la figure I-2 : le pilote, la Section Amplificatrice (SA) et le Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (SCF)

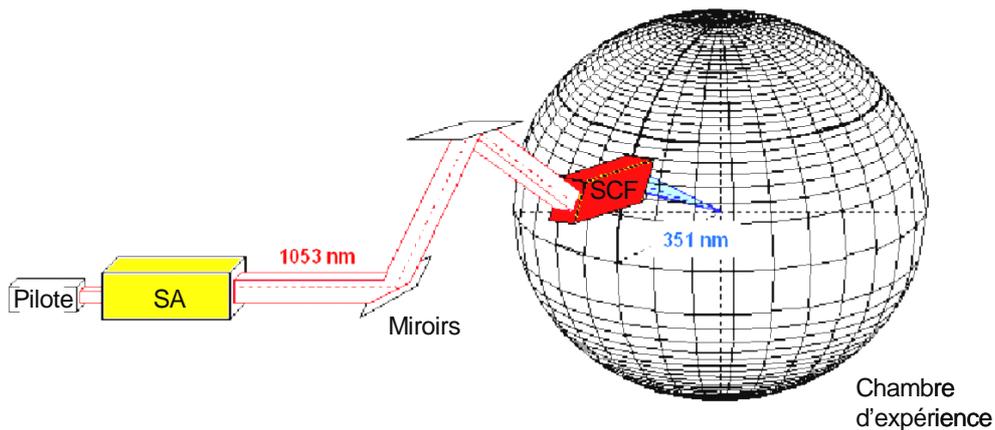


Figure I-2 : Schéma de la Ligne d'Intégration Laser.

⁸ C. Cavailler, N. Fleurot, T. Lonjaret, J.M. Di-Nicola. Prospects and progress at LIL and Mégajoule, Plasma Phys. Controlled Fusion **46**, B135-B141 (2004).

⁹ B. Le Garrec. Le schéma de base du laser Mégajoule et de la Ligne d'Intégration Laser, Chocs **29**, 18, (2004).

Le pilote délivre à faible énergie (1 J maximum par faisceau), la forme temporelle, spatiale et spectrale de l'impulsion laser à 1053 nm. La SA caractérisée par son gain élevé amplifie l'énergie de l'impulsion issue du pilote pour atteindre une énergie d'une vingtaine de kilojoules. Quatre passages dans la section amplificatrice sont nécessaires pour extraire le maximum d'énergie. Lorsque le faisceau est amplifié, une série de six miroirs, qui constituent la section de transport, guident le faisceau jusqu'au SCF. Le faisceau est ensuite guidé par une succession de miroirs jusqu'au SCF. La longueur d'onde du faisceau est alors convertie de 1053 nm à 351 nm et focalisée au centre de la chambre d'expérience. C'est là que se situe la cible¹⁰.

Chacun de ces sous ensembles comporte divers composants optiques dont les propriétés optiques ont été optimisées. De par leur fonction et leur coût, ils constituent les éléments sensibles de la LIL. Dans la partie suivante, la description de ces différents composants optiques va permettre de nous orienter vers le type de substrat à sélectionner pour notre étude.

2. Les composants optiques d'un laser de puissance

De manière générale, dans un laser de puissance pulsé et plus particulièrement dans la LIL et le LMJ, on retrouve six types de composants : les plaques amplificatrices, les lentilles, les hublots, les miroirs, des cristaux non linéaires et des réseaux¹¹. La plupart des composants sont représentés sur la figure I-3 qui décrit le schéma de propagation d'un des huit faisceaux laser de la LIL. Chacun des trois sous ensembles abordés précédemment est représenté de façon plus détaillée pour mieux localiser les différents composants optiques.

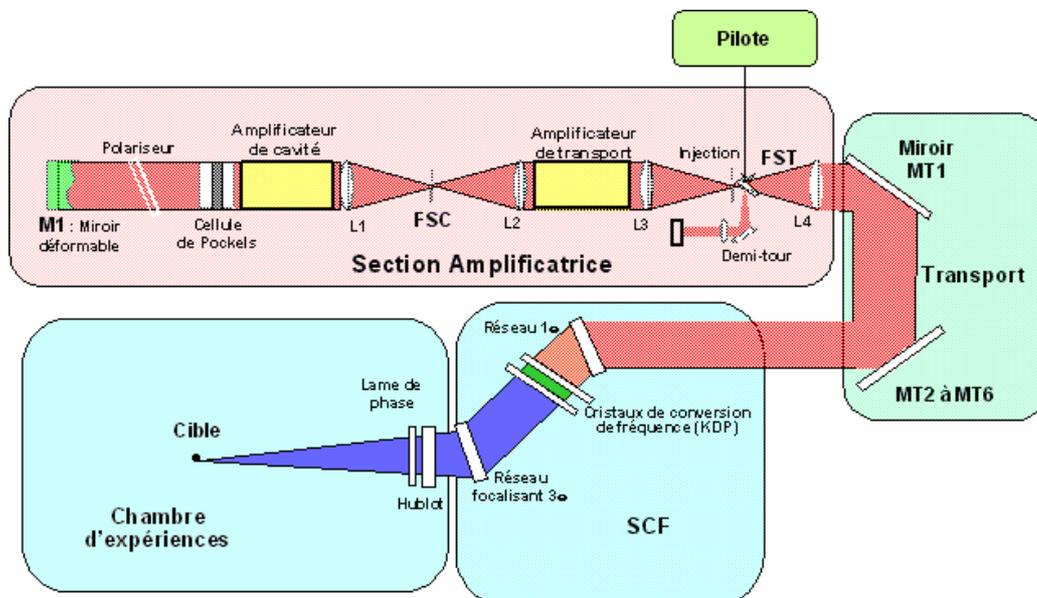


Figure I- 3 : Schéma de propagation du faisceau laser de la LIL.

¹⁰ D. Morlet, P. Baclet. Les cibles pour les lasers de puissance, Chocs **30**, 2 (2004).

¹¹ G. Chabassier, N. Ferriou, J.C. Fornerod, E. Lavastre, C. Maunier, J. Néauport, D. Taroux, D. Valla. Les défis technologiques associés aux optiques, Chocs **29**, 67, (2004).

La Section Amplificatrice est composée de lentilles, d'amplificateurs, de cellules de Pockels associées à des polariseurs, des miroirs¹².

- Les lentilles convergentes, notées de L1 à L4, sont associées deux à deux pour former les Filtrages Spatiaux (de Transport, FST et de Cavit , FSC). Ce sont des syst mes optiques afocaux munis de trous plac s au plan focal commun, appel s trous de filtrage. Ils filtrent les fr quences spatiales parasites du faisceau laser, engendr es par diffraction, pour rendre le profil spatial du faisceau compatible avec la tenue au flux des composants optiques.

- Les amplificateurs sont constitu s de plaques amplificatrices, de lampes flash et de lames pare  clats. Ils amplifient l' nergie du faisceau laser.

- Les cellules de Pockels sont compos es de hublots entre lesquels est confin  un cristal non lin aire. Elles fonctionnent de paire avec les polariseurs¹³. L'ensemble sert de porte optique pour faire tourner la polarisation de la lumi re autorisant ainsi le passage du faisceau. Ce syst me limite la propagation et l'amplification de la lumi re parasite.

- Le plus grand nombre de miroirs est situ  dans la section de transport. Ils guident le faisceau jusqu'au Syst me de Conversion de fr quence et de Focalisation (SCF). Le SCF est  quip  de cristaux convertisseurs de fr quence et de r seaux qui d vient le faisceau laser de 50 degr s¹⁴. Le r seau dit 3ω a aussi pour fonction de focaliser le faisceau sur la cible. Enfin la chambre d'exp rience comporte des hublots et des lames de phase. Cette derni re conf re   la tache focale du laser la forme voulue. Au del  de leur fonction dans la cha ne, les composants optiques sont des mat riaux potentiellement polluants. Ils constituent  galement des surfaces sur lesquelles la pollution peut se d poser. Chacun d'entre eux est d crit ci apr s.

2.1. Les plaques amplificatrices

Les plaques amplificatrices sont des verres phosphate dop s   quelques pour cent avec du n odyme (Nd). Il constitue le milieu actif laser le plus performant r alisable aujourd'hui dans de grandes dimensions. Il permet de disposer d'une grande quantit  d' nergie en un temps tr s court (de l'ordre de la nanoseconde) gr ce aux propri t s physiques de l'ion Nd^{3+} ins r  dans la matrice vitreuse. L'excitation des ions Nd^{3+} n cessite un apport d' nergie communiqu  par des lampes flashes (tubes en quartz) : on parle alors de pompage par lampes flashes. Les plaques amplificatrices sont prot g es des lampes flashes par les lames pare  clats en verre. L'ensemble  met un rayonnement   une longueur d'onde de 1053 nm.

2.2. Les miroirs

Les miroirs sont des pi ces planes en verre recouvertes d'un traitement r fl chissant. Ce rev tement est constitu  de mat riaux di lectriques transparents d pos s en couches altern es de bas et hauts indices de r fraction¹⁵. Ceci permet par un ph nom ne d'interf rences constructives de r fl chir pr s de 100 % de l' nergie incidente. Diff rentes m thodes de d p t peuvent  tre adopt es dont celle par d p t PVD (Physical Vapor Deposition). Le principe de

¹² F. Lani sse, T. Berthier, P. P re. La cha ne de puissance, Chocs **29**, 41, (2004).

¹³ E. Lavastre, J. N auport, J. Duchesne, H. Leplan, F. Houbre. Polarizers coatings for the Laser MegaJoule prototype, Optical Interference Coating proceedings (2004).

¹⁴ E. Journot, A. Adolf, A. Dulac, A. Boscheron. Le syst me de Conversion de fr quence, Chocs **29**, 51, (2004).

¹⁵ J. Dijon, B. Rafin, C. Pell , J. Hue, G. Ravel, B. Andr . One Hundred Joule per square centimeter 1.06 μm mirrors, Proc. of SPIE **3902**, 158 (2000).

base consiste à créer une phase vapeur par un processus physique tel que l'évaporation, la pulvérisation ou l'ablation laser à partir d'un matériau source sous forme solide placé sous vide ou dans une atmosphère à basse pression. Les atomes en phase vapeur se condensent sur le substrat placé en regard de la source.

2.3 *Les réseaux*

Les réseaux sont des composants optiques constitués d'une structure spatiale périodique ou quasi périodique régulière dont la période est proche de celle de la longueur d'onde de la lumière incidente¹⁶. La structure périodique imprimée sur une surface transparente est appelée réseau par transmission. Chaque élément de sa structure périodique se comporte comme une source élémentaire diffractant la lumière. Les interférences constructives de ces sources élémentaires apparaissent dans certaines directions privilégiées qui dépendent du pas du réseau et de l'incidence. La fonction de focalisation est obtenue par courbure locale des traits du réseau.

2.4 *Les cristaux non linéaires*

Le Dihydrogène phosphate de potassium (KDP) et Dihydrogène phosphate de potassium deutéré (DKDP) sont des cristaux de nature hygroscopique utilisés pour leurs propriétés optiques non linéaires¹⁷. Les plaques de KDP et DKDP sont découpées dans d'énormes monocristaux atteignant des dimensions de 60 cm × 60 cm × 60 cm. Ils sont revêtus d'un traitement antireflet réalisé par procédé sol gel et destiné à améliorer leur transmission et réduire les phénomènes de réflexion parasite. Ils sont utilisés sur la LIL pour la rotation de la polarisation électrique de l'onde lumineuse dans la cellule de Pockels, et la conversion de fréquence de la lumière laser.

2.5 *Les lentilles et les hublots*

Les lentilles, les hublots et les lames anti-éclats sont en verre de silice fondue. La silice est homogène et présente peu de défauts (variation d'indice de réfraction, présence de strates, bulles, inclusions ou une structure granulaire). Le verre de silice supporte de grandes variations de température grâce à un coefficient de dilatation peu élevé ($0,5 \cdot 10^{-6}$)¹⁸. Les propriétés optiques d'un verre dépendent essentiellement de sa pureté chimique. Quelques parties par million seulement d'impureté peuvent causer une diminution considérable de la transmission.

La silice utilisée dans la LIL est revêtue d'un traitement antireflet. Le procédé utilisé est le traitement par voie sol-gel¹⁹. Le revêtement est une monocouche, d'épaisseur submicronique,

¹⁶ J. Néauport, E. Journot, G.Gaborit, and P. Bouchut.. Design, optical characterization and operation of large transmission grating for LIL & LMJ facilities, *Appl. Optics* **44**, 16 (2005).

¹⁷ R. Hawley-Fedder, P. Geraghty, S. Locke, M. McBurney, M. Runkel, T. Suratwala, S. Thompson, P. Wegner, P. Whitman. NIF Pockels Cell and Frequency Conversion Crystals, *Proc. of SPIE* **5341**, 121 (2004).

¹⁸ Heraus. Quartz glass for optics, (2005).

¹⁹ H. Floch, P. Belleville, J.J. Priotton. Sol-gel optical coatings for lasers, I, II, and III, *Am. Ceram.Soc. Bull.*, **74**, n° 10, 11, 12 (1995).

composée de nanoparticules de silice colloïdale pour éliminer la réflexion du rayonnement incident par effet d'interférences destructives (adaptation d'indice). Ce film poreux a une rugosité de surface de l'ordre de 3 nanomètres.

Devant le grand nombre de composants en silice sur un faisceau laser LIL/LMJ, notre étude se concentrera sur ce matériau. La silice fait l'objet, depuis des années, d'études menées pour comprendre sa dégradation sous flux laser^{20, 21, 22}. Ainsi, une attention particulière sera faite pour se placer dans les meilleures conditions afin de se dédouaner d'un endommagement intrinsèque de la silice sous irradiation laser et d'évaluer l'influence de la pollution particulaire sur l'initiation d'un endommagement laser en surface des optiques.

3. La pollution particulaire d'un laser de puissance

La contamination, remplacée dans ce document par le terme pollution, est le terme générique qui définit la présence d'entités indésirables dans un environnement, un produit ou un procédé. Dans cette partie, nous définissons les différentes pollutions pour se concentrer sur la pollution particulaire. Selon sa nature et ses dimensions, la pollution particulaire émise peut rester en suspension dans le volume ou se déposer sur les surfaces. Afin de garantir l'environnement propre de la LIL, un contrôle de la pollution aéroportée est effectué. A partir de cas simples, nous décrivons les différents mécanismes de dépôt et d'adhésion des particules sur les surfaces afin d'estimer les grandeurs qui justifient notre étude.

3.1. Les différentes pollutions

La pollution peut être classée selon trois catégories : la pollution microbiologique, moléculaire et particulaire.

- **Pollution microbiologique**

La pollution microbiologique est constituée de micro-organismes vivants dont les bactéries, les virus, les champignons et les algues de taille microscopique. Ils sont généralement adsorbés sur des surfaces. La viabilité des micro-organismes nécessite la présence, dans leur environnement proche, d'eau, de matières organiques et d'oligoéléments. Dans le contexte du LMJ, compte tenu de l'absence de ces éléments nutritifs sur les composants optiques, les risques de biopollution sont très limités. Seules les pollution moléculaire et particulaire sont considérées.

²⁰ M. R. Kozlowski, R. Mouser, S. Maricle, P. Wegner, T. Weiland. Laser Damage performance of fused silica optical components measured on the Beamlet Laser at 351 nm, Proc. of SPIE **3578**, 436 (1999).

²¹ G. Razé, J.-M. Morchain, M. Loiseau, L. Lamaignère, M. Josse, H. Bercegol. Parametric study of the growth of damage sites on the rear surface of fused silica windows, Proc. of SPIE **4932**, 127 (2003).

²² H. Bercegol, A. Boscheron, C. Lepage, E. Mazataud, T. Donval, L. Lamaignère, M. Loiseau, G. Razé, C. Sudre. Selffocusing and surface damage in fused silica windows of variable thickness with UV nanosecond pulses, Proc. of SPIE **5273**, 136 (2004).

- **Pollution moléculaire**

La pollution moléculaire ou ionique est classée en cinq catégories pour répondre aux besoins essentiellement de la microélectronique²³: les bases chimiques (ammoniac, amines...), les métaux (Na, Ca, Fe...), les acides (HCl, HF...), les composés organiques (alcools...), les dopants (Bore, phosphore...). Les sources de cette pollution moléculaire sont le dégazage des matériaux, l'activité humaine, le trafic routier, l'activité industrielle, l'agriculture, la mer, ... Les molécules résultantes peuvent s'adsorber sur les surfaces et former des voiles diffusants ou opaques voire même réagir et altérer chimiquement les surfaces. Dans le cadre du LMJ, des mesures réalisées sur deux ans dans la LIL ont montré une grande variabilité de la pollution moléculaire dans l'espace et le temps²⁴.

- **Pollution particulaire**

La pollution particulaire est composée de particules ou d'amas de particules de composition physico-chimique complexe et de forme très variée. Néanmoins, la plupart du temps, on les assimile à des sphères en volume ou des disques en surface. La taille de ces particules est alors définie par le diamètre ou la dimension du plus grand axe de la particule et s'étend en général du nanomètre au millimètre. Les particules peuvent provenir de l'environnement (air ambiant), du matériel, des équipements, du personnel intervenant... Seule la pollution particulaire sera étudiée dans l'ensemble de ce manuscrit.

3.2. *Description de la pollution particulaire d'une salle propre*

Pour le transport du faisceau laser, dans des conditions maîtrisées et peu variables, la LIL est construite comme un ensemble de salles propres. Une salle propre est définie dans la norme ISO 14644-1 comme « une salle dans laquelle la concentration de particules en suspension dans l'air est maîtrisée... D'autres paramètres pertinents tels que la température, l'humidité et la pression sont maîtrisés comme il convient »²⁵. La température et l'humidité des salles propres de la LIL sont maintenues à 21°C et 50 %. L'entrée et la sortie du matériel et du personnel s'effectuent par des sas selon des procédures déterminées. A l'intérieur de la salle propre, un système de traitement d'air avec filtration permet de maintenir une surpression. L'air provenant de l'extérieur peut être naturellement chargé de composés minéraux et organiques tels que les terpènes, associés aux forêts et leur exploitation et les chlorures associés aux océans²⁶.

Pour qualifier l'état de propreté atmosphérique d'une salle propre, nous utilisons une classification basée sur la mesure de concentrations numériques des particules en suspension dans l'air. La norme ISO 14644-1 définit les classes de propreté pour des particules de dimension comprise entre 0,1 et 5 µm. Elles sont désignées par un numéro de classification N (entier de 1 à 9). La concentration maximale admissible C_N , pour chaque particule de taille d (en µm), prise en compte est donnée par l'équation I-1:

$$C_N = 10^N \times \left(\frac{0,1}{d} \right)^{2,08} \quad \text{Eq. I-1}$$

²³ Norme ISO 14 644-8, Salles propres et environnement contrôlés apparentés.

²⁴ G. Guéhéneux, M. Veillerot, I. Tovenà. Evaluation of the airborne molecular pollution inside the LIL, Nuclear Instruments and Methods **A557**, 676 (2005).

²⁵ Norme NF EN ISO 14 644-1. Salles propres et environnements maîtrisés apparentés.

²⁶ I. Tovenà-Pécault, Salles propres et zones à environnement contrôlé, Ed AFNOR, 52 (2006).

où $0,1$ est une constante exprimée en micromètres et 10^N correspond à la concentration maximale admissible (en particules par mètre cube d'air) des particules en suspension dans la classe ISO N, et dont le diamètre est supérieur ou égal à $0,1 \mu\text{m}$. Le tableau I-2 regroupe les différentes classes ainsi que la concentration maximale tolérée dans chacun des environnements spécifiés pour différentes tailles de particules. A titre indicatif, l'ancienne désignation des classes de salles propres est indiquée.

Classe		Concentrations maximales admissibles (particules/m ³ d'air) en particules de taille égale ou supérieure à celles donnée ci-dessous					
Ancienne désign.	ISO	0.1 μm	0.2 μm	0.3 μm	0.5 μm	1 μm	5 μm
1	3	1 000	237	102	35	8	
10	4	10 000	2 370	1 020	352	83	
100	5	100 000	23 700	10 200	3 520	832	29
1000	6	1 000 000	237 000	102 000	35 200	8 320	293
10000	7				352 000	83 200	2 930
100000	8				3 520 000	832 000	29 300

Tableau I-2: Concentrations maximales admissibles de particules de différentes tailles en fonction des classes de la norme 14644-1.

Plusieurs environnements de la LIL, dont le SCF, sont classés ISO 7, la concentration maximale de particules de diamètre supérieur ou égal à $5 \mu\text{m}$ autorisée est 2930 par m³. Ces spécifications ne considèrent que les particules en suspension dans le volume. Notre objectif est de déterminer quelle pollution se dépose sur les surfaces des composants optiques. Dans le cas réel, il n'y a pas de relation simple entre l'état de propreté volumique de l'environnement dans lequel elle se situe et le niveau de propreté d'une surface. A chaque instant la pollution volumique peut être évacuée par la ventilation de la salle propre contrairement au nombre de particules déposées sur les surfaces qui augmente avec le temps si un nettoyage n'est pas opéré. Or les composants optiques de la LIL ne peuvent être nettoyés *in situ* ni démontés pour subir un nettoyage. C'est pour cela qu'un standard américain IEST 1246 D²⁷ est utilisé pour qualifier l'état initial de propreté de surface des composants optiques avant et surtout lors de l'intégration sur chaîne. Il propose une classification de la propreté particulaire des surfaces. Cette classification est basée sur des niveaux L , correspondant à la taille maximale admise sur une surface de $0,1 \text{ m}^2$. Une concentration surfacique limite C_L , pour toute particule de dimension d (en μm), inférieure à la taille maximale, est établie d'après l'équation I-2.

$$C_L = 10^{0,926 \cdot (\log^2 L - \log^2 d)} \quad \text{Eq. I-2}$$

où $0,926$ est un coefficient obtenu par ajustement. Un niveau de propreté surfacique est défini pour chaque composant intégré dans la LIL. Le tableau I-3 donne un exemple des concentrations surfaciques tolérées par le niveau de propreté désigné par le niveau 100.

Taille des particules (μm)	Nombre de particules maximum par $0,1 \text{ m}^2$
5	1930
15	286
25	84.2
50	11.9
100	1.08

Tableau I-3: Nombre maximal admissible de particules de différentes tailles sur $0,1 \text{ m}^2$ d'une surface spécifiée niveau 100.

²⁷ Norme IEST-STD-CC1246D. Product Cleanliness Levels and Contamination Program.

Par exemple, le niveau 100 autorise 1930 particules de taille comprise entre 5 µm et 100 µm sur une surface de 0,1 m². Bien que cette norme ne soit appliquée dans la LIL, que lors de l'intégration de l'optique dans la LIL, cette valeur sert de référence à un niveau de propreté en exploitation.

3.3. *Transfert et dépôt de la pollution particulaire*

Précédemment, les particules ont été traitées de façon générale pour évaluer des ordres de grandeur de la concentration de particules dans le volume et sur les surfaces. Mais le comportement aérodynamique des particules est complexe et dépend de leur taille. En général, on distingue trois régimes :

- moléculaire pour les particules de l'ordre de quelques nanomètres,
- continu pour les particules de l'ordre du micromètre,
- intermédiaire pour les particules de dimensions comprises entre la dizaine de nanomètres et le micromètre.

Les particules de dimension inférieure au micromètre évoluent selon un mouvement brownien qui tend à rendre leur concentration homogène dans un volume. Les particules qui pourraient perturber la bonne propagation du faisceau laser sont celles de dimensions largement supérieures au micromètre^{28, 29}. Leur taille est suffisamment importante pour ne plus être sensibles au mouvement brownien. Dans une salle propre, leur évolution correspond au régime continu qui décrit un comportement inertiel. Naturellement, dans un gaz au repos, les particules les plus lourdes se déposent par sédimentation. Leur trajectoire rectiligne, ou curviligne, avec ou sans accélération peut être théoriquement calculée en considérant l'équation de l'équilibre des forces. La force de traînée correspond à la force de résistance aérodynamique subie par une particule en mouvement dans un fluide. Si on considère qu'à l'équilibre, le poids d'une particule sphérique de diamètre d (en mètre), de masse volumique ρ (en kg/m³) est égal à la force de traînée, on peut déterminer sa vitesse limite de sédimentation, V_s , par l'équation I-3³⁰.

$$V_s = \frac{d^2 \cdot \rho \cdot g \cdot Cu}{18\mu} \quad \text{Eq. I-3}$$

où g est l'accélération terrestre : 9,8 m/s²,

Cu est le facteur de correction de Cunningham,

μ est la viscosité de l'air : 1,8.10⁻⁵ kg.s⁻¹.m⁻¹.

Le facteur de Cunningham est déterminé en fonction du diamètre de la particule et de son libre parcours moyen. Il permet de différencier le comportement de particules dans un flux de gaz en fonction de son diamètre. Pour une particule sphérique de densité unité, de diamètre 5 µm et de facteur de Cunningham 1, la vitesse de dépôt par gravité est de 8.10⁻⁴ m/s. Cette vitesse est d'autant plus importante que le diamètre de la particule est élevé. Dans un local de concentration volumique de particules, de diamètre d , connue C_d (en part. cm⁻³), homogène et

²⁸ F.Y. Génin, M.D. Feit, M.R. Kozłowski, A.M. Rubenchik, A. Salleo, J. Yoshlyama. Rear surface laser damage on 355 nm silica optics owing to Fresnel diffraction on front-surface contamination particles, Appl. Opt. **39**, 3654 (2000).

²⁹ S. Mainguy, I. Tovenà, B. Le Garrec. Numerical simulations of high power optical laser beam propagation: influence of nature and size of surface contamination particles, Frontiers in Optics-OSA, Rochester (2004).

³⁰ P.A. Baron, K. Willeke. Aerosol measurement, Ed. Wiley, 72 (2001).

constante dans le temps, lorsque la vitesse de dépôt est également connue, le nombre de particules déposées, N_d , est déterminé par l'équation I-4³¹.

$$N_d = C_d \cdot V_s \cdot S \cdot t \quad \text{Eq. I-4}$$

où S est la surface de dépôt en cm^2 ,

t est le temps de dépôt en s,

Dans un local fermé classé ISO 7, nous considérons une concentration volumique maximale en particules, de diamètre $5 \mu\text{m}$, égale à 2930 part./m^3 et homogène. Pour $V_s = 8.10^{-4} \text{ m/s}$, le nombre maximal de particules susceptibles de se déposer sur une surface de 1 cm^2 pendant une journée correspond à 20 particules. Dans une salle propre telle celle de la LIL, nous pouvons donc collecter au plus 20 particules d'une taille supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ par jour déposées par simple sédimentation. En plaçant des substrats collecteurs horizontaux en divers endroits de la LIL pendant une durée déterminée, nous pourrions donc caractériser la pollution particulière de la LIL.

Cependant la pollution qui nous intéresse est celle qui se dépose sur les composants optiques. Or la plupart d'entre eux sont en position verticale. Si la surface est verticale, il n'y a pas de dépôt par sédimentation³². Expérimentalement, B.Y.H. Liu et K. Ahn ont étudié l'empoussièrement de plaquettes en silicium rangées verticalement dans une cassette sous un flux laminaire (avec un flux de $6,35$ à $50,8 \text{ cm/s}$)³³. Les résultats montrent une diminution de la vitesse de dépôt avec l'augmentation du diamètre de la particule. Indépendant de la vitesse d'écoulement du flux unidirectionnel, pour les particules de taille comprise entre $1 \mu\text{m}$ et $10 \mu\text{m}$, la vitesse de dépôt est de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-7} m/s . Ce résultat montre que la pollution des surfaces verticales de la LIL est un phénomène très lent.

Mais d'autres mécanismes peuvent rentrer en jeu dans le dépôt des particules. Par exemple, le déplacement rapide d'une masse d'air, par opposition à un écoulement régulier ou laminaire, est dit turbulent. Ces turbulences entraînent un mouvement aléatoire s'ajoutant à l'écoulement d'air. Le comportement aérodynamique et les propriétés de transport des particules peuvent être modifiés. Lorsque le flux d'air, vecteur des particules, change de direction, les polluants sont, par ailleurs soumis à leur inertie. Si les particules ont une inertie trop importante, elles pourront s'impacter sur les obstacles rencontrés.

Dans le cas d'une chaîne laser, le rayonnement laser sur un matériau induit un champ électrique. Une particule placée dans un champ électrique uniforme subie une force électrique égale, à l'équilibre, à la force de traînée. La vitesse de dépôt, V_e (en m/s), d'une particule de charge q (nombre de charges $\times 1,6.10^{-19} \text{ Coulomb}$), dans un champ électrique, E (en V/m), se calcule alors selon l'équation I-5.

$$V_e = \frac{qECu}{3\pi\mu d} \quad \text{Eq. I-5}$$

En assimilant le rayonnement laser à une onde plane progressive de champ électrique 1.10^4 V/m , par exemple, une particule de $5 \mu\text{m}$ de diamètre dotée de deux charges élémentaires et sur le trajet du laser aura une vitesse de 4.10^{-6} m/s . Cette valeur, relativement faible dans ce cas, peut devenir très importante pour des particules plus chargées ou de diamètres inférieurs. Dans les mêmes conditions que précédemment (local ISO 7), nous obtiendrions environ $0,1 \text{ part.cm}^{-2}$ de dimension supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ déposée par jour. Dans le cadre de la LIL, au bout de 100 jours, nous pouvons obtenir environ 10 particules en

³¹ I. Tovina, S. Palmier, P. Manac'h. Les contaminants particuliers à la surface des composants optiques d'un laser de puissance : de la caractérisation à l'établissement de spécifications, Contamin'Expert (2005).

³² F. Tardif. Mécanismes fondamentaux de contamination de surface dans l'air, cours (1992).

³³ B.Y.H. Liu, K. Ahn. Particle deposition on semiconductor wafers, Aerosol Sci. And Technol. 6, 215 (1987).

surface des composants. Ce chiffre augmente avec le champ électrique qui peut être relativement élevée dans une chaîne laser de puissance. Une particule déposée en surface peut demeurer sur la surface ou simplement tomber. C'est la notion d'adhésion de la pollution particulaire sur la surface qui rentre en jeu.

3.4. Adhésion de la pollution particulaire sur les surfaces

Dans une chaîne laser, le dépôt de particules peut s'effectuer hors fonctionnement par sédimentation et pendant le fonctionnement du laser par les effets cumulés du champ électrique et de la sédimentation. Lorsque les particules entrent en contact avec une surface solide, elles peuvent y adhérer. Les forces correspondantes sont les forces d'adhésion qui dépendent non seulement des propriétés physico-chimiques des particules mais aussi des surfaces.

La force d'adhésion est la force qui s'applique sur la zone de contact entre la particule et la surface et qui retient la particule sur la surface. Elle s'oppose parfois à celle du poids de la particule. La force d'adhésion représente la somme des forces élémentaires suivantes : les forces de Van der Waals, les forces capillaires, les forces coulombiennes. Ces trois forces sont schématisées sur la figure I-4.

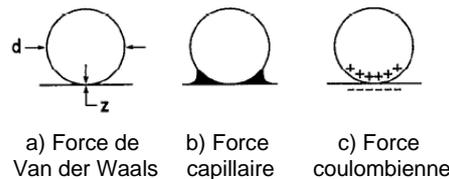


Figure I- 4: Schémas des principales forces d'adhésion d'une particule micronique et submicronique sur la surface.

Les forces de Van Der Waals (figure I-4a) sont des forces d'attraction qui s'exercent entre deux molécules séparées par une distance faible comprise entre une et deux fois environ leur diamètre atomique (notée z sur la figure 4a). Elles proviennent d'interactions microscopiques entre les dipôles dans la matière. Les forces de Van Der Waals dominent l'adhésion des particules (supérieures au micromètre) sur les surfaces sèches et solides.

Sur tout solide dans l'air, une fine couche appelée « couche limite » de vapeur d'eau est présente sur la surface. Son épaisseur varie en fonction du taux d'humidité de l'environnement. Lorsqu'une particule se dépose sur une surface, l'eau peut remonter plus ou moins le long de la particule la retenant ainsi sur la surface : c'est la force capillaire (figure I-4b). Elle est faible sur des surfaces hydrophobes mais peut être élevée sur une surface hydrophile ou en présence d'une humidité relative suffisante. Elle est moins dépendante des caractéristiques géométriques du contact entre la particule et la surface que la force de Van der Waals. Dans de nombreux cas et notamment dans un environnement dont l'humidité relative est élevée, elle peut être supérieure à la force de Van der Waals.

Les forces coulombiennes (figure I-4c) interviennent lorsqu'un corps contenant des charges électriques s'approche d'une surface. Les charges portées par la particule ont tendance à « s'écouler » vers la surface support. Selon la nature de la particule et de la surface, la force coulombienne peut disparaître rapidement (métal sur métal), diminuer très lentement (oxyde sur verre) ou être persistante (isolant sur isolant). A noter que le même

phénomène peut se dérouler entre deux particules chargées qui s'attirent et s'agglomèrent pour former une particule de dimension supérieure ou se repoussent.

Les surfaces sont les frontières solides avec l'extérieur. L'une des caractéristiques les plus utilisées pour décrire la géométrie de surface est la rugosité. C'est la hauteur moyenne des aspérités par rapport à une ligne moyenne. Quelle que soit sa rugosité, la surface constitue un support d'adhésion aux particules. Leur interaction est complexe.

Dans une chaîne laser de puissance, les surfaces sensibles au dépôt de particules sont celles des composants optiques surtout en présence du faisceau laser. Leur surface à l'échelle des particules polluantes n'est pas parfaitement plane. En effet, la surface des optiques a une certaine rugosité qui varie suivant la nature du composant. Par exemple, les miroirs ont une rugosité de 1 nm, la silice polie de 0,5 nm, et celle traitée antireflet 3 nm. Sur une surface rugueuse, les petites particules auront plus de facilité à se loger dans les aspérités que sur une surface lisse. Mais pour celles de taille plus importante, la distance particule-surface augmente et par conséquent, la force de Van der Waals diminue. Indépendamment de leur taille, il apparaît qu'une surface rugueuse soit plus susceptible de capter des particules qu'une surface lisse. Ainsi, les surfaces de silice traitée antireflet devraient être plus polluées que celles sans traitement. La nature du matériau support de la particule joue également un rôle primordial dans les mécanismes d'adhésion. Des liaisons chimiques pourront se créer entre deux matériaux différents par affinités chimiques. Par exemple, le revêtement antireflet étant poreux, des particules hydrophiles auront plus tendance à adhérer que des particules hydrophobes. Les différents composants optiques auront donc tendance à collecter des particules de nature, de forme et de taille différentes selon leur nature. Dans la partie suivante, nous nous concentrons sur le composant optique qui ici nous intéresse, la silice, sur lequel se sont déposées des particules. L'ensemble est soumis au rayonnement laser.

4. Interaction rayonnement laser/matière

Pour analyser l'effet du rayonnement laser sur les composants optiques pollués par des particules, nous abordons cette interaction complexe en plusieurs étapes. La première consiste à considérer l'irradiation laser d'une particule seule. Selon sa nature métallique, minérale ou organique ou selon les paramètres du rayonnement laser, différents phénomènes se produisent. Ces derniers peuvent évoluer au cours de l'interaction. Dans le cas d'une irradiation laser d'intensité élevée, la fonction diélectrique du matériau se modifie très rapidement, ce qui conduit à des variations très importantes des propriétés optiques. Les effets associés à l'interaction d'un faisceau laser intense avec un matériau peuvent être classés en quatre grandes catégories :

- Le dégagement de chaleur et les variations associées des caractéristiques du matériau (électroniques, optiques, thermiques, densité, changements de phase, etc...) ;
- les effets électroniques tels que la création de porteurs libres par transitions interbandes et les processus d'avalanche d'ionisation dans les semi conducteurs et les isolants provoquant l'augmentation brutale du coefficient d'absorption ;
- les effets non linéaires liés au champ électrique très intense, auto focalisation et effets multiphotoniques ;
- les effets mécaniques susceptibles de conduire à une éjection de matière c'est-à-dire l'ablation (apparition de contraintes, chocs...).

Ces processus sont en général très dépendants les uns des autres et interviennent simultanément. Les conséquences sur le matériau sont multiples et caractéristiques de sa nature chimique. C'est donc ce paramètre, la nature physico chimique qui va conduire notre description de l'interaction laser/matière. Ce type d'interaction peut être simulée numériquement par des codes spécifiques qui seront décrits brièvement.

La deuxième étape considère la particule déposée sur son substrat, le composant optique. L'irradiation de ce système peut parfois provoquer l'apparition d'endommagement laser. Ce terme sera défini. Pour comprendre l'initiation d'éventuel endommagement par irradiation de composant optique pollué, la simulation numérique pourra également être mise en oeuvre.

4.1. Cas des particules métalliques

La structure mécanique de la LIL est métallique. Tout défaut d'alignement du faisceau laser ou tout rayonnement parasite peut provoquer l'émission de particules métalliques. Les particules métalliques ainsi émises peuvent se déposer sur les composants optiques et être à nouveau soumis au rayonnement laser. L'énergie du laser étant croissante dans la section amplificatrice, il est donc possible d'observer différents phénomènes.

Lorsqu'un rayonnement électromagnétique de faible intensité interagit avec un métal, les électrons de conduction jouent alors un rôle dominant. Les propriétés optiques étant reliées à la conductivité électronique (par la relation de Drude) vont dépendre de la longueur d'onde. Trois phénomènes peuvent être observés schématiquement pour la majorité des métaux :

- absorption du rayonnement : lorsque la longueur d'onde du rayonnement est dans l'Infra Rouge (IR) lointain, les électrons acquièrent l'énergie apportée par le rayonnement et la redistribuent au réseau atomique par collision.

- réflexion du rayonnement : lorsque la longueur d'onde du rayonnement est dans l'IR proche, visible et UltraViolet (UV), les électrons ne peuvent plus transmettre au réseau l'énergie du rayonnement et elle est donc réfléchi.

- transmission du rayonnement : lorsque la longueur d'onde du rayonnement est dans l'UV lointain, les électrons ne peuvent plus suivre les oscillations du champ électromagnétique, il n'y a plus d'interaction et le matériau est transparent. Or dans ce domaine de longueur d'onde, apparaît souvent d'autres phénomènes tels que la transition interbandes qui n'est plus régie par la simple théorie de Drude.

A une intensité du rayonnement plus élevée, l'énergie absorbée provoque des conséquences variables sur le matériau. Différents processus initiaux peuvent conduire parfois à la fracturation, la fusion ou l'ablation du matériau c'est-à-dire une éjection de la matière. En général, l'ablation s'opère au cours de l'irradiation d'un métal par un laser IR. Nous considérons deux longueurs caractéristiques : L_{abs} , la profondeur de pénétration de l'onde électromagnétique dans le matériau et L_{diff} , la longueur de diffusion thermique. L'utilisation de laser dont la durée d'impulsion est dans le domaine de la nanoseconde pourra conduire dans la pratique à différents types de situation :

- soit $L_{diff} \gg L_{abs}$, l'énergie déposée dans le volume d'épaisseur L_{abs} est transformée en chaleur qui se propage dans le matériau suivant les lois du transfert thermique.

- soit $L_{diff} \ll L_{abs}$, l'énergie absorbée dans le volume d'épaisseur L_{abs} se dissipe difficilement dans le reste du matériau, l'augmentation de température qui en résulte peut conduire à la fusion/vaporisation de la matière contenue dans L_{abs} si celle-ci est suffisante. Le matériau est alors ablaté selon un processus thermique, sans provoquer pour autant

l'échauffement de la zone entourant la portion irradiée. La vapeur du métal vaporisé en surpression s'étend dans le milieu ambiant. Cette expansion est suffisamment rapide pour que les échanges d'énergie interne entre la vapeur et le milieu ambiant soient négligeables. La vapeur s'étend, comprimant ainsi le gaz ambiant et conduit à une onde de choc. Cette description de l'expansion de la vapeur ne tient compte ni des états excités des électrons, ni de leurs interactions collisionnelles. A des puissances élevées, le faisceau laser incident agit comme une source de chaleur et provoque l'ionisation de la vapeur devenue plasma. Pendant l'impulsion laser, le plasma se développe à la surface du solide et se détend dans le milieu environnant en absorbant une partie plus ou moins importante de l'énergie incidente. La pression dans le plasma étant très élevée, une onde de choc est générée et se propage dans l'atmosphère et dans le matériau. Cette onde de choc peut modifier la microstructure du matériau et provoquer l'apparition de contraintes résiduelles en son sein. Simultanément, l'énergie est transférée par conduction thermique, transfert radiatif et chauffage par l'onde de choc. Ces phénomènes dépendent des caractéristiques du faisceau laser (énergie, durée d'impulsion et longueur d'onde) ainsi que du gaz ambiant.

Selon les paramètres du laser, une particule métallique irradiée reste intacte, se divise, fusionne ou se vaporise. Nous pouvons donc supposer qu'en fin de chaîne laser où l'énergie est maximale, toutes les particules métalliques sont vaporisées.

4.2. Cas des particules non métalliques

Un grand nombre de matériaux autres que métallique sont présents sur la LIL : des joints, la tenue ou les gants du personnel à base de polymères, les composants optiques en verre. Tous ces matériaux sont potentiellement émetteurs de particules. Leur interaction avec le laser est différente de celle décrite entre le laser et les métaux. Dans le cas des isolants, dans une structure sans défaut l'injection d'électrons dans la bande de conduction nécessite une énergie élevée ou une courte longueur d'onde. Ces transitions électroniques vont conduire à la création de porteurs libres, qui tendront à donner « un caractère métallique » aux propriétés optiques du matériau considéré. En présence de défaut, les électrons libres sont créés à plus basse énergie ou plus grande longueur d'onde.

- **Des matériaux organiques : les polymères**

Un polymère est constitué d'une longue chaîne de monomères connectés par des liaisons pouvant être brisées par les photons UV (transition par absorption d'une orbitale liante à une orbitale non liante). De telles transitions sont possibles par absorption de 5 eV, l'énergie de liaison typique d'un polymère étant d'environ 4 eV. Si le nombre de liaisons brisées, au même instant, dépasse une valeur critique, l'augmentation de volume qui en résulte conduit à une éjection des fragments et donc à l'ablation du matériau. Cependant les différents paramètres pour prédire cette évolution sont interdépendants (coefficient d'absorption et nombre de liaisons brisées) avec une évolution rapide pendant l'interaction.

On peut donc supposer que l'ablation de ces particules se déroule essentiellement à partir du SCF où la longueur du laser est dans l'UV.

- **Un matériau inorganique : la silice**

Dans le cas de la silice, le gap entre la bande de valence et la bande de conduction est très élevé (8 eV). Le peuplement de la bande de conduction nécessite une énergie très élevée ou

une longueur d'onde très courte. Par exemple à 190 nm, l'absorption simultanée de plusieurs photons sous l'effet d'un rayonnement permet la création d'électrons libres qui peuvent alors passer de la bande de valence à la bande de conduction. L'échauffement des électrons dû à l'action des photons est transféré au matériau environnant. Ce processus peut conduire à la fusion puis à la vaporisation et donc à l'ablation de la matière. L'ablation de la matière peut également être liée à une exaltation locale du champ électrique provoquée par des inhomogénéités ou des défauts dans le matériau tels que des rayures, des inclusions absorbantes ou des bulles³⁴.

Les phénomènes précédemment décrits se déroulent à très fortes énergies. Tant que les composants optiques résistent au flux laser, on peut supposer que les particules du même matériau résistent également. Pour nous aider à décrire l'interaction rayonnement laser/matière, nous pouvons utiliser la simulation numérique.

4.3. Simulation de l'interaction rayonnement laser/matière

Les différents phénomènes impliqués lors de l'interaction rayonnement laser/matière peuvent être simulés par un code unidimensionnel lagrangien ESTHER qui est la version non classifiée du code DELPOR^{35, 36}. ESTHER a été élaboré principalement pour décrire le dépôt d'énergie sous irradiation laser. Il analyse l'évolution de la matière de l'état solide à l'état plasma sous l'influence de l'énergie déposée par un faisceau laser selon la configuration représentée sur la figure I-5.

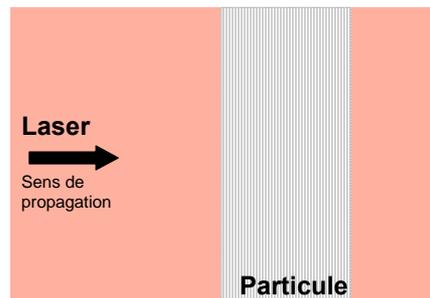


Figure I-5 : Schéma de l'interaction du rayonnement laser/particule simulée avec ESTHER.

Le faisceau laser se propage dans le vide puis interagit avec le matériau. Ce dernier est caractérisé par un empilement de mailles de propriétés homogènes mais d'épaisseur variable. Pour chacune des mailles, l'évolution des paramètres thermodynamiques (température, pression, énergie interne, densité) peut être obtenue en résolvant une série d'équations :

- Equation d' Helmholtz,
- Loi de Joule,
- Equation d'état multiphase,
- Equation de la chaleur
- Equations hydrodynamiques.

³⁴ N. Bloembergen. Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics, Appl. Optics, **12**, 661 (1972).

³⁵ P. Combis, F. Bonneau, G. Daval, L. Lamaignère. Laser induced damage simulations of absorbing materials under pulsed IR irradiation, Proc. of SPIE **3902**, 317 (2000).

³⁶ F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, M. Pellin, M. Savina, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuillon, M. Pellarin, L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra, H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, and J. T. Donohue. Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica, Appl. Phys. B: Lasers Opt. **75**, 803 (2002).

Le dépôt d'énergie laser est déterminé en résolvant l'équation d'Helmholtz. La puissance moyenne dissipée par effet Joule est obtenue à partir des constantes optiques du matériau d'après la loi de Joule. Le matériau est alors chauffé et un gradient de température, lié au processus de transfert de chaleur, s'établit dans le milieu. La variation de température entre la surface du matériau et le volume induit des contraintes internes pouvant évoluer vers des ondes de choc et de détente. La propagation de ces ondes au sein du solide est un phénomène dont les aspects mécaniques et thermodynamiques sont très liés. Ainsi, seule une connaissance suffisante de l'évolution des propriétés thermodynamiques, obtenues à partir des équations d'état multi phases, permet de donner une bonne estimation des états de contraintes atteints par le matériau. L'état thermodynamique de la matière est caractérisé par quatre grandeurs reliées entre elles par l'équation d'état du matériau: la température, la pression, la densité, et l'énergie interne. Dans notre cas, la plupart des données sont tabulées. L'évolution de la température du milieu consécutive à l'échauffement induit par le laser est régie par l'équation de la chaleur.

ESTHER est donc un outil utile pour calculer les paramètres thermodynamiques de la particule sous un rayonnement laser. Il sera mis en œuvre dans cette étude pour aider la compréhension des mécanismes observés expérimentalement.

Cette première étape permet d'observer et de comprendre l'impact du rayonnement laser sur la particule. Or la particule est déposée sur une surface optique de silice. Cette interaction entre le rayonnement laser et la particule peut induire des modifications au niveau du substrat. Il est donc nécessaire de considérer l'ensemble particule et substrat.

4.4. Interaction laser/particule/substrat

La présence de pollution en surface d'un composant optique abaisse sa résistance à la tenue au flux^{37, 38}. Elle conduit parfois à une modification irréversible du matériau^{39, 40}. Cette modification irréversible est appelée endommagement laser⁴¹ et représentée sur la figure I-6.

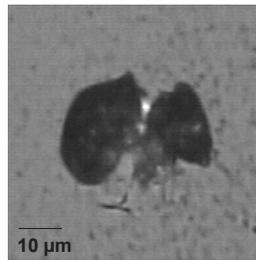


Figure I- 6 : Observation d'un endommagement laser au microscope optique.

³⁷ D.M. Kane, D.R. Halfpenny. Reduced threshold ultraviolet laser ablation of glass substrates with surface particle coverage: A mechanism for systematic surface laser damage, J. Appl. Phys. **87**, 4548 (2000).

³⁸ J. Honig, M.A. Norton, W.G. Hollingsworth, E.E. Donohue, M.A. Johnson. Experimental study of 351 nm and 527 nm laser initiated surface damage on fused silica surfaces due to typical contaminants, Proc of SPIE **5647**, 128 (2005).

³⁹ F.Y. Genin, M.D. Feit, M.R. Koslowski, A.M. Rubenchik, A. Salleo, J. Yoshiyama. Rear -surface laser damage on 355-nm silica optics owing to Fresnel diffraction on front-surface contamination particles, Appl. Opt. **39**, 3654 (2000).

⁴⁰ J. Honig. Cleanliness improvements if national ignition facility as compared to previous large-scale lasers, Opt. Eng. **43**, 2904 (2004).

⁴¹ R.M. Wood. Laser induced damage in optical materials, Ed. Institute of physics publishing, 54 (2003).

L'endommagement peut perturber la propagation du laser par diffusion du rayonnement et peut évoluer en surface et /ou profondeur diminuant ainsi la durée de vie du composant. Dans ce dernier cas, nous choisissons de parler d'endommagement laser critique⁴². L'endommagement laser peut être localisé par détection d'une perte d'énergie du faisceau laser^{43, 44, 45} ou par détection visuelle de la modification du composant optique^{46, 47}. Ces moyens de détection sont tous limités par leur résolution spatiale propre. Si on considère l'endommagement laser critique, la croissance de l'endommagement sous irradiation permet de s'affranchir du problème de résolution. En effet au cours des irradiations successives, il atteindra une taille détectable avec l'outil d'observation utilisé. Dans ce cas, nous pouvons bénéficier des informations fournies par la simulation numérique avec le code ESTHER.

4.5. *Simulation de l'interaction laser/particule/substrat*

Le code ESTHER unidimensionnel permet de considérer l'empilement de deux matériaux d'épaisseur définie mais de dimensions latérales infinies. La particule est donc assimilée à une couche mince (Cf. la configuration représentée sur la figure I-7). Lorsque la particule est située sur la face d'entrée du laser dans le composant optique, le laser se propage dans le vide puis interagit tout d'abord avec la particule puis avec le substrat. Par ailleurs, lorsque la particule est sur la face de sortie, le laser interagit d'abord avec le substrat avant d'interagir avec la particule.

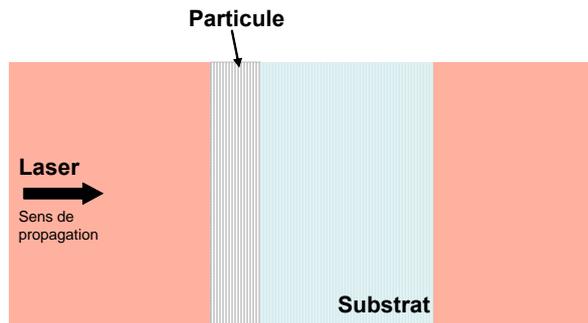


Figure I- 7 : Schéma de l'interaction laser/particule déposée sur un substrat simulée avec ESTHER.

La modélisation est réalisée suivant la même démarche que celle décrite précédemment. La seule différence réside dans les paramètres d'entrée qui, dans ce cas, doivent correspondre aux caractéristiques du matériau de la particule mais aussi du substrat. L'interface des matériaux correspond à un empilement de matériau. Aucune information sur l'adhérence de la

⁴² H. Bercegol, P. Bouchut, L. Lamoignon, B. Le Garrec, G. Razé. The impact of laser damage on the lifetime of optical components in fusion lasers, Proc. of SPIE, **5273**, 312 (2004).

⁴³ A.A. Said, T. Xia, A. Dogariu, D.J. Hagan, M.J. Soileau, E.W. Van Stryland, M. Mohebi. Measurements of optical damage threshold in fused silice, Applied Optics, **34**, 18 (1995).

⁴⁴ J. Hue, P. Garrec, J. Dijon, P. Lyan. R-on-1 automatic mapping a new tool for laser damage testing, Proc.of SPIE, **2714**, 90 (1996).

⁴⁵ M. Josse, R. Courchinoux, L. Lamoignon, J.C. Poncetta, T. Donval and H. Bercegol. Computer-Controlled Measurements of Laser-induced Damage Statistics on Large Optics, Proc. of SPIE Vol. **5647**, 365 (2005).

⁴⁶ B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, M.D. Perry. Laser induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses, Phys. Rev. Let. **74**, 2248 (1995).

⁴⁷ J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, C. Amra, Laser-induced damage materials in bulk, thin films and liquid forms, Applied Optics, **41**, 3156 (2002).

particule au substrat n'est introduite dans le calcul. Cette modélisation 1-D est nécessaire pour évaluer l'évolution de l'énergie interne déposée sur la particule assimilée à une couche mince.

En considérant ce système, nous pouvons donc obtenir les paramètres permettant de connaître l'état du substrat pendant et après l'interaction laser.

L'ensemble des paramètres thermodynamiques du système particule/substrat est ensuite intégré dans un code tridimensionnel appelé HESIONE. Ce code a été développé par CEA/DIF et permet de simuler en trois dimensions le système laser/particule/substrat (figure I-8). HESIONE ne permet pas la simulation du dépôt d'énergie laser. Il a été réalisé pour simuler le comportement thermo-mécanique des matériaux sous l'effet d'une contrainte extérieure. Il est adapté à l'étude de l'initiation et la croissance de craquelures dans un matériau à partir des simulations d'ESTHER⁴⁸. A chaque instant, la masse volumique, l'énergie interne et la vitesse des mailles des matériaux calculées par ESTHER pendant le dépôt d'énergie laser servent à initialiser HESIONE. Ce dernier incorpore le modèle d'endommagement d'Armor Tillosone décrivant les effets de fragmentation des matériaux (particule, substrat) après passage du laser.

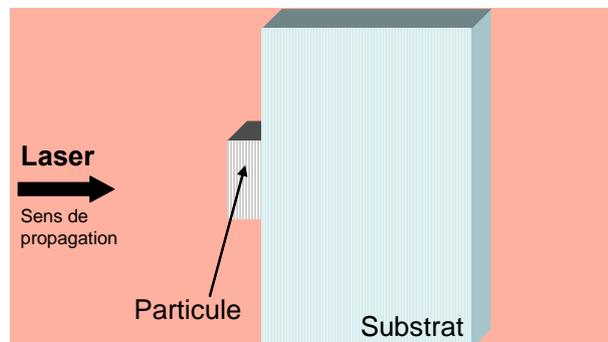


Figure I- 8 : configuration de la simulation avec HESIONE de l'interaction laser/particule déposée sur un substrat.

Grâce à HESIONE, la particule peut être considérée comme un objet de dimensions latérales finies. Cet aspect peut avoir son importance dans la forme d'un potentiel endommagement laser.

Dans cette partie, nous avons défini le contexte de l'étude : la LIL. La LIL intègre de nombreux composants optiques sensibles car soumis à l'agression d'un flux laser intense. Dans cette installation, une pollution particulaire émise lors du fonctionnement de la chaîne laser peut se déposer sur les surfaces en quantité non négligeable. Elle peut y adhérer entraînant lors de l'irradiation laser des phénomènes peu étudiés. Le chapitre suivant intitulé démarche expérimentale pour l'étude de la pollution particulaire de la LIL et son influence dans l'initiation d'endommagement laser.

⁴⁸ F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, B. Bertussi, M. Commandré, L. Gallais, J. Y. Natoli, I. Bertron, F. Malaise, J. T. Donohue. Numerical simulations for description of UV laser interaction with gold nanoparticles embedde in silica, Appl. Phys. B, **78**, 447 (2004).

Chapitre II : Démarche expérimentale

Aujourd'hui, le contrôle systématique de la pollution particulaire en surface des optiques de la Ligne d'Intégration Laser (LIL) n'est pas prévu. Cette étude *in situ* est très délicate à cause des dimensions des composants (jusqu'à 40 cm × 80 cm), de leur fragilité et de leur accès difficile, en particulier dans la section amplificatrice, milieu très confiné. De plus, les pièces optiques sont intégrées dans des structures optomécaniques complexes qui nécessiteraient leur démontage pour un suivi dans le temps précis. C'est une opération très délicate qui présente le risque de briser les pièces optiques, d'endommager les revêtements antireflet et réfléchissant et de générer une pollution particulaire additive. Par conséquent, nous avons choisi d'étudier la pollution particulaire de la LIL en introduisant des substrats en tant que collecteurs de particules sans perturber son exploitation. Des substrats adhésifs compatibles avec des techniques de caractérisation par microscopie électronique sont utilisés de façon spécifique pour caractériser la pollution particulaire de surface de la LIL. Des substrats de silice représentatifs des composants optiques permettent par la suite de tester l'impact du flux laser à 1064 et à 355 nm sur une surface optique polluée. Devant la complexité de l'interaction laser/particule/substrat, nous utilisons des échantillons « modèles ». Ces particules « modèles » vont permettre de préciser le comportement des particules sur un substrat de silice sous flux laser à 1064 et 355 nm. A partir des différents types de substrat et de pollution, ce chapitre décrit toutes les étapes expérimentales nécessaires à cette étude.

1. Pastilles carbonées polluées dans la Ligne d'Intégration Laser

Des pastilles adhésives carbonées sont spécifiquement utilisées pour collecter des particules émises dans la LIL et les caractériser au moyen d'un Microscope Electronique à Balayage (MEB) couplé à un spectromètre à dispersion d'énergie (en abrégé EDS). La démarche suivie est schématisée sur la figure II-1.

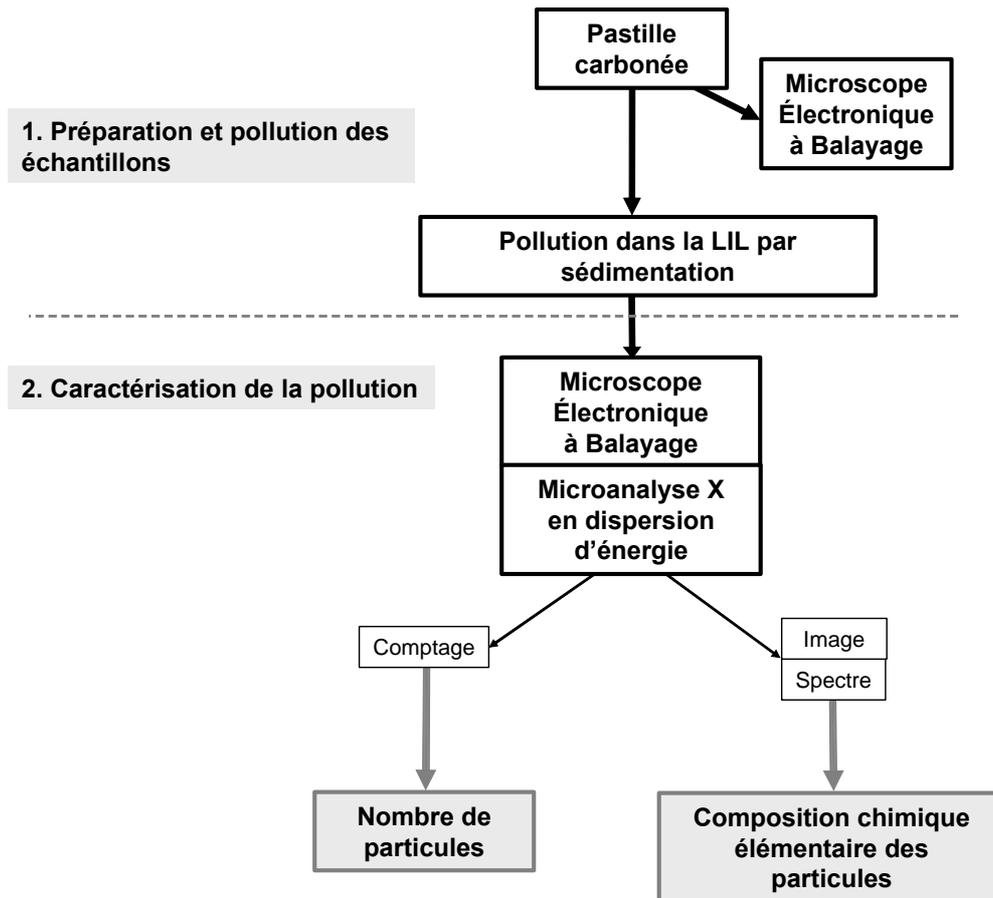


Figure II-1: Schéma de démarche expérimentale.

La démarche adoptée pour caractériser les particules comporte deux étapes : la préparation des échantillons et la caractérisation de la pollution. Chacune de ces étapes est contrôlée pour vérifier l'absence d'un apport de pollution extérieure et garantir la fiabilité des résultats fournis. Avant d'introduire les pastilles carbonées dans la LIL, il faut s'assurer d'un état initial des pastilles carbonées conformes. Cet état conforme correspond à un substrat propre pour ne pas apporter de pollution dans la LIL et ne posséder en sa surface que les particules qui se déposeront au cours de la période d'exposition dans la LIL. L'étape de caractérisation consiste à obtenir au moyen d'un appareil couplant un Microscope Electronique à Balayage (MEB) et un Spectromètre à Dispersion d'Energie X (EDS), la taille de chacune des particules collectées dans la LIL, leur composition chimique élémentaire et leur densité. Cette démarche est développée par la suite.

1.1. Préparation et pollution des pastilles carbonées

• Préparation

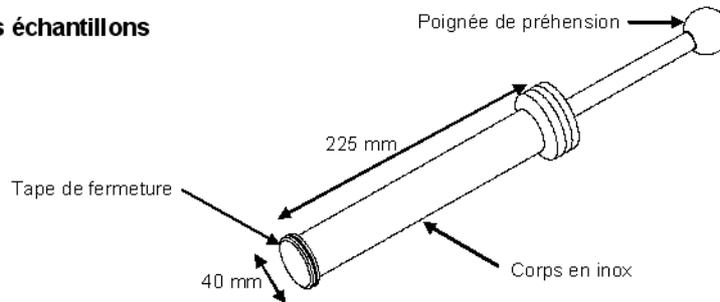
Les pastilles carbonées sont des surfaces adhésives fournies par Agar Scientific et conditionnées de façon propre. Elles sont protégées par un opercule en plastique qui est retiré juste avant leur mise en place dans la LIL. Une des faces adhérentes des pastilles carbonées est fixée sur un support métallique intégré dans une boîte spécifique. Des tests ont montré que l'ensemble n'émettait pas de particules observables. Un contrôle de l'état initial des pastilles

est fait de façon statistique par observation au MEB de trois substrats provenant du même lot et stockés dans les mêmes conditions que les substrats introduits dans la LIL.

- **Pollution dans la LIL**

Les pastilles sont déposées dans différents endroits de la LIL, afin de collecter les particules émises à proximité des composants optiques. La Section Amplificatrice (SA) est un milieu confiné dans un caisson métallique qui ne facilite pas l'accès. Elle ne dispose que de quelques interfaces de diamètre nominal 40 mm localisés sur les parois métalliques. Il a donc été nécessaire de concevoir un système d'insertion de substrats adapté qui a fait l'objet d'un dépôt de brevet en 2004⁴⁹. Le principe de ce dispositif est conditionné par la nécessité de ne pas perturber le passage du faisceau laser, les opérations de maintenance et la circulation du personnel à proximité de la chaîne laser tout en maintenant la chaîne de propreté. C'est donc un dispositif spécifique que nous avons conçu et fabriqué. Il permet le confinement lors du transport de l'ensemble des substrats, leur insertion et leur maintien dans la LIL. Il est illustré sur la figure II-2.

a. Confinement des échantillons



b. Introduction des échantillons dans la LIL

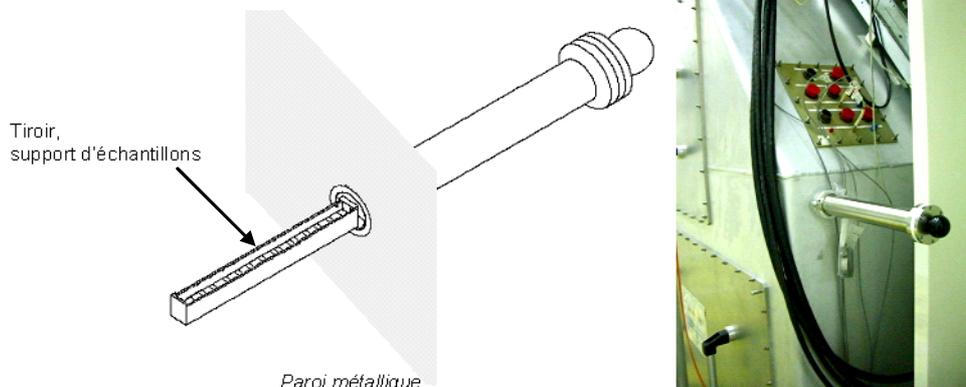


Figure II-2 : Schéma du dispositif de prélèvement en position fermée (a), et ouverte (b).
La photographie représente ce dispositif connecté sur la section amplificatrice.

Les échantillons sont disposés en position horizontale dans le tiroir (Figure II-3.b) pour collecter un nombre maximum de particules. De façon à limiter l'apport de polluants extérieurs, la mise en place de ces échantillons est réalisée dans une salle propre classée ISO 5 selon la norme ISO 14644-1. Cette norme définit la concentration volumique maximale autorisée pour des particules de taille comprise entre 0,1 et 5 μm . La classe ISO 5 correspond par exemple à un maximum de 29 particules de taille supérieure à 5 μm par m^3 . Le tiroir, support des échantillons est en téflon de 210 mm de long, 16 mm de large et 25 mm de hauteur. Le support coulisse dans un étui de confinement en téflon en actionnant une poignée

⁴⁹ I. Tovina, P. Manac'h, S. Palmier. Dispositif et procédé de prélèvement et de transport, Brevet français n° 05 51161 (2005).

de préhension. Cet étui est recouvert d'un corps cylindrique en inox lui assurant le maintien mécanique. L'une de ses extrémités est alésée, permettant le passage de la poignée de préhension, et la deuxième est obturée par une tpe (Fig. II-3a). L'étanchéité du système est assurée par des joints toriques. Le dispositif est entièrement démontable, ce qui permet un nettoyage optimisé de chaque pièce qui le compose. Par ce choix de matériau et cette facilité de nettoyage, le dispositif est neutre vis-à-vis des environnements dans lequel il est utilisé et vis-à-vis des échantillons ; il n'apporte aucun excès de pollution. Pour procéder à la mise en place des échantillons dans la LIL, on retire la tpe d'obturation ainsi que celle de l'interface de la zone de prélèvement. On connecte le dispositif en position horizontale à l'aide d'un collier de serrage rapide (Fig. II-3b) et on pousse la poignée pour insérer les échantillons dans l'environnement à tester. Pour procéder au retrait des échantillons, on applique la procédure de mise en place dans l'ordre inverse. L'ensemble est conservé en salle propre ISO 5.

Le Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (SCF) est une zone non confinée. Par conséquent, c'est un autre système que l'on utilise pour assurer le maintien en propreté des échantillons. La boîte de transport des pastilles préalablement nettoyée à l'éthanol est amenée sur la LIL ; le capuchon est retiré laissant la pastille fixée sur son support en position horizontale fixé par une bande adhésive.

Les particules ainsi collectées sont caractéristiques de l'environnement où les substrats ont été introduits. Leur nombre et leur nature dépendent des matériaux présents, du gaz ambiant, du volume, et de l'activité dans cet environnement.

1.2. Caractérisation de la pollution

La caractérisation de la pollution collectée par les pastilles carbonées consiste à évaluer le nombre, la taille, et la nature des particules. Ces informations sont obtenues au MEB couplé à un EDS. L'analyse ne pouvant être conduite que sur des substrats conducteurs, seules les pastilles carbonées adhésives sont observées au MEB. Les mesures ont été effectuées au Centre de Ressources En Microscopie Electronique et Microanalyse de l'université de Bordeaux 1. Bien qu'étant conductrices, ces pastilles sont métallisées à l'or pour optimiser le signal détecté sur les particules. Cette opération est impossible sur des substrats de silice pollués car les particules peu adhérentes sont aspirées lors de la métallisation sous vide de l'échantillon. L'observation au MEB couplé à l'EDS consiste à acquérir un cliché et un spectre pour chacune des particules détectées.

- **Microscope électronique à balayage**

Nous avons utilisé un MEB de type JEOL 840 A couplé à un spectromètre de type Voyager de chez Noran avec un détecteur Si/Li à fenêtres ultraminesces. Un bref résumé revient sur le principe de fonctionnement du MEB en annexe A1. L'acquisition des spectres est effectuée avec une tension d'accélération de 15 kV et un temps de comptage de 100 s. Ainsi, on observe essentiellement la surface des objets. Au préalable des pastilles témoins, provenant du même lot que celles exploitées pour les prélèvements, sont observées au MEB. Un cliché et un spectre de toute particule présente à l'état initial sont enregistrés. Le nombre des particules comptabilisées représente le « bruit de fond » provenant de la fabrication des pastilles et de l'analyse au MEB. Ce nombre est retranché au nombre total de particules comptabilisées après exposition sur la LIL.

- **Caractérisation de la pollution particulaire de la LIL**

Après avoir été exposées dans la LIL, les pastilles carbonées sont observées au MEB. Un comptage des particules est effectué en parcourant la surface de la pastille. Un cliché enregistré pour chaque particule détectée permet d'évaluer leur dimension. Les spectres obtenus en microanalyse X permettent de classer les particules suivant leur composition élémentaire en trois catégories : organique, minérale, et métallique. Pour illustrer cette classification, un exemple de chaque catégorie est présenté sur la figure II-3. Ces particules ont été collectées dans l'environnement du SCF.

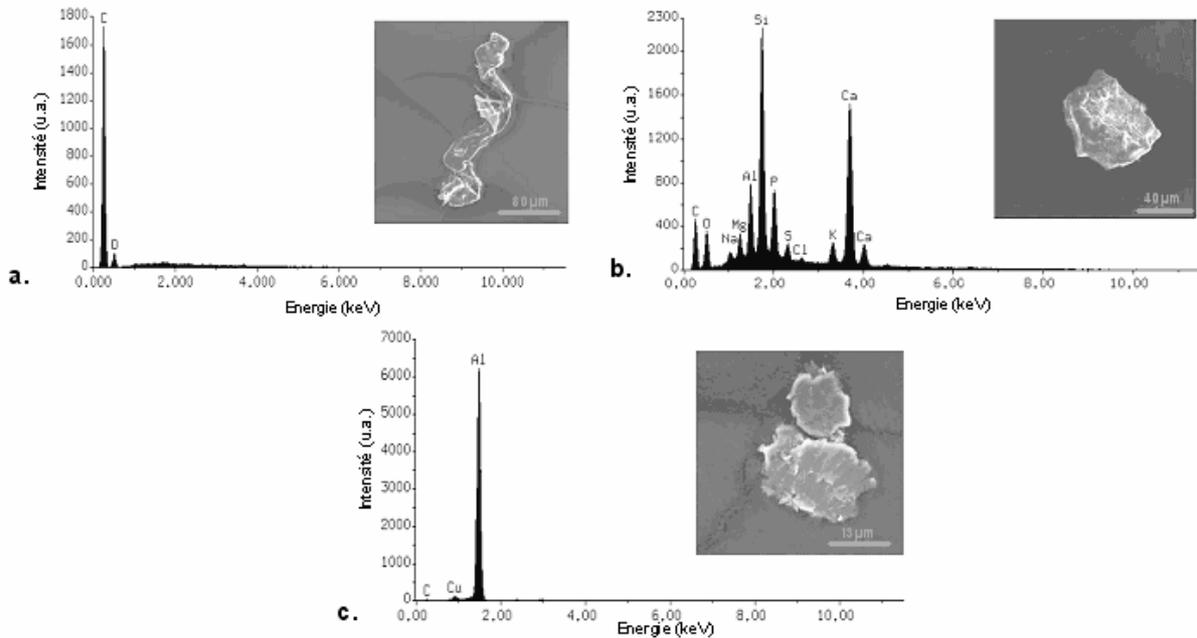


Figure II-3: Spectre et cliché de particules typiques représentant les différentes catégories observées; de type organique (a), minérale (b), et métallique (c).

La Figure II-5a représente une particule organique car son élément majoritaire sur le spectre EDS est le carbone avec une faible présence d'oxygène. Certaines de ces particules peuvent avoir un rapport des dimensions caractéristiques (longueur sur largeur) supérieur à 10, et dans ce cas, on les appelle « fibres ». Le cliché II-3a montre une particule assimilable à une fibre d'environ 200 µm de long. La Figure II-3b illustre une particule minérale car l'élément dominant n'est pas le carbone. Son spectre montre principalement du silicium et du calcium. Du fait de la présence d'aluminium, il s'agit probablement d'un silicoaluminat de calcium. La présence d'oxygène, sodium, magnésium, phosphore, soufre, chlore, potassium révèle la complexité de la nature physico-chimique de la particule. D'après le cliché, la particule est assimilable à un disque de 100 µm de diamètre dont l'aspect présente une certaine rugosité avec des aspérités révélant un mode de rupture plutôt fragile. Ce mode de rupture est en général celui des matériaux d'origine minérale. La Figure II-3c montre une particule métallique car son spectre montre un pic principal d'aluminium. Sa taille est environ 30 µm. Le contour de la particule est mal défini, son aspect semble usé, érodé. Son spectre révèle des traces de cuivre et de carbone.

Après analyse des clichés obtenus au MEB, nous obtenons un nombre de particules par unité de surface. L'erreur de mesure correspond à l'erreur de reproductibilité du comptage sur un même substrat estimée à 3 %. De façon à pouvoir comparer des échantillons exposés dans la LIL sur des périodes de temps différentes, nous avons choisi de normaliser l'ensemble de ces résultats de nombre par unité de surface et par la durée d'exposition. Les spectres EDS

complémentaires permettent en plus une répartition des particules suivant leur nature chimique en trois grandes classes : métallique, organique et minérale.

2. Substrats de silice pollués dans la Ligne d'Intégration Laser

Dans l'étude de la pollution de la LIL, des substrats de silice traitée ou non traitée antireflet sont également utilisés. Ils doivent permettre l'observation de l'impact du flux laser sur la pollution précédemment caractérisée et sur le composant optique (la silice). La démarche suivie schématisée sur la figure II-4.

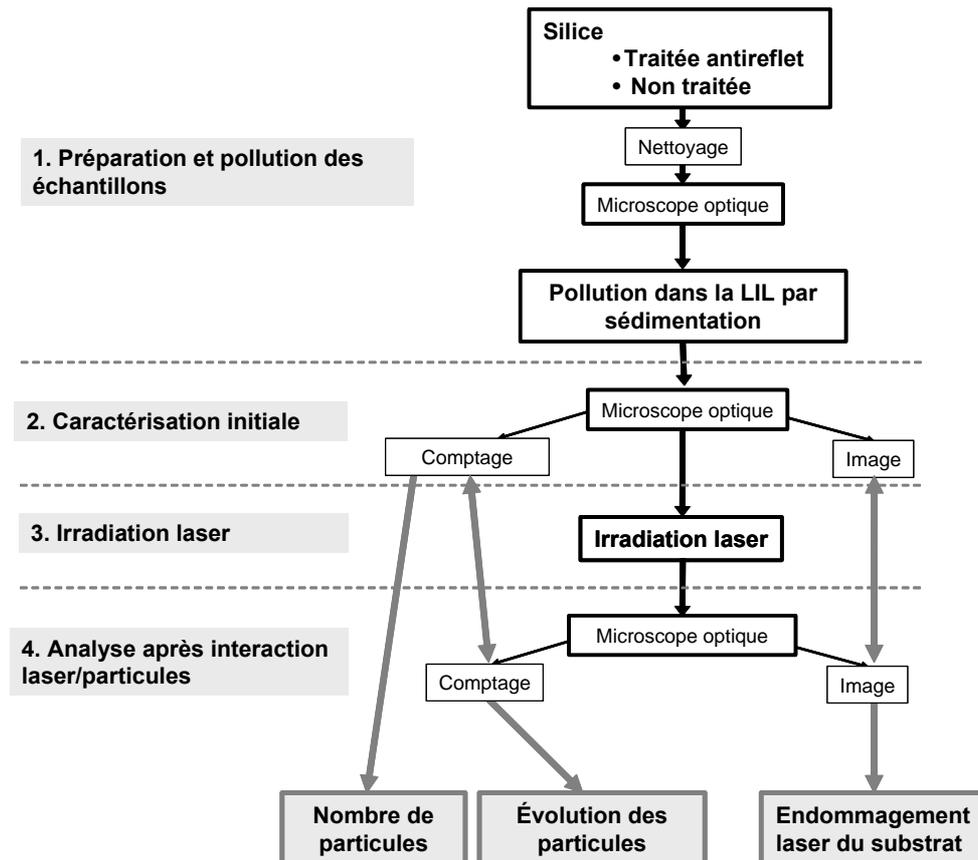


Figure II-4: Schéma de la démarche expérimentale.

Pour notre étude, l'utilisation des substrats de silice impose quatre étapes : la préparation et la pollution des échantillons, la caractérisation des particules collectées, l'irradiation laser et enfin l'analyse après irradiation. La préparation des échantillons consiste au nettoyage et à l'observation par microscopie optique. Cette préparation garantit un état de surface propre d'avant introduction dans la LIL et donc la fiabilité des résultats obtenus par la suite. Ces échantillons sont ensuite insérés dans la LIL pendant une durée déterminée pour collecter des particules. Une nouvelle observation au microscope optique permet d'effectuer la caractérisation des substrats dite initiale car effectuée avant l'irradiation. Les particules déposées en surface sont photographiées et comptabilisées en fonction de leur taille. Après irradiation, une nouvelle caractérisation est effectuée. La comparaison des résultats entre avant et après irradiation permettra de détecter la présence éventuelle d'endommagements, et de comptabiliser les particules pour en déduire leur évolution sous flux laser. Chacune de ces étapes est décrite en détails dans les parties suivantes.

2.1. Préparation et pollution des échantillons

• Silice traitée antireflet et non traitée

Deux types d'échantillons sont utilisés : la silice traitée anti-reflet et celle non traitée. Le substrat est identique dans les deux cas : silice Hérasil⁵⁰ super polie. La silice utilisée est du quartz fondu approvisionné auprès de la Société Européenne de Systèmes Optiques (SESO). Ce procédé de polissage est issu d'un transfert de technologie entre SESO et le CEA. Il a été adopté pour les composants optiques de la LIL et du LMJ pour obtenir une rugosité $R_{ms} \sim 0,2$ nm. Le traitement antireflet est réalisé par trempage/retrait du substrat de silice nue dans une solution de silice colloïdale (colloïde de 20 nm de diamètre en moyenne) comme illustré sur la figure II-5⁵¹.

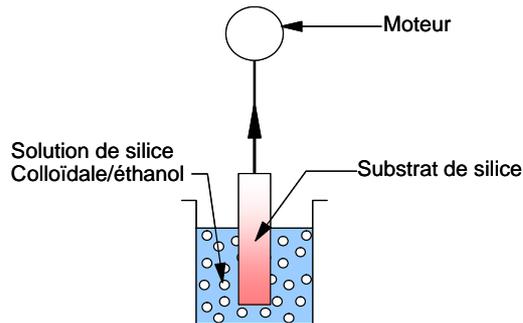


Figure II-5: Technique de dépôt en milieu liquide : le trempage - retrait.

La vitesse de trempage est constante et optimisée en fonction de l'épaisseur du dépôt de colloïdes attendue sur l'échantillon. Une fois retiré, le composant est traité antireflet. Ce revêtement est mécaniquement fragile et nécessite une phase de durcissement⁵². A l'issue de cette étape de durcissement, le substrat est recouvert d'une couche d'environ 215 nm ou 72 nm de silice colloïdale assurant une transmission maximale à 1053 nm ou 351 nm respectivement.

Pour s'affranchir d'une pollution particulière gênante pour l'exploitation future des résultats, un nettoyage préalable des échantillons supports est nécessaire. Par définition, le nettoyage doit respecter les surfaces à nettoyer, ne pas les endommager, ne pas générer ni transférer de particule d'une zone vers une autre. Il s'effectue donc en salle propre en prenant de grandes précautions. Les surfaces en silice traitées antireflet ou non traitées étant différentes, une méthode de nettoyage dédiée et qualifiée est appliquée.

• Nettoyage de la silice non traitée

Pour les échantillons en silice nue, différentes méthodes de nettoyage ont été testées :

- par ultrasons,
- par aspersion de produits chimiques,
- par application d'un tissu humide.

De même trois modes de séchage ont été évalués : sous flux laminaire, échantillon en position horizontale ou verticale, ou sous jet d'azote filtré. Les résultats sont obtenus sur un minimum de trois échantillons ayant suivi la même procédure de nettoyage.

⁵⁰ Heraeus. Quartz glass for optics, (2005).

⁵¹ P. Belleville, H. Floch. Procédé de fabrication de couches minces présentant des propriétés optiques et de résistance à l'abrasion, Brevet français n° 93 03 987, déposé par le CEA.

⁵² P. Belleville, H. Floch. Ammonia-hardening of porous silica antireflective coatings, Proc. of SPIE **2288**, 25 (1994).

Le nettoyage par ultrasons consiste à placer l'échantillon dans un récipient préalablement rincé à l'éthanol et séché à l'azote filtré pulsé puis rempli d'éthanol. Dès la sortie de l'échantillon du récipient, des particules visibles à l'œil nu peuvent être repérées (taille supérieure à 25 μm). Le nettoyage par ultrasons même à faible puissance n'est pas adapté.

Le nettoyage par aspersion de produit chimique consiste à verser un solvant, l'éthanol, l'acétone, ou l'éthanol puis l'acétone, à l'aide d'une pissette sur trois échantillons distincts maintenus verticaux. Ensuite les trois modes de séchage sont testés. Quel que soit le mode de séchage, tout nettoyage utilisant l'acétone présente des résidus de solvant sec qu'il est impossible de dissoudre avec l'éthanol. Quel que soit le solvant utilisé et la position de l'échantillon, le séchage de l'échantillon sous flux laminaire laisse des traces en surface. Même si les particules présentes avant nettoyage ont été éliminées, ces traces ou résidus de solvant sec constituent l'apport d'une nouvelle pollution. Nous cherchons un état de surface sans particule et sans résidu de lavage. Seule l'aspersion à l'éthanol séché à l'azote filtré semble donc adaptée. A noter, une pression élevée du jet d'azote sur l'échantillon appliquée de haut en bas va concentrer le solvant sur les bords et laisser des résidus blancs. Une pression modérée permet de faire évaporer le solvant progressivement sans laisser de trace.

Le nettoyage par application d'un tissu humide consiste à utiliser un tissu propre imbibé de solvant (éthanol ou acétone ou éthanol suivi d'acétone) sur l'échantillon vertical. Il est appliqué délicatement de haut en bas afin d'entraîner les particules avec le chiffon. L'utilisation d'acétone laisse apparaître des résidus secs blancs quel que soit le mode de séchage. Le frottement d'un tissu imbibé d'éthanol suivi d'un séchage par un jet d'azote filtré donne les meilleurs résultats. Par ailleurs, une observation au microscope confirme que l'application d'un tissu imbibé d'éthanol permet d'évacuer toutes les particules alors que l'aspersion n'élimine que les grosses particules. C'est donc un nettoyage par application d'un tissu imbibé d'éthanol qui est adopté.

- **Nettoyage de la silice traitée antireflet**

Appliquer un tissu même imbibé de solvant sur un traitement antireflet est impossible du fait de la fragilité du revêtement. D'après les tests effectués sur la silice non traitée, il apparaît que la meilleure méthode est une aspersion d'éthanol puis un séchage à l'azote filtré. Cette procédure est donc adoptée pour les substrats traités antireflet.

- **Conditionnement et transport des échantillons**

Pour transporter les échantillons traités antireflet ou non traités sans apporter de pollution supplémentaire, des boîtes de transport individuelles spécialement conçues pour leur faible émission de particules sont nettoyées de la même manière que les substrats de silice. Une vérification expérimentale a permis de contrôler la bonne performance de ces boîtes en terme de pollution particulaire.

- **Pollution par sédimentation**

Après avoir été nettoyés, les échantillons de silice traitée antireflet ou non peuvent être déposés dans la LIL. Dans la Section Amplificatrice, les échantillons de silice sont insérés à l'aide du dispositif de prélèvement décrit au § II.1.1. Dans le Système de Conversion de fréquence et de Focalisation, la structure de la chaîne est plus accessible. Des échantillons de plus grandes dimensions sont donc positionnés horizontalement. La face non exposée de chaque substrat est préservée de toute pollution ou de tout choc en demeurant dans les boîtes de polypropylène qui sont elles même fixées à la structure métallique par un bande adhésive.

2.2. *Caractérisation de la pollution particulaire*

Après le retrait des échantillons de la LIL, la face polluée est observée par microscopie optique. Les mesures ont été effectuées au CEA/CESTA au Département Laser de Puissance. Le microscope optique utilisé est un Leica DMLM constitué d'objectifs de grandissement $\times 5$, $\times 10$, $\times 20$. Grâce à cet outil, les échantillons de silice traitée antireflet et non traitée ont été photographiés sur une zone centrale après nettoyage et après pollution dans la LIL. Le choix de l'aire observée est le résultat d'un compromis entre l'observation d'une grande surface et l'obtention de la meilleure résolution spatiale. Une succession d'images de faible recouvrement a été enregistrée de façon à reconstituer la zone totale observée. Dans cette configuration, la résolution spatiale du microscope est de $3 \mu\text{m}$. Un logiciel de traitement d'image a été utilisé afin de comptabiliser les particules et d'évaluer leur diamètre. Par la suite l'acquisition d'un microscope couplé à un logiciel, « Filtrex », adapté aux comptages de particules a permis d'automatiser cette exploitation. Toutefois, la méthode de comptage la plus fiable s'est révélée être l'analyse visuelle des clichés, particule par particule pour déterminer leur nombre. Mais les résultats obtenus par le logiciel restent valables pour évaluer la taille des particules.

- **Observation des échantillons**

Une observation initiale des échantillons de silice traitée antireflet et non traitée a été effectuée avant insertion dans la LIL. Cette observation initiale met en évidence quelques particules résiduelles après nettoyage et des défauts de surface. Si le nombre de particules de diamètre supérieur à $3 \mu\text{m}$ est non nul, un second voire un troisième nettoyage est effectué. Dans le cas d'un dénombrement non nul reproductible après trois nettoyages, un état initial est défini par le comptage et la localisation de chaque particule ou défaut de surface.

Après avoir été exposés dans la LIL, les mêmes échantillons sont à nouveau observés au microscope optique. Les résultats obtenus sont, d'une part, les clichés des particules sur la surface et d'autre part, une classification de ces particules en fonction de leur taille. Le nombre de particules ou défauts initialement présents en surface constitue un bruit de fond qui est retranché aux nombres de particules observées pour obtenir le nombre de particules collectées dans la LIL. Afin de comparer la pollution particulaire prélevée sur différentes périodes, le nombre de particules est exprimé par centimètre carré et par jour.

- **Imprécision de la mesure**

Afin d'obtenir un meilleur contraste entre les particules et la surface des échantillons, l'acquisition des images est effectuée en fond noir. L'observation de chaque image permet de déterminer le nombre des particules et la taille de chacune. La précision sur ces deux grandeurs est liée à l'appareil et à l'opérateur. Plusieurs paramètres peuvent se révéler être source d'erreurs : l'intensité de l'éclairage, la focalisation, et le seuillage.

L'intensité d'éclairage choisie correspond au meilleur contraste entre la particule et le substrat. Elle est obtenue dans le cadre de nos observations, par une intensité maximale. L'éventuelle erreur sur le nombre et la taille des particules liée à ce paramètre correspond au vieillissement de l'ampoule d'éclairage. Nous estimons cette erreur négligeable pendant nos périodes de test.

Une bonne focalisation permet de bien distinguer les contours des petites particules et donc de compenser leur aspect plus sombre en fond noir. Selon l'opérateur, le plan de focalisation peut légèrement varier et ainsi modifier les mesures de nombres et de dimensions des particules. Le réglage de la focalisation du microscope sur la surface ou sur des petites particules est identique. Les grosses particules, quant à elles, sont au-dessus du substrat à une distance correspondant à leur dimension physique. Etant toutes différentes, elles ne sont

jamais clairement bien focalisées quelle que soit la position de l'objectif. Par conséquent, la mesure sur la taille de la particule est accompagnée d'une imprécision. Par contre, l'erreur sur le nombre de particules est négligeable car même mal focalisées, les grosses particules sont comptabilisées. De plus, l'observation est effectuée sur une surface peu étendue, 17 mm de diamètre, et à plusieurs reprises (avant introduction des échantillons dans la LIL, avant et après irradiation), l'erreur sur le nombre de particules due à la focalisation peut être compensée d'une observation à l'autre.

Il existe deux modes de seuillage sur le microscope utilisé : fixe et adaptatif. Le seuillage consiste à fixer un niveau de gris à partir duquel les particules seront différenciées du niveau de gris de la surface. L'échelle des niveaux de gris s'étend de 0 à 255 (0 correspondant au fond noir du substrat et 255 au blanc de la lumière diffusée par les particules). Un seuillage élevé signifie que le niveau de gris correspondant à la détection d'une particule est très proche du blanc. Le seuillage le plus adapté est celui qui permet d'obtenir des dimensions des particules observées proches des dimensions réelles. Pour cela, un contraste maximal entre la particule et la surface est nécessaire. En observation en fond noir, les grosses particules apparaissent plus claires car elles réfléchissent plus de lumière que les petites qui apparaissent plus sombres. Les grosses particules étant plus claires et les petites plus sombres, le seuil de niveau de gris est fixé à un niveau bas. Ce seuil bas conduit à un bon comptage du nombre de particules, une bonne estimation des dimensions des petites particules mais aussi à une surestimation de la dimension des grosses particules. Si on fixe un seuil plus élevé, on obtient une bonne estimation des dimensions de grosses particules mais une sous estimation du nombre total de particules, les petites n'étant plus distinguées. Le seuillage fixe est adapté pour les grosses particules (supérieures à 50 μm).

Le seuillage adaptatif consiste à fixer deux seuils de niveau de gris. Un seuil peut être fixé pour l'ensemble des particules. Un deuxième seuil peut être déterminé pour des particules de dimensions supérieures à une taille choisie par l'opérateur. Nous avons choisi de fixer le premier seuil élevé de manière à comptabiliser toutes les particules même les peu contrastées. Afin de palier le problème de surdimensionnement des grosses particules (évaluées à 50 μm), nous fixons un seuil plus bas que le premier. Le seuillage adaptatif est donc utilisé pour le comptage de particules de faibles dimensions et peu contrastées.

Les résultats sont exprimés en nombre de particules en fonction d'une classe de taille. D'après nos réglages, la taille des particules peut être surestimée de 2 μm . Par conséquent, l'erreur de mesure sur le nombre de particules correspond à l'erreur de répétabilité des comptages.

2.3. *Irradiation des disques de silice pollués*

Les échantillons de silice ainsi préparés et exposés dans la LIL sont ensuite irradiés dans des conditions représentatives de la LIL (longueur d'onde, durée d'impulsion et densité d'énergie). Nous avons donc utilisé les bancs d'irradiation laser du CEA/CESTA/DLP dont les caractéristiques sont proches de celles de la LIL : les bancs de tenue au flux BLANCO, LUTIN et ELAN. Une représentation schématique du fonctionnement de ces trois bancs est donnée sur la figure II-6.

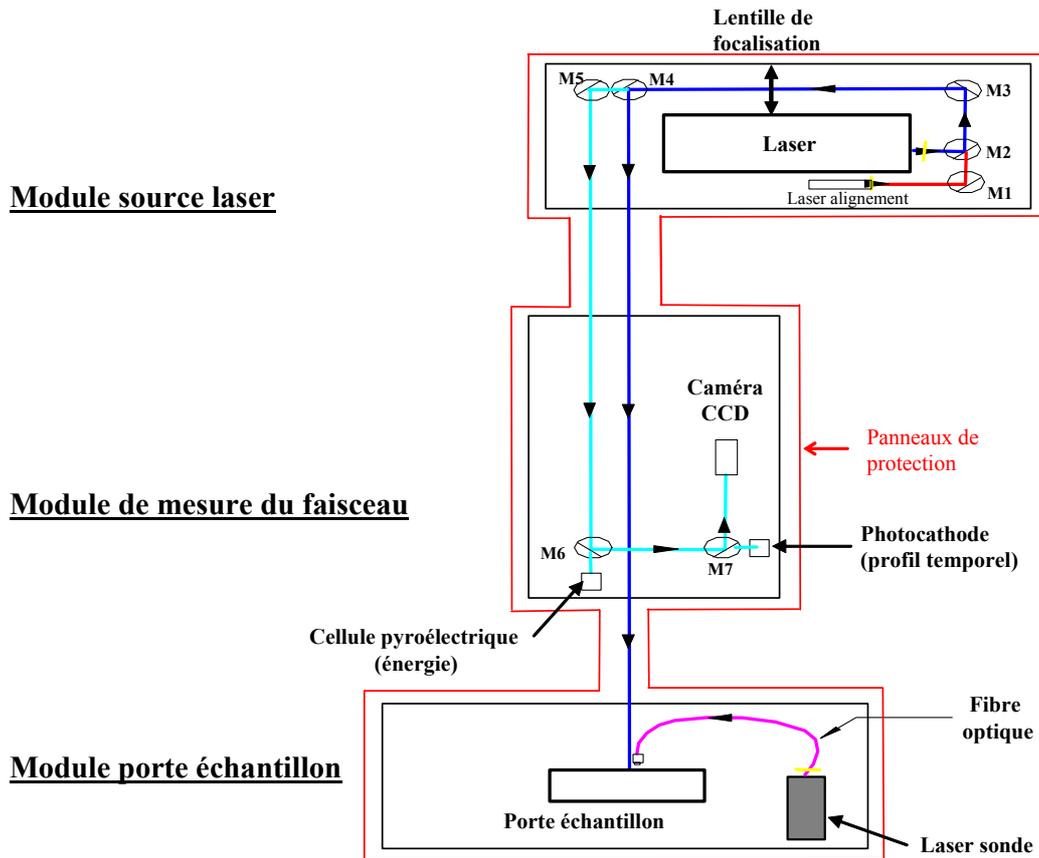


Figure II-6: Synoptique d'un banc de tenue au flux LUTIN.

Chaque banc de tenue au flux est composé de trois modules : source laser, mesure du faisceau et porte échantillon. La table laser est un marbre sur lequel sont posés : le laser pompe, une succession de miroirs dont un à fuite (M4), la lentille de focalisation et un laser d'alignement de faible énergie permettant de s'assurer du bon positionnement des composants dans le chemin optique. La table de mesure du faisceau permet de connaître les caractéristiques du faisceau laser. Par le biais du miroir à fuite, une partie du faisceau laser atteint une cellule pyroélectrique qui mesure l'énergie maximale du faisceau, puis une photocathode qui mesure le profil temporel du faisceau et enfin une caméra. La caméra est couplée à un analyseur de faisceau qui indique à chaque tir le profil du faisceau (distribution spatiale de l'énergie et diamètre) et la position de la tache laser sur le composant. Les profils spatial et temporel de l'impulsion sont représentés sur la figure II-7. Le profil spatial peut être décrit comme une gaussienne avec une partie de l'énergie dans les ailes de l'impulsion ($\approx 33\%$).

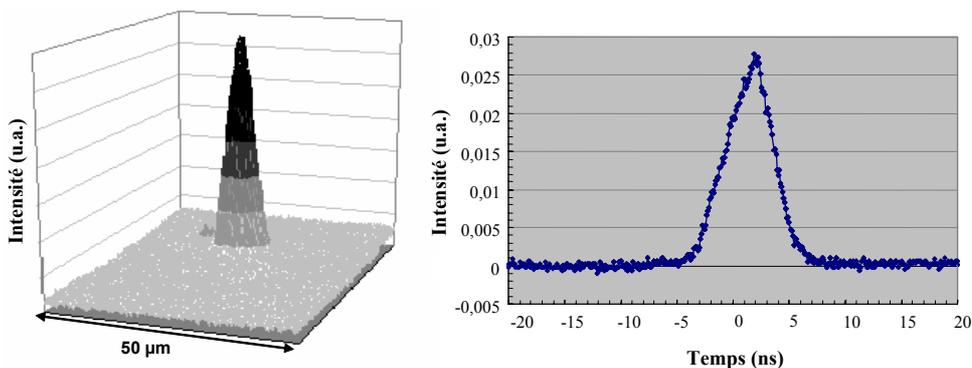


Figure II-7 : Profils spatial et temporel du faisceau laser focalisé.

La table porte échantillon comporte une platine sur laquelle l'échantillon est positionné et peut être déplacé automatiquement. Un faisceau laser de type He :Ne noté sonde sur la schéma éclaire l'échantillon de façon à repérer la zone qui est irradiée par le faisceau pompe. Divers moyens de détection peuvent être également mis en place.

Dans la configuration de nos expériences, les caractéristiques des trois bancs de tenue au flux sont résumées dans le tableau II-1.

Banc de tenue au flux	Longueur d'onde (nm)	Diamètre du faisceau à 1/e (mm)	Énergie maximale (J)	Durée d'impulsion (ns)	Fréquence de répétition (Hz)
ELAN	1064	1,8	2,3	9	10
BLANCO	1064	0,6	0,6	6,5	10
LUTIN	355	0,6	0,2	2,5	10

Tableau II- 1 : Caractéristiques des bancs d'irradiation laser du CEA/CESTA utilisés.

- **Longueur d'onde**

La longueur d'onde du faisceau laser de la LIL est 1053 nm dans la SA puis 351 nm à partir du SCF. La source des trois bancs de tenue au flux est un laser Nd-YAG impulsif qui délivre des impulsions aux longueurs d'onde de 1064 nm, 532 nm, et 355 nm. Nous avons utilisé ELAN et BLANCO pour irradier les échantillons à 1064 nm. Ces lasers bien qu'ayant une longueur d'onde légèrement différente de celle de la LIL permettent d'obtenir un faisceau d'énergie comparable. Il est possible que les propriétés optiques des différentes natures de particules varient entre 1064 et 1053 nm. Mais la silice ne présentant aucune différence, nous considérons que le comportement des substrats sera donc semblable à 1053 et à 1064 nm.

- **Diamètre de faisceau**

La taille du faisceau de la LIL atteint jusqu'à 400 mm de côté sur une section carrée alors que le diamètre du faisceau des bancs de test est de l'ordre du millimètre. Lorsque le faisceau est focalisé sur l'échantillon, à l'aide d'une lentille (de focale 5 m sur BLANCO et LUTIN, 8 m sur ELAN), nous obtenons un faisceau que nous assimilons gaussien. Le diamètre est mesuré à 1/e du faisceau gaussien (l'intensité maximale divisée par l'exponentielle de 1). Une procédure de test a été développée afin d'irradier de façon homogène une surface de dimensions supérieures au diamètre du faisceau : le « Raster scan »⁵³. Elle est schématisée sur la figure II-8.

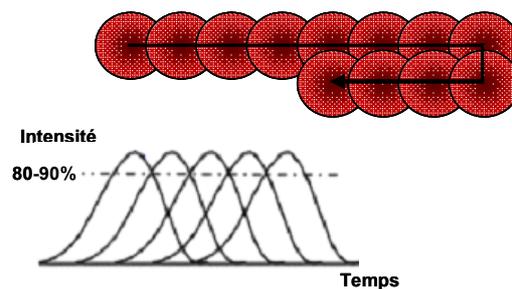


Figure II-8 : Schéma de la procédure « Raster scan ».

Cette procédure consiste à irradier de façon quasi uniforme par recouvrement de faisceau une surface optique pour simuler un faisceau de diamètre plus important. Des tirs jointifs à une même fluence sont délivrés à la fréquence de 10 Hz. Le composant est déplacé de façon

⁵³ M.D. Feit, A.M. Rubenchik, M.R. Kovlowski, F.Y. Génin, S. Schwartz, L.M. Sheedan. Extrapolation data to predict performance of large area NIF optics at 355 nm, Proc. of SPIE **3578**, 226 (1999).

continue via des platines de translation. La vitesse de déplacement des platines est choisie de façon à assurer un recouvrement entre chaque tir de l'ordre de 90 %.

- **Energie**

L'énergie du faisceau de la LIL peut atteindre 24 kJ à 1053 nm et 16 kJ à 351 nm sur une section de 400 mm × 400 mm. La densité d'énergie correspond au rapport entre l'énergie maximale du faisceau et la surface équivalente du faisceau gaussien focalisée sur l'échantillon mesurée à 1/e. Cette densité d'énergie est appelée fluence par la suite. La fluence moyenne sur la LIL est de l'ordre de 15 J/cm² à 1053 nm et 10 J/cm² à 351 nm. Sur les bancs de tenue au flux, l'énergie maximale au niveau de l'échantillon est de 2,3 J sur ELAN, 0,6 J sur BLANCO et 0,2 J sur LUTIN. Pour atteindre cette énergie, le faisceau laser est focalisée sur l'échantillon à l'aide d'une lentille de focalisation. Le diamètre du faisceau sur l'échantillon est de 1,8 mm sur ELAN et 0,6 mm sur BLANCO et LUTIN à 1/e. Nous avons travaillé avec des énergies atténuées, correspondant à des fluences comparables à celle rencontrée sur la LIL. L'erreur de mesure de la fluence sur les bancs de tenue au flux est estimée à ± 15 %.

- **La durée d'impulsion**

La durée d'impulsion du faisceau laser de la LIL est de 3 ns. Sur BLANCO, LUTIN et ELAN, le profil temporel de l'impulsion est quasi-gaussien, et la durée équivalente (rapport entre fluence pic et intensité pic) est de 6,5 ns, 2,5 ns et 9 ns. Les durées d'impulsion du banc BLANCO et ELAN sont respectivement deux et trois fois plus longues que celle de la LIL. Pour prendre en compte cette différence temporelle, la fluence d'irradiation de chaque échantillon est recalculée en utilisant la loi d'échelle en $\sqrt{\tau}$ généralement observée pour les impulsions en régime nanoseconde. Cette loi empirique est basée sur l'équation de diffusion de la chaleur dans un matériau diélectrique. Elle a été établie pour corréler les fluences seuils d'endommagement laser pour des irradiations de durées d'impulsion supérieures à 10 ps et a été vérifiée expérimentalement sur de la silice^{54, 55}.

- **Positionnement du composant par rapport au sens de propagation du faisceau laser**

L'influence du laser sur les particules peut varier selon que l'irradiation ait lieu par la face avant la « face avant » ou la « face arrière » (cf. figure II-9).

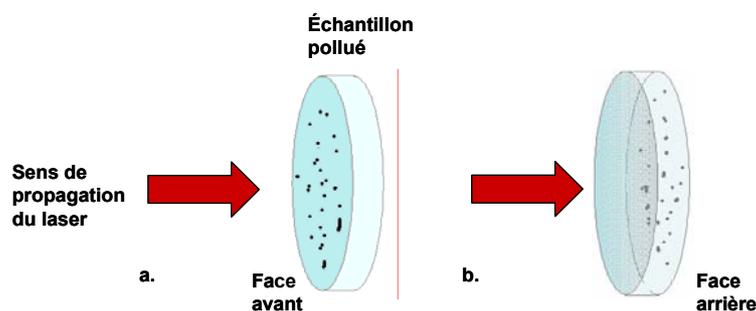


Figure II-9: Désignation des faces avant et arrière.

Sur la figure II-9a, les particules sont distribuées sur la face d'entrée du faisceau laser dans le composant, appelée « face avant ». L'irradiation des particules est directe. Sur la

⁵⁴ D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, G. Mourou. Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO₂ with pulse widths from 7 ns to 150 fs, Appl. Phys. Lett. **64**, 3071 (1994).

⁵⁵ B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, M.D. Perry. Laser induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses, Phys. Review letters **74**, 2248 (1995).

figure II-9b, elles le sont sur la face de sortie du faisceau laser dans le composant, dite « face arrière ». Le faisceau traverse alors le composant avant d'atteindre les particules. Il est important de discriminer ces deux faces même pour un composant symétrique, car les comportements observés sont différents.

- **Détection de dommages**

Deux dispositifs placés sur chaque banc permettent de détecter l'apparition éventuelle d'un dommage après chaque tir :

- une photodiode recueille la diffusion d'un faisceau sonde issu d'un laser continu Argon et réfléchi par le site irradié. Cette mesure permet de détecter, par augmentation de la lumière diffusée, l'apparition d'un dommage macroscopique (la résolution est, dans ce cas, 20 μm).
- un microscope optique mobile permet de visualiser *in situ* la formation d'un dommage sans avoir à déplacer le composant.

2.4. Analyse après irradiation

Au terme des cycles d'irradiations, tous les échantillons sont à nouveau observés au microscope optique. Un comptage des particules de dimension supérieure ou égale à 3 μm est réalisé. Par comparaison du nombre de particules présentes avant et après irradiation, l'évolution des particules peut être observée. L'analyse des images avant et après irradiation permet de mettre en évidence la présence d'endommagement laser. Si des modifications irréversibles de la surface apparaissent, une autre série d'irradiation peut être effectuée afin d'observer une éventuelle croissance. Enfin les modifications du substrat observées peuvent être analysées en microscopie à force atomique afin de connaître la profondeur de l'endommagement.

3. Substrats de silice pollués par des particules « modèles »

L'étude de substrats de silice pollués par des particules « modèles » est destinée à évaluer l'impact des particules sur l'endommagement laser éventuel des composants optiques. Divers paramètres caractéristiques des particules, du laser ou du substrat sont testés. La démarche utilisée pour cette étude est schématisée sur la figure II-10.

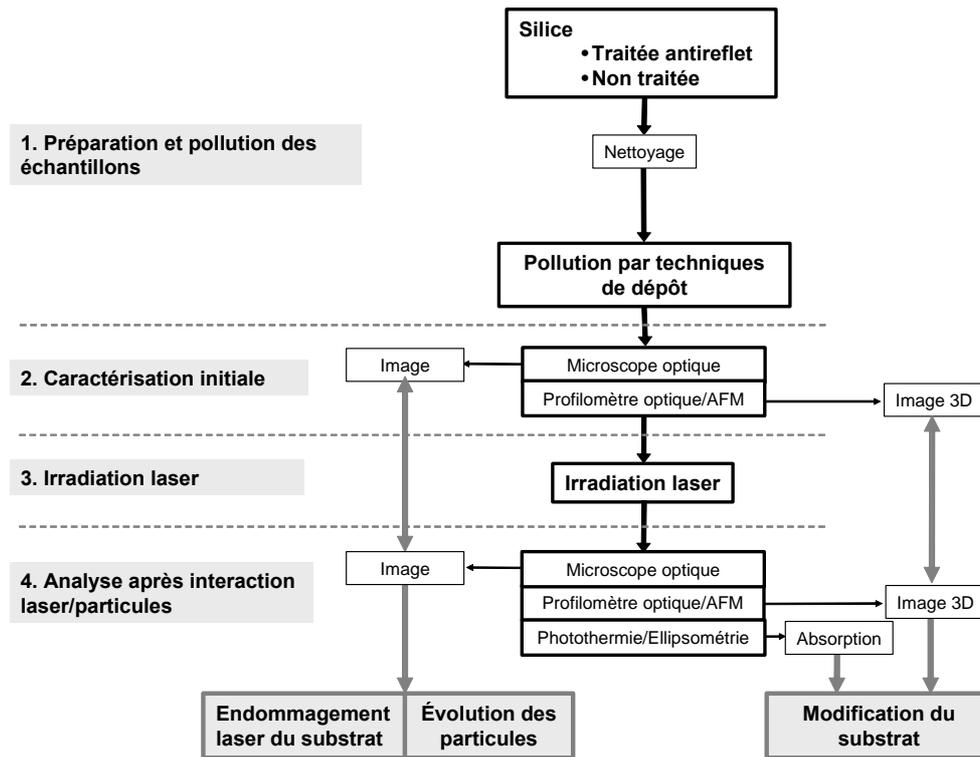


Figure II-10: Schéma de la démarche expérimentale.

A nouveau, notre démarche se décompose en quatre étapes : la préparation et la pollution des substrats, la caractérisation des particules déposées, l'irradiation laser et enfin l'analyse après irradiation. La préparation des substrats consiste au nettoyage. Des particules calibrées sont ensuite déposées par diverses techniques. La caractérisation initiale correspond à la détermination de la morphologie de la particule par microscopie optique, à force atomique et/ou profilométrie. Chaque particule est irradiée, indépendamment des autres, avec des paramètres laser déterminés. La particule irradiée ainsi que le substrat sont ensuite caractérisés d'un point de vue morphologique mais aussi optique au moyen de microscopie photothermique et ellipsométrie pour observer l'éventuelle présence de centres absorbants potentiels initiateurs d'endommagement laser^{56, 57}. La comparaison des résultats avant et après irradiation permet d'observer l'évolution ou l'absence d'évolution du substrat et du nombre de particules. Chaque étape est détaillée ci-dessous.

3.1. Préparation des échantillons

• Préparation des substrats

Dans le cadre de l'étude de la pollution « modèle », les substrats de silice utilisés sont identiques à ceux employés pour l'étude de la pollution de la LIL et représentatifs des composants optiques de la LIL et du LMJ. Certains substrats sont traités antireflet par procédé sol gel. Le dépôt effectué par trempage - retrait ou par enduction centrifuge au CEA/Le

⁵⁶ S. Papernov, A.W. Schmid. Correlation between embedded single gold nanoparticles in SiO₂ thin film and nanoscale crater formation induced by pulsed laser radiation, *J. Appl. Phys.*, **92**, 5720 (2002).

⁵⁷ J.Y. Natoli, L. Gallais, B. Bertussi, A. During, M. Commandré, J.L. Rullier, P. Bonneau, P. Combis. Localized pulsed laser interaction with submicronic gold particles embedded in silica; a method for investigating laser damage initiation, *Opt. Express*, **11**, 824 (2003).

Ripault. Cette dernière technique est schématisée sur la figure II-11. L'enduction centrifuge consiste à verser la solution de silice colloïdale sur un substrat placé sur une platine en rotation. La vitesse de rotation du substrat définit l'épaisseur du dépôt (210 nm à $\lambda=1053$ nm et 69 nm antireflet à $\lambda=351$ nm).

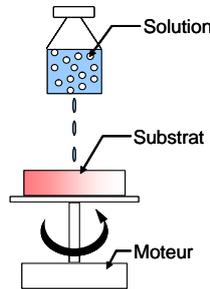


Figure II-11: Technique de dépôt en milieu liquide : l'enduction centrifuge.

Le nettoyage des substrats de silice est effectué de la même manière que pour les silices exposées dans la LIL : par application d'un chiffon propre imbibé d'éthanol et séché à l'azote. Pour les substrats traités antireflet durcis (par vapeur d'ammoniac), un nettoyage a été réalisé par aspersion d'éthanol et séchage à l'azote filtré. Les substrats traités antireflet non durcis ne sont pas nettoyés. Le dépôt étant effectué dans des conditions de propreté très rigoureuse, le substrat est considéré propre. Le dépôt de particules est effectué immédiatement après traitement.

La pollution particulaire doit être parfaitement définie afin de pouvoir expliquer tous les phénomènes observés sur les échantillons pollués dans la LIL. Différentes techniques de dépôt ont été adoptées en fonction du substrat.

- **Préparation de particules sur un substrat de silice sans traitement**

La méthode adoptée doit permettre le dépôt de matière sur une petite zone (de l'ordre de grandeur d'une particule) et ne doit pas apporter de pollution. Les sociétés Application Couches Minces et Optimask ont été sollicitées pour préparer les particules métalliques par le procédé de photolithographie. Cette technique permet de transférer des motifs de taille micronique d'un masque sur une résine. Le principe de la photolithographie schématisé sur la figure II-12 s'apparente à celui de la photographie, puisqu'il comporte une étape d'insolation, de révélation puis de développement.

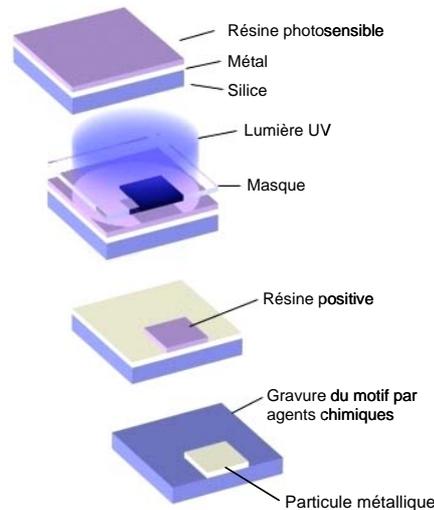


Figure II-12: Principe du dépôt par photolithographie d'une particule métallique.

Le substrat est entièrement recouvert du métal choisi sur une épaisseur déterminée par évaporation. Il est ensuite recouvert de résine par enduction centrifuge. Le masque dont les motifs représentent les particules est mis en contact sur la résine et insolé pendant quelques secondes par une lumière ultra violette. L'insolation engendre des modifications chimiques au sein de la résine exposée. Cette dernière est dite positive car la zone éclairée devient plus soluble. L'utilisation d'un développeur, solvant spécifique à la résine utilisée, va éliminer les parties de résine insolées laissant apparaître la couche de métal. L'étape suivante est la gravure du motif. Elle consiste à éliminer la couche de métal au niveau des zones insolées à l'aide d'agents chimiques. Enfin la résine non exposée à la lumière UV est nettoyée à l'acétone, à l'éthanol puis rincée à l'eau dé ionisée et séchée à l'azote. Sur la plupart des échantillons « modèles », les particules sont déposées en réseaux de six lignes et six colonnes pour être facilement localisées.

Par la suite, une méthode plus rapide a été adoptée : l'évaporation en phase vapeur (en abrégé PVD). Cette technique schématisée sur la figure II-13 a été utilisée au CEA LITEN.

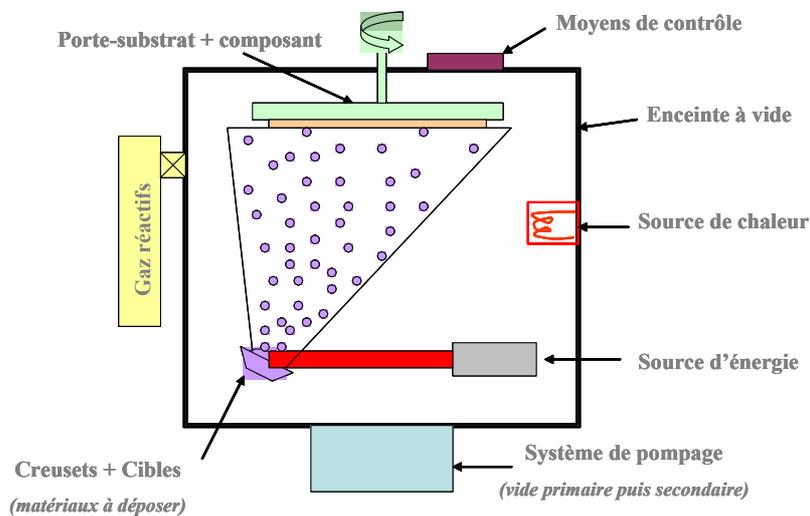


Figure II-13: Principe du dépôt des particules par PVD.

La technique de dépôt par PVD utilisée consiste à créer une phase vapeur à partir d'un matériau sous forme solide. Le matériau à évaporer est placé dans un creuset, dans un bâti sous vide. Il est porté à haute température jusqu'à ce qu'il soit vaporisé. Les sources d'évaporation par bombardement électronique comportent un filament en tungstène chauffé à haute température (de 2500 °C à 2800 °C). Il génère un faisceau d'électrons accélérés par une haute tension (10 kV) et défléchi par un champ magnétique de façon à venir bombarder la charge du creuset. Le substrat est en regard de ce creuset. Une grande quantité de matériaux peut ainsi se déposer. Les atomes en phase vapeur se condensent sur le substrat.

Le dépôt de particules a été effectué à travers un masque constitué d'une fine feuille d'acier dont les trous correspondent à la forme et aux dimensions des particules désirées. Le masque n'est pas en contact avec l'échantillon mais à une faible distance afin de ne pas le polluer.

- **Dépôt sur silice traitée antireflet**

Pour obtenir un dépôt de particules aussi proche que possible du dépôt occasionné sur la LIL, une autre technique a été employée : l'enduction centrifuge. Elle permet une répartition homogène des particules de nature connue sur un substrat de silice traitée antireflet durci. Quelques grammes de particules sont dilués dans de l'éthanol. Nous agitons la solution et

prélevons les particules en suspension. L'ensemble est versé sur le substrat en rotation selon les mêmes paramètres fixés que précédemment. Ceci permet de répartir les particules d'aluminium de façon homogène, l'éthanol s'évaporant très rapidement. Par cette méthode, l'adhérence des particules sur le substrat est similaire à celle des particules collectées sur les surfaces optiques de la LIL.

3.2. *Caractérisation de la pollution*

Tous les échantillons sont caractérisés avant d'être irradiés. Les moyens utilisés sont la microscopie optique pour imager les particules, la profilométrie optique et la Microscopie à Force Atomique (AFM) pour mesurer les trois dimensions caractéristiques des particules (hauteur, largeur et épaisseur). Le principe des différentes méthodes de caractérisation est résumé dans l'annexe A.

- **Microscopie optique**

Pour la plupart des échantillons, la microscopie optique a été utilisée au CEA/CESTA au Département Laser de Puissance pour observer la particule et le substrat avant et après irradiation. Pour quelques observations, un microscope en mode Nomarski localisé à l'Institut Fresnel a également été utilisé.

- **Profilométrie optique**

La mesure des trois dimensions associées aux particules et aux impacts laser est effectuée par profilométrie optique en collaboration avec l'institut Fresnel de Marseille. Il s'agit d'un dispositif commercial : *Talysurf CCI 3000 3D* de chez *TAYLOR-HOBSON*. Basé sur une mesure d'interférométrie en lumière blanche, il permet de faire des mesures de topographie sans contact de la surface des échantillons. Nous obtenons une cartographie dont les niveaux de couleurs correspondent à différentes hauteurs du matériau. A partir de ces cartographies, des coupes peuvent être réalisées afin d'obtenir un profil en hauteur/profondeur.

- **Microscopie à Force Atomique**

Pour obtenir une meilleure résolution latérale que celle obtenue par profilométrie, il est nécessaire d'utiliser la Microscopie à Force Atomique (AFM). Cette technique permet de mesurer la topographie de surface à haute résolution. Les mesures ont été effectuées au Laboratoire de Physico Chimie Moléculaire de l'université de Bordeaux 1 (LPCM) et à l'Institut Fresnel à Marseille. L'appareil utilisé au LPCM est un CP Research de chez Thermomicroscope. Nous avons essentiellement travaillé en mode dynamique non contact avec une sonde de type NCL (Nanosensor). Deux tubes piézoélectriques permettant respectivement un balayage latéral de 100 et 5 μm et un déplacement vertical de 8 et 1,5 μm ont été utilisés. Les dimensions des zones étudiées s'étendent de quelques micromètres à plusieurs dizaines de micromètres de côté.

3.3. *Irradiation des disques pollués*

Les irradiations ont été effectuées sur les mêmes bancs de tenue au flux du CEA/CESTA du Département Laser de Puissance que ceux présentés dans la partie II.2.3. Les paramètres de longueur d'onde, fluence, nombre d'irradiations et incidence du laser ont été testés sur les

différentes particules et les différents substrats. L'échantillon est déplacé par une platine de façon à positionner la particule sous le flux. Selon les paramètres étudiés, la particule est irradiée une ou N fois. Lors de plusieurs irradiations successives, les tirs laser sont effectués l'un après l'autre afin d'observer visuellement au microscope si un endommagement est apparu et d'éviter les phénomènes de « fatigue » de la silice⁵⁸. La fatigue de la silice correspond à une fragilisation du matériau sous une succession de tirs à une fréquence de répétition élevée et à une fluence inférieure à celle nécessaire pour initier un endommagement après un tir.

3.4. Analyse après irradiation

Pour mettre en évidence les modifications engendrées sur les échantillons par le rayonnement laser, nous avons utilisé différentes techniques. Elles permettent d'une part d'obtenir des informations sur la morphologie du site irradié et sur les propriétés optiques. L'objectif est alors de mesurer l'impact de chacun des paramètres du laser, de la particule sur le substrat.

- **Microscopie optique, profilométrie optique, microscopie à force atomique**

Les particules sont observées avant et après irradiation dans les mêmes conditions par les mêmes appareils : microscopies optiques, à force atomique et par profilométrie optique.

- **Microscopie photothermique**

L'irradiation des composants pollués peut provoquer l'apparition de sites absorbants qui sont caractérisés par photothermie. Cet outil a été utilisé en collaboration avec l'Institut Fresnel à Marseille^{59, 60}. Son principe de fonctionnement est basé sur l'effet mirage. Il permet d'obtenir des cartographies d'absorption de dimension jusqu'à $80 \mu\text{m} \times 80 \mu\text{m}$ avec une résolution proche du micromètre. Avec la configuration utilisée, nous pouvons détecter un niveau d'absorption de 10^{-5} avec une imprécision de l'ordre de $\pm 10 \%$.

- **Résultats obtenus**

La difficulté majeure pour l'ensemble des caractérisations a été la faible dimension des objets. Les particules sont de dimensions supérieures au micromètre et donc invisibles à l'œil nu la plupart du temps. Après irradiation, elles ne présentent plus le même aspect. Une bonne localisation des sites irradiés était alors complexe. La comparaison des observations effectuées au microscope avant et après irradiation permet d'évaluer l'évolution des particules et la présence d'endommagement ou de modification de surface. La modification du substrat caractérisée de façon plus précise par profilométrie optique ou AFM, et photothermie a permis de préciser les phénomènes occasionnés par l'irradiation laser, l'influence des paramètres du laser, de la particule et de la surface.

⁵⁸ A.E. Chmel. Fatigue laser-induced damage in transparent materials, *Materials engineering B***49**, 175 (1997).

⁵⁹ A. During. Microscopie photothermique et endommagement laser, thèse de doctorat, Université Aix Marseille III (2002).

⁶⁰ A. During, M. Commandre, C. Fossati, B. Bertussi, JY. Natoli, JL. Rullier, H. Bercegol, P. Bouchut. Integrated photothermal microscope and laser damage test facility for in-situ investigation of nanodefekt induced damage, *Opt. Express* **11**, 2497 (2003).

Les dispositifs et moyens utilisés ont fait l'objet d'une collaboration particulièrement étroite entre les membres du Groupe de Travail sur l'Endommagement Laser : le Département Laser de Puissance du CEA/CESTA, le Laboratoire Sol Gel du CEA Le Ripault, le CEA/DIF, et l'Institut Fresnel de Marseille.

Cette démarche expérimentale a été mise en place pour caractériser la pollution particulaire déposée en surface des composants optiques, et pour étudier son influence dans l'initiation d'endommagement laser critique. Pour cela, nous utilisons différents substrats : des pastilles carbonées, des substrats de silice dont certains sont traités antireflet. Les résultats obtenus sur ces trois substrats sont développés dans les chapitre III et IV. Le chapitre III concerne la pollution collectée dans la partie de la LIL où la longueur d'onde du laser est 1053 nm. La chapitre IV traite de celle prélevée dans la partie de la LIL où la longueur d'onde est 351 nm. Ces deux parties sont développées selon la même structure : caractérisation de la pollution, irradiation de substrats représentatifs des composants optiques de la LIL pollués, irradiation des particules « modèles », simulation numérique et la synthèse des résultats.

Chapitre III : Pollution particulaire sous flux laser à 1064 nm

Dans ce chapitre III, nous analysons la pollution issue de la partie de la LIL où la longueur d'onde du laser est de 1053 nm. Cette pollution peut se déposer sur des composants optiques en silice dont les propriétés sont sensiblement les mêmes à 1053 et à 1064 nm. Dans notre étude, nous utilisons un banc laser d'une longueur d'onde 1064 nm.

Des substrats collecteurs de particules sont placés en différentes zones dans la LIL puis observés. Chaque particule déposée est caractérisée. Des substrats représentatifs des composants optiques sont également placés dans la LIL pour récolter des particules. Ils sont ensuite soumis au rayonnement laser afin de mesurer l'influence de la pollution sur l'initiation d'endommagement laser. Pour déterminer les paramètres qui pilotent les effets de l'interaction rayonnement laser/particule/substrat, une étude est réalisée sur une pollution constituée de particules dite « modèles » dont la nature, la taille et la forme sont connues. Elles sont préparées par photolithographie sur des substrats représentatifs des composants optiques, observées puis irradiées et analysées. Pour compléter les résultats expérimentaux, des simulations numériques ont été réalisées. Certains paramètres qui n'ont pu être testés expérimentalement sont alors évalués. Enfin, une synthèse est effectuée à partir de l'ensemble des résultats obtenus.

1. Différents types de pollution étudiés

Dans le chapitre II, nous avons décrit les techniques de dépôt des particules émises dans la LIL ou « modèle ». Dans cette partie, nous développons toutes les caractéristiques associées aux particules et leur condition de dépôt ou de préparation.

1.1. Les particules collectées dans la LIL et particules « modèles »

Ces caractéristiques sont regroupées dans le tableau III-1.

Type de Pollution		Type de Substrat	
Particules collectées dans la LIL			
<ul style="list-style-type: none"> • Section Amplificatrice (3 zones) • Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (1 zone) 	Durée: 48 jours nov. à déc. 2005	<ul style="list-style-type: none"> • Pastille carbonée • Substrat de silice • Substrat de silice traité antireflet 	
Particules Modèles			
Nature Forme Largeur (µm) Techniques de dépôt	Carbone  3ϕ<math><100\mu\text{m}</math> Dispersion	Silice  100 PVD	Chrome Aluminium   et  50 50 et 7 50 Photolithographie
			<ul style="list-style-type: none"> • Substrat de silice

Tableau III-1 : Différents types de pollution étudiés et leurs substrats associés.

Les deux types de pollution sont obtenus par des méthodes très différentes. Les particules issues de la LIL sont collectées par exposition de substrats, pendant une durée déterminée, dans les divers environnements à tester. Les pastilles carbonées, les substrats de silice traités antireflet et ceux non traités ont été placés dans la Section Amplificatrice (SA) et le Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (SCF) de novembre à décembre 2005, pendant 48 jours. Leur position horizontale permet de recueillir les particules déposées par simple sédimentation. Dans les environnements où ils ont été exposés, ils ont été soumis à la même pollution que les composants optiques de la LIL qui sont irradiés à 1053 nm.

Les pastilles carbonées sont des disques de 1,2 cm de diamètre et de 1,13 cm² de surface utile. Deux sont positionnées dans chacune des zones de la SA et une seule se situe dans le SCF. Les substrats de silice, insérés dans chacune des zones de la SA, sont de surface carrée, de dimensions 1 cm × 1 cm × 0,5 cm et de surface utile totale de 1,54 cm² pour les quatre substrats non traités antireflet et 0,77 cm² pour les deux traités antireflet. Dans le SCF, milieu non confiné, deux disques de silice de 2,5 cm de diamètre, de 0,3 cm d'épaisseur et de 2,26 cm² de surface utile sont positionnés. Sur ces deux derniers, un est traité antireflet.

Les particules «modèles», quant à elles, sont élaborées par diverses techniques. Le choix de la nature des particules a été effectué à partir de la caractérisation de la pollution présente dans la LIL. Les particules les plus représentées dans la LIL étaient en carbone, silice et aluminium. Nous nous sommes donc essentiellement concentrés sur un type de particule potentiellement initiateur d'endommagement laser : l'aluminium⁶¹, principal composant du caisson de confinement de la SA. La forme et les dimensions variables des particules «modèles» traduisent la variété de polluants rencontrés dans la LIL. Selon les échantillons, les dimensions du substrat de silice super polie sur lesquels sont déposées les particules «modèles» s'étendent de 2,5 à 10 cm de diamètre.

1.2. Les zones de prélèvement de la LIL

La pollution particulaire collectée dans la LIL et étudiée dans ce chapitre est celle provenant de la Section Amplificatrice (SA) et du Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (SCF). Les substrats décrits précédemment sont insérés au niveau de quatre zones pour collecter la pollution. Leur position est désignée par quatre étoiles sur le schéma de la figure III-1.

⁶¹ F.Y. Génin, K. Mitchlitsch, J. Furr, MR. Kozwolski, P. Krulevitch. Laser induced damage of fused silica at 355 and 1064 nm initiated at aluminum contamination particles on the surface, Proc. of SPIE **2966**, 126 (1997).

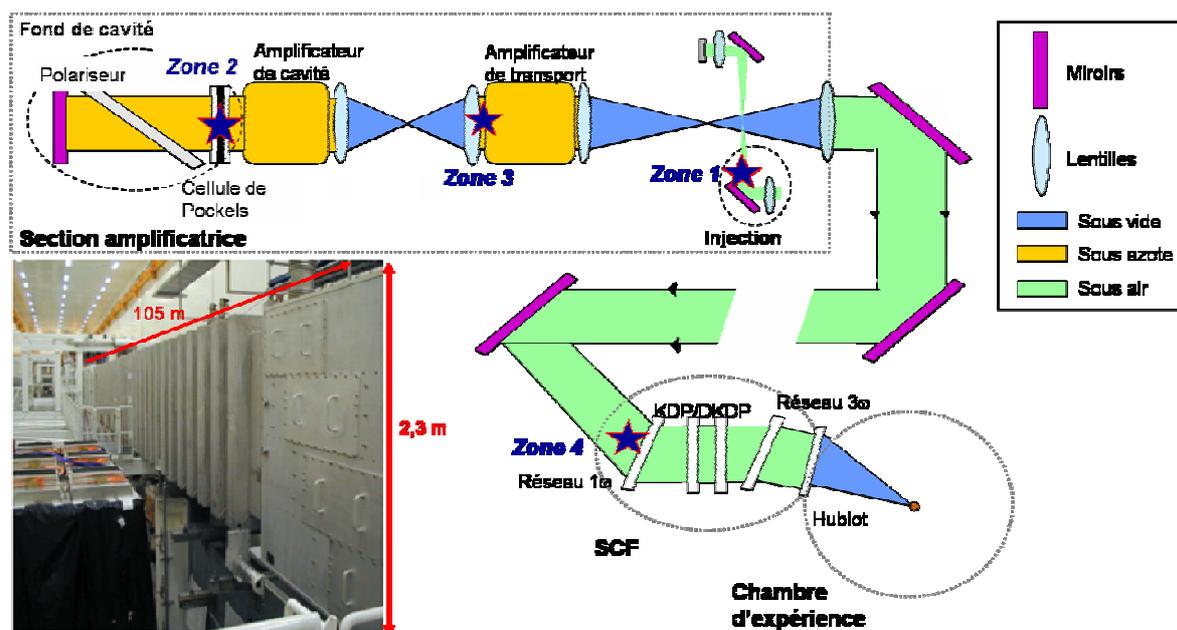


Figure III-1: Schéma de propagation du faisceau laser et photographie de la section amplificatrice.

Des substrats collecteurs de particules sont insérés au niveau de trois zones dans la SA, notées 1, 2 et 3 sur la figure III-1 : l'injection basse, le fond de cavité et le tubage 3 entre l'amplificateur de transport et une lentille. L'injection basse correspond au transport du faisceau entre le module de pré amplification situé après le pilote (la source laser) jusqu'aux amplificateurs. Cette zone est sous air. Le fond de cavité est sous une faible ventilation d'azote imposée par le matériau verre laser qui est sensible à l'hygrométrie. La zone 3, à proximité des amplificateurs de transport, est également sous ventilation d'azote. Cette ventilation exercée de haut en bas est forcée avec un débit de l'ordre de $100 \text{ m}^3/\text{h}$, dix minutes après le tir laser et pendant 90 minutes pour refroidir le milieu amplificateur. En l'absence de tirs, les amplificateurs sont en légère surpression de 5 mbar par rapport au reste de la SA. Seuls les filtrages spatiaux sont placés sous vide pour limiter les phénomènes de claquage. Les substrats positionnés devant les réseaux dits 1ω du SCF (zone 4) sont soumis à un flux d'air de vitesse d'écoulement 1 m/s . En fin de chaîne laser, les composants optiques de la chambre d'expérience sont sous vide.

Afin de connaître au mieux l'environnement dans lequel les particules ont été collectées, nous revenons en détail sur les quatre zones de prélèvements, les matériaux présents, les caractéristiques du faisceau laser. Les figures de III-2 à III-5 représentent les environnements des zones 1, 2, 3 et 4. Chaque figure se compose d'un schéma de propagation du faisceau laser dans la zone étudiée ainsi que d'une photographie. Les faisceaux laser en traits pleins (et rouges) sont ceux en fonctionnement ; ceux en pointillés (et blanc) ne fonctionnent pas actuellement. Sur chaque schéma, quatre faisceaux laser sur les huit présents dans la LIL sont représentés et un repère (x, y, z) permet de s'orienter. L'axe z est dans la direction de propagation du faisceau (horizontale), y dans la hauteur (verticale) et x dans la largeur de la chaîne laser.

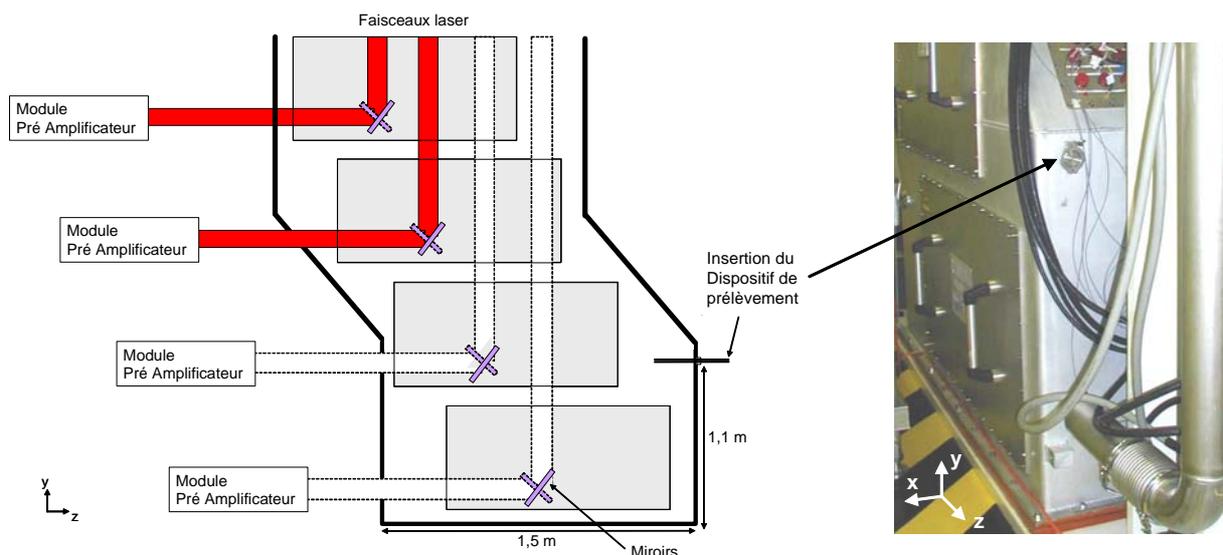


Figure III-2 : Zone 1, l'injection basse.

L'injection basse est localisée au niveau du sol alors que la majeure partie de la chaîne laser se situe à environ 3 m de haut. C'est un environnement clos. Il est en légère surpression air (5 mbar), et qualifié ISO 6 à la construction (concentration maximale de 293 particules/m³ d'air de diamètre supérieur à 5 µm). Cette zone ne possède pas de ventilation particulière. Les matériaux présents dans l'injection et à proximité des substrats sont les structures métalliques, des joints, des câbles et des miroirs. Les miroirs, lors de l'équipement de la LIL, respectent le niveau 160 de la norme STD CC 1246D (au maximum 12500 particules de taille supérieure ou égale à 5 µm par 0,1 m²). L'injection ne contient pas de milieu actif, générateur de particules. Une représentation très schématique du parcours du faisceau laser de 25 mm de côté met en évidence l'éloignement des échantillons du faisceau laser. La fluence du faisceau laser est faible de l'ordre de 0,1 J/cm².

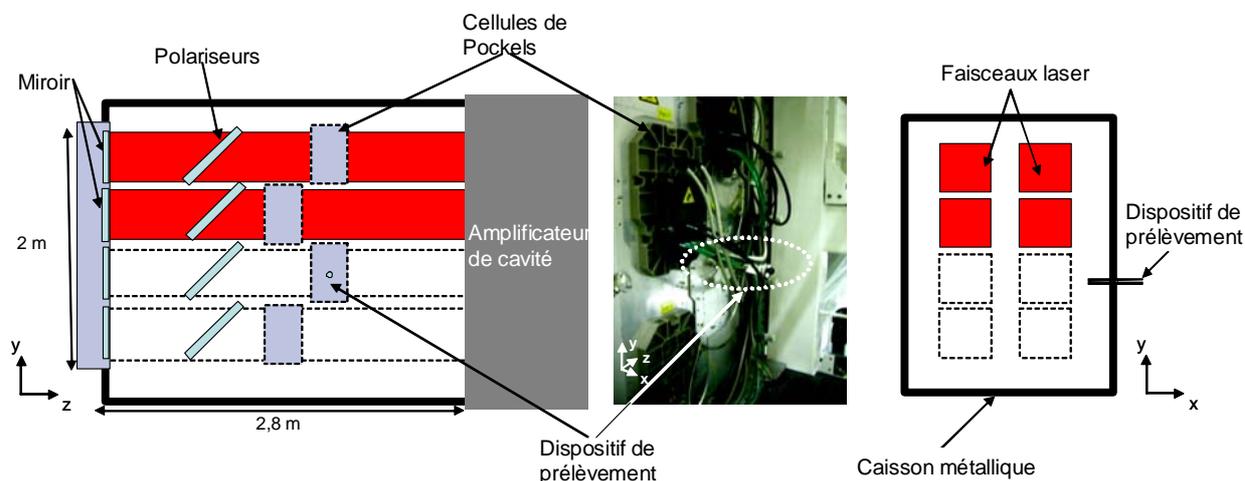


Figure III-3 : Zone 2, le fond de cavité.

Le fond de cavité est localisé à 3 m de hauteur. C'est un environnement clos maintenu en atmosphère ultra propre au moyen d'un système de surpression d'azote filtré et classé ISO 5 (concentration maximale de 29 particules/m³ d'azote de diamètre supérieur à 5 µm). Les matériaux présents dans cet environnement sont nombreux : les câbles, joints, soufflets en hypalon, structures métalliques et les composants optiques (hublots de cellule de Pockels, polariseurs, miroirs, verres amplificateurs, lampes flashes, lame pare-éclats...). Les polariseurs et les miroirs, après intégration sur la LIL, respectent le niveau 88 de la norme STD CC

1246D (au maximum 1250 particules de taille supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ par $0,1 \text{ m}^2$). Les éléments des amplificateurs sont intégrés avec une propreté de surface qualifiée niveau 36 (au maximum 60 particules de taille supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ par $0,1 \text{ m}^2$). Les substrats collecteurs de particules se situent à un peu plus d'1 m de l'amplificateur de cavité. L'amplificateur de cavité étant un milieu actif générateur de particules⁶², des particules en quantité non négligeable peuvent être générées et sont susceptibles de se déposer sur les surfaces optiques⁶³. Le faisceau laser le plus proche est éloigné d'environ 30 cm selon l'axe y et l'axe x. La fluence de chaque faisceau est de l'ordre de 5 J/cm^2 à une durée d'impulsion de quelques nanosecondes.

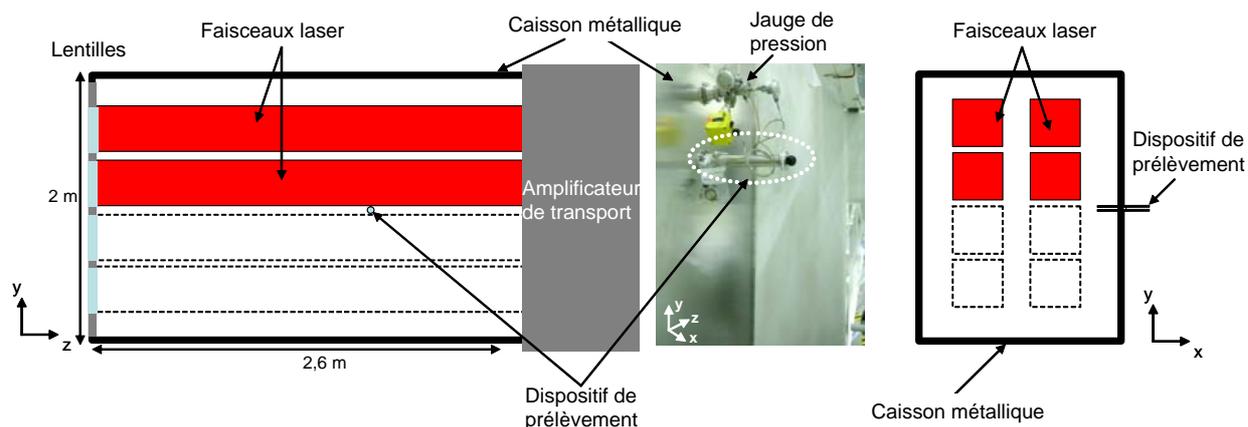


Figure III-4 : Zone 3, l'amplificateur de transport.

La zone 3 de prélèvement se situe dans un environnement clos entre l'amplificateur de transport et la lentille (L2). Cette dernière délimite l'environnement azoté imposé par l'amplificateur classé ISO 5 (concentration maximale de $29 \text{ particules/m}^3$ d'azote de diamètre supérieur à $5 \mu\text{m}$). Dans cette zone, les matériaux environnants sont les lentilles en silice traitées antireflet, les amplificateurs (verres amplificateurs, lampes flash et lames pare-éclats), des joints et la structure métallique. Les lentilles, après intégration sur la LIL, respectent le niveau 160 de la norme STD CC 1246D (au maximum 12500 particules de taille supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ par $0,1 \text{ m}^2$). De nouveau, l'apport potentiel de particules par l'amplificateur, un milieu actif, peut être observé. Le faisceau laser le plus proche des substrats collecteurs de particules se situe à 5 cm en y et 10 cm en x. Chaque faisceau atteint une fluence de l'ordre de 10 J/cm^2 (à quelques nanoseconde). L'objectif de ce prélèvement est de collecter la pollution présente dans une zone à très faible maintenance.

⁶² F. Gensdarmes, G. Basso, I. Tovenà, S. Palmier. Caractérisation des aérosols polluants produits dans un amplificateur de laser de puissance, Salles propres **36**, 80 (2005).

⁶³ J. Honig. Cleanliness improvements of National Ignition Facility as compared to previous large-scale lasers, Opt. Eng. **43**, 2904 (2004).

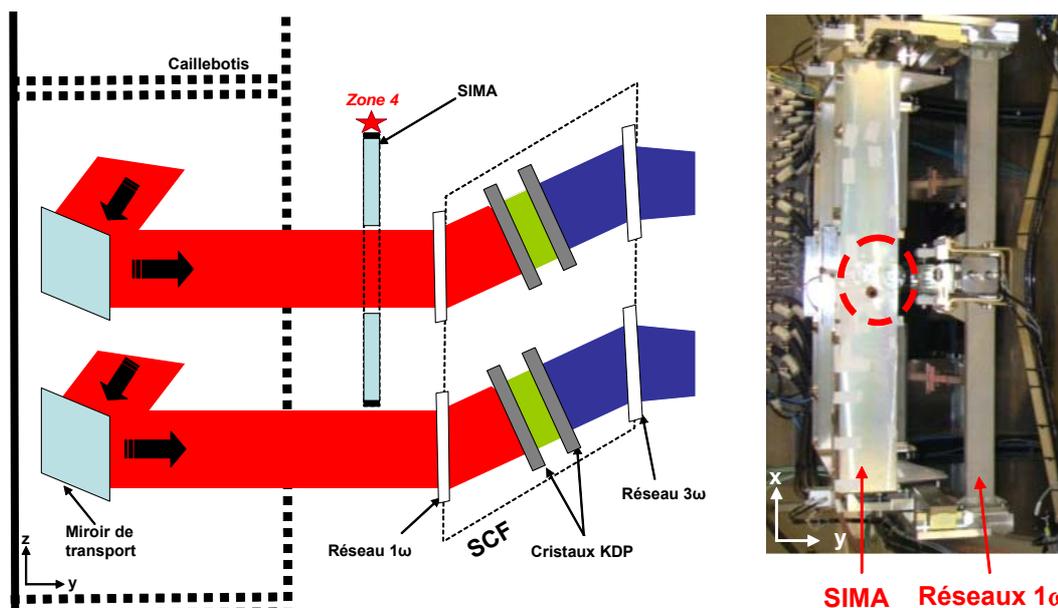


Figure III-5 : Zone 4, devant les réseaux 1ω .

La zone 4 de prélèvement se situe hors de la SA, dans le SCF, devant les réseaux 1ω . Le SCF est localisé dans une salle propre ventilée classée ISO 7 (concentration maximale de $2930 \text{ particules/m}^3$ d'air de diamètre supérieur à $5 \mu\text{m}$). Le personnel qui intervient dans cette zone est habillé d'une combinaison en polyester recouvrant la totalité du corps excepté les yeux. Les composants optiques du SCF, lors de l'équipement de la LIL, respectent le niveau 100 de la norme STD CC 1246D (au maximum 1780 particules de taille supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ par $0,1 \text{ m}^2$). Les substrats sont localisés sur la structure métallique du Système Insérable des Miroirs d'Alignement (SIMA). Le SIMA est un ensemble mobile, d'une vitesse de déplacement de $0,2 \text{ m/s}$, servant à aligner les faisceaux sur la cible grâce à quatre miroirs parallèles. Les matériaux environnants sont essentiellement métalliques : structures opto-mécaniques, caillebotis. Le faisceau laser le plus proche passe à environ 40 cm en contre bas des substrats collecteurs. Le faisceau laser sur les réseaux 1ω a une fluence de l'ordre de 15 J/cm^2 à 1053 nm pour une durée d'impulsions de quelques nanosecondes.

Nous venons de voir les caractéristiques des différents environnements dans lesquels sont positionnés nos substrats collecteurs. Elles correspondent à la partie de la LIL où la longueur d'onde du laser est de 1053 nm . Dans l'injection, du fond de cavité et à proximité de l'amplificateur de transport et devant les réseaux 1ω , la fluence du laser est croissante. Chacune de ces zones sont caractérisées par un gaz ambiant (air ou azote), divers matériaux environnants, et une accessibilité différente. Nous allons maintenant caractériser les particules déposées sur ces substrats.

2. Caractérisation de particules déposées par sédimentation

Le mécanisme principal de dépôt des particules sur une surface horizontale dans les environnements décrits précédemment est la sédimentation. Pour caractériser les particules collectées, nous utilisons les pastilles carbonées placées dans la LIL, pendant 48 jours. Chacune des particules recueillies en surface des pastilles est observée au MEB/EDS. Par

ailleurs, pour un bon échantillonnage, un comptage reproductible et une caractérisation physico chimique fiable, nous considérons les particules de dimension supérieure ou égale à 3 µm.

2.1. Taux de pollution

Les substrats collecteurs de particules sont, dans la LIL, en position horizontale. L'empoussièrément est donc cumulé sur toute la période de prélèvement. Le nombre de particules collectées est une fonction croissante de la durée d'exposition des substrats. Nous proposons donc de normaliser nos résultats de concentration particulaire surfacique par le temps d'exposition. Nous obtenons ainsi une vitesse effective de pollution particulaire surfacique exprimée en nombre de particules par centimètre carré et par jour (part.cm⁻².jour⁻¹) que l'on appellera taux de pollution journalier. Outre la durée d'exposition, la nature de l'activité dans la LIL est également un facteur influant sur l'émission de particules. Pendant la période de prélèvement, 29 tirs laser ont été réalisés. Un tir correspond à la propagation du faisceau laser jusqu'à la chambre d'expérience. Quatre interventions de maintenance ont été effectuées au niveau de l'injection et deux dans le fond de cavité. Le SCF étant non confiné, le personnel d'entretien intervient tous les jours et une vérification de l'état des optiques est effectuée après chaque tir. Le tableau III-2 regroupe les taux de pollution de particules de taille supérieure à 3 µm mesurées dans chaque zone de prélèvement. L'imprécision sur chaque taux de pollution mesuré est évaluée à 0,07 part.cm⁻².jour⁻¹.

	Taux de pollution mesuré (part./cm ² /jour)	Taux de pollution calculé (part./cm ² /jour)	Concentration surfacique de particules spécifiée (part./cm ²)
Injection basse	0,25	0,06	19,4
Fond de cavité	0,39	0,01	1,95
Amplificateur de transport	0,27	0,01	1,95
Réseaux 1ω	0,56	0,5	3,1

Tableau III-2 : Taux de pollution journalier aux différents points de collecte.

Nous proposons de comparer les résultats expérimentaux aux taux de pollution évalués à partir de la concentration volumique de particules (cf. tableau III.2). Dans un cas simple défini par un substrat en position horizontale dans une salle propre de concentration volumique de particules, C , le taux de pollution, $N(d,t)$, sur une surface horizontale en fonction du temps, t en jour, est défini par l'équation III-1^{64,65}. Cette expression est déterminée expérimentalement à partir de comptages de particules de dimensions supérieures à 5 µm déposées en surface de salles propres en activité.

$$\frac{dN(d,t)}{dt} = a.p.C^{0,773} \quad \text{Eq. III-1}$$

soit pour 1 jour, dans une salle propre en activité, $N(d,t) = a.p.C^{0,773} . t$

où d est la dimension des particules considérées en m³,

a est une constante qui vaut 1,076 si la concentration volumique est exprimée en part/m³ (et 1 lorsqu'elle est en part./ft³),

p est un coefficient représentatif de la ventilation de la salle propre. Il est égal à 28 dans une salle propre avec un faible renouvellement d'air (inférieur à 15 changement d'air par

⁶⁴ O. Hamberg. Particulate fallout predictions for clean rooms, J. Env. Sci. may/june, 12 (1982).

⁶⁵ A.C. Tribble. Fundamentals of contamination control, Ed SPIE, **TT44**, 87 (2000).

heure), 2,8 dans une salle propre normale (renouvellement d'air~15-20 par heure) et 580 sous un flux laminaire de vitesse de flux supérieure à 0,5 m/s. Nous choisissons $p = 2,8$ pour considérer un environnement normal de salle propre compatible avec la norme ISO 14644-1 et représentatif de celui de la LIL. Nous considérons C égale à la concentration volumique de particules, maximale, spécifiée dans la norme ISO 14644-1 (cf. tableau I-2) et constante dans le temps soit :

- 85 particules ($\geq 3 \mu\text{m}$)/ cm^3 dans le fond de cavité et à proximité de l'amplificateur de transport, environnements classés ISO 5,
- 846 particules ($\geq 3 \mu\text{m}$)/ cm^3 dans l'injection classée ISO 6,
- 8464 particules ($\geq 3 \mu\text{m}$)/ cm^3 dans le SCF classé ISO 7.

Cette relation est intéressante car elle permet une approche globale de la pollution contrairement aux relations présentées dans la partie I.3.3 où une connaissance très précise de la pollution présente dans l'environnement est nécessaire (diamètre, masse volumique des particules).

Nous comparons également les résultats mesurés aux concentrations surfaciques de particules définies dans la norme STD CC 1246D. Ces dernières sont évaluées pour des particules de taille supérieure ou égale à $3 \mu\text{m}$ et pour des surfaces classées respectivement niveau 88 pour le fond de cavité et l'amplificateur de transport, 100 pour le SCF, 160 pour l'injection basse. Nous rappelons que ces niveaux sont vérifiés à l'intégration initiale de l'optique sur la LIL et ne prennent pas en compte l'effet cumulatif de la pollution avec le temps d'exposition.

Le taux de pollution mesuré pour des particules de dimension supérieure ou égale à $3 \mu\text{m}$ est du même ordre de grandeur dans les quatre environnements (entre $0,25$ et $0,56 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$). Toutefois, un taux d'empoussièrement légèrement plus élevé est obtenu dans le fond de cavité et surtout devant des réseaux 1ω , hors de la SA. La zone la moins polluée est l'injection basse où pourtant se sont déroulés le plus grand nombre d'interventions. Ce taux est très proche de celui mesuré au niveau des amplificateurs de transport qui correspond à une zone où aucune maintenance n'a été relevée. Ces résultats montrent que dans la SA, l'intervention du personnel ne génère pas de pollution excessive. Malgré les différents environnements de prélèvement de la SA, un taux de pollution (de particules $\geq 3 \mu\text{m}$) est homogène et évalué à $0,3 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$. La zone la plus polluée se situe devant les réseaux 1ω pour deux raisons essentielles ; d'une part, il s'agit d'une partie non confinée et accessible au personnel et d'autre part, cet environnement correspond à une concentration volumique plus élevée.

Ces taux mesurés ne sont pas comparables avec ceux obtenus dans le chapitre I car nous considérons, ici, une pollution réelle composée de particules de taille supérieure ou égale à $3 \mu\text{m}$ émises dans un environnement non standard.

La comparaison entre les taux de pollution mesurés et calculés (1^{ère} et 2^{ème} colonnes du tableau III-2) montre une sous-estimation globale des taux de pollution calculés. Ceci s'explique par la présence de sources de pollution dans les différents environnements non prise en compte dans notre modèle (Eq. I.1). L'injection basse est une zone qui peut collecter des particules provenant de l'injection haute. C'est, de plus, une zone peu ventilée limitant ainsi l'évacuation des particules générées. Le fond de cavité et l'amplificateur de transport sont très pollués par rapport au taux de pollution calculé ($0,3$ au lieu de $0,01 \text{ part/cm}^2/\text{jour}$ calculé). Ceci peut s'expliquer par des amplificateurs générateurs de particules à chaque tir (313000 particules $\geq 0,3 \mu\text{m}$ et 700 particules $\geq 1 \mu\text{m}$ en moyenne à chaque tir), et un balayage d'azote ponctuel épurateur vis-à-vis des petites particules mais qui favorise aussi la remise en suspension des plus grosses particules⁶². Dans le SCF, devant les réseaux 1ω , le taux de pollution mesuré est proche de celui calculé. Les interventions ne semblent pas

produire de pollution excessive. Mais la légère différence entre la mesure et le calcul peut provenir d'une source de pollution extérieure.

Les concentrations surfaciques de particules de taille supérieure ou égale à 3 μm définies par la norme STD CC 1246D sont beaucoup plus élevées (3^{ème} colonne du tableau III-2) que les valeurs mesurées. Pour atteindre le niveau spécifié, la durée d'exposition devrait être de : 77 jours dans l'injection, 5 jours au niveau du fond de cavité, 7 jours à proximité de l'amplificateur de transport et 16 jours devant les réseaux 1 ω . Ceci montrerait que, selon cette norme, l'environnement le plus pollué est le fond de cavité et le moins pollué, l'injection basse. Pour étudier plus en détail cette pollution, nous analysons les particules selon leur dimension

Les particules collectées dans chaque environnement ont été réparties en quatre classes : de 3 à 10 μm , de 10 à 20 μm , de 20 à 50 μm , et de 50 à 100 μm . Devant le nombre peu élevé de particules supérieures à 20 μm , les classes des grosses particules sont élargies de 20 à 50 μm , pour la première, et de 50 à 100 μm , pour la dernière. Les différentes proportions de particules collectées, sur les pastilles carbonées placées dans les différentes zones, sont représentées sur la figure III-6. L'imprécision sur chaque taux de pollution mesuré est évaluée à 0,02 $\text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$.

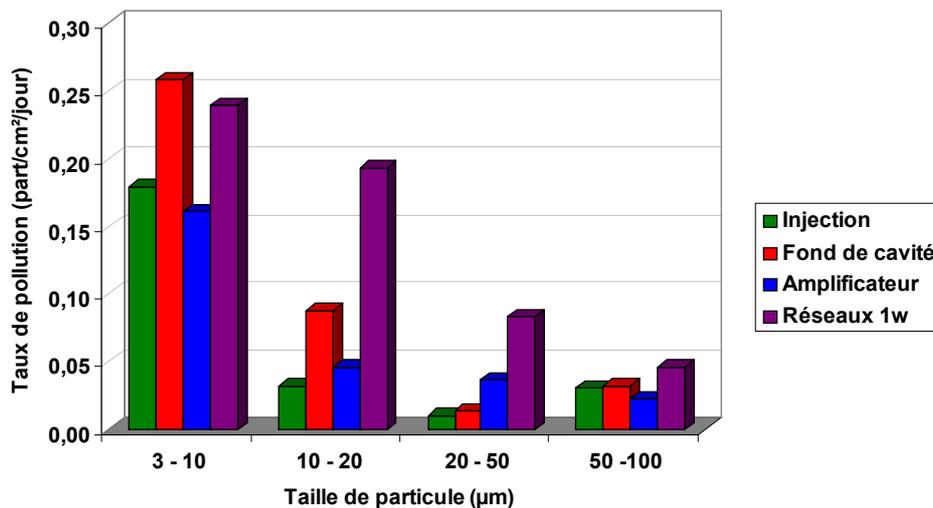


Figure III-6 : Répartition des particules collectées en fonction de leur dimension.

De manière générale, plus la taille des particules est petite, plus leur nombre est élevé. Ceci est d'autant plus remarquable qu'un intervalle de 30 et 50 μm sépare les bornes des classes 20-50 et 50-100 μm . La majorité des particules collectées dans la SA est de dimension comprise entre 3 et 10 μm . La pollution comprise entre 3 et 20 μm collectée dans le fond de cavité est légèrement plus importante car le taux de pollution dans cette zone est plus élevé. La pollution de la SA est non seulement collectée en même quantité et mais également constituée de particules dont la répartition en taille est semblable.

Cette tendance caractérisée par un nombre élevé de petites particules et un nombre faible de grosses particules traduit la sédimentation rapide des grosses particules par rapport aux plus petites. Lors d'une perturbation dans la zone testée (intervention, déplacement mécanique, changement de flux de ventilation), une pollution constituée de particules de toute taille est émise. Les plus grosses, supposées plus lourdes, sédimentent rapidement. Quelques unes peuvent être alors collectées sur les pastilles carbonées. Les plus fines se déposent en un temps plus long. Lors d'une nouvelle perturbation, elles sont aisément remises en suspension

dans le volume et peuvent alors se déposer sur les pastilles carbonées. Elles sont donc collectées en plus grand nombre.

Devant les réseaux 1ω , l'ensemble des particules de taille supérieure ou égale à $10\ \mu\text{m}$ semble plus élevé, mettant ainsi en évidence une pollution plus importante avec un plus grand nombre de grosses particules.

Pour les particules de dimensions supérieures à $3\ \mu\text{m}$, nous avons montré que les taux de pollution mesurés sont supérieurs à ceux calculés, et très inférieurs aux concentrations surfaciques spécifiées. Pour une comparaison plus fine par classe de taille, nous représentons les taux de pollution en fonction de la taille des particules en distribution cumulée de la même manière que les normes volumique et surfacique. Cette répartition permet de connaître pour toute particule supérieure ou égale à une taille donnée en abscisses leur proportion par unité de surface et de temps. La figure III-7 est composée de trois graphiques qui correspondent aux trois environnements différents. Les taux de pollution mesuré dans le fond de cavité et à proximité de l'amplificateur de transport sont représentés sur le même graphique car ces deux environnements sont qualifiés dans la même classe de propreté (ISO 5). Sur chacun des graphiques, trois types de courbes sont représentés. Les points symbolisés par des carrés ou des ronds correspondent aux taux de pollution mesurés. Les points sous formes triangles pleins correspondent au taux de pollution calculé d'après l'équation III-1. Les normes ISO étant définies pour les particules comprises entre $0,1$ et $5\ \mu\text{m}$, seules les concentrations volumiques, et par conséquent les taux de pollution, correspondant à ces tailles sont déterminés puis extrapolés ci dessous. Les points symbolisés par des triangles vides correspondent à la concentration surfacique d'après la norme STD CC 1246D. Cette dernière courbe définit un niveau 88, 100 ou 160 toléré dans un environnement à un temps déterminé : lors de l'intégration du composant optique sur la chaîne laser. Nos mesures, étant liées à une période de prélèvement, ne sont pas directement comparables aux concentrations surfaciques spécifiées. Toutefois, la spécification sert de référence et permet de discuter nos résultats.

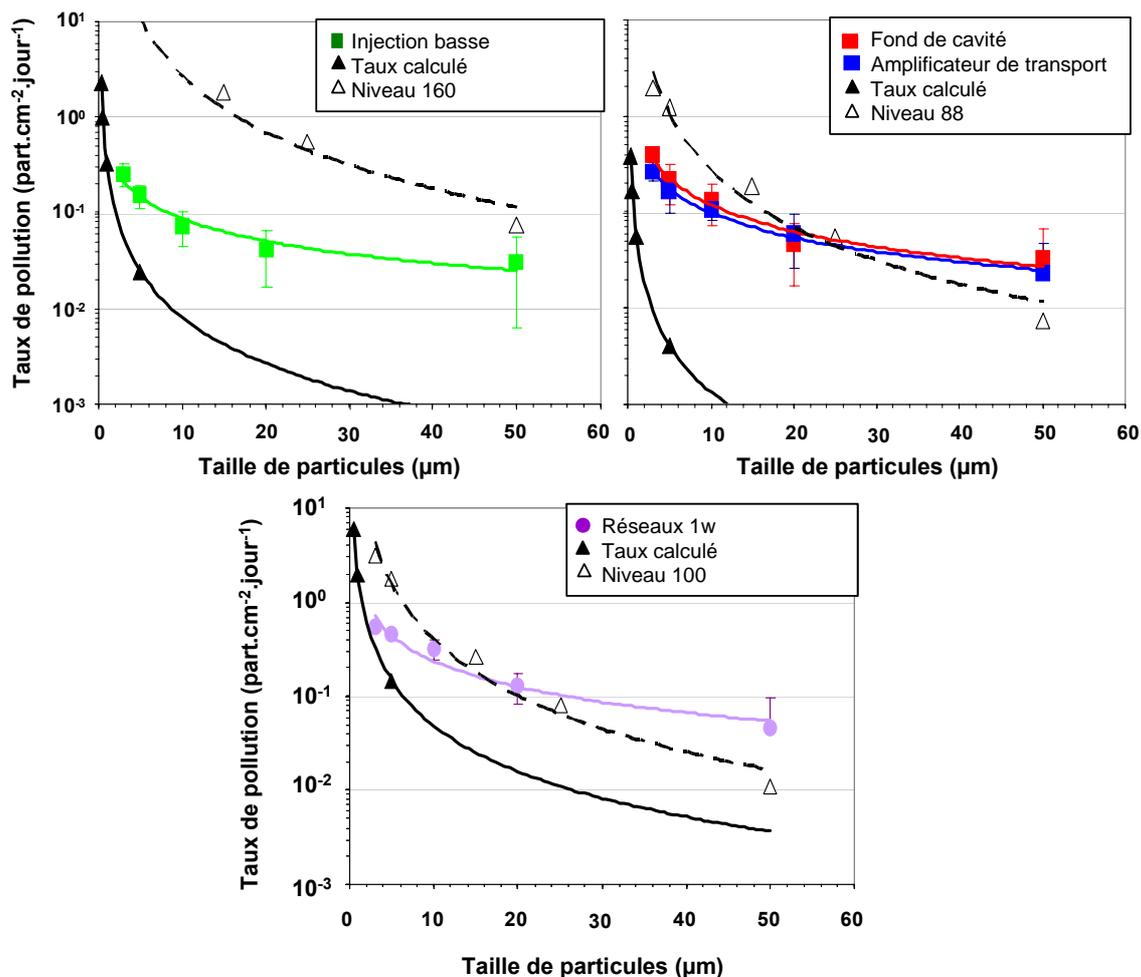


Figure III-7 : Distribution cumulée de particules collectées dans l'injection, le fond de cavité, au niveau de l'amplificateur de transport et des réseaux 1ω comparée aux spécifications.

Pour chaque environnement testé, les points de mesures peuvent être ajustés par une loi en puissance de la taille (courbe en trait plein coloré). Cette distribution en taille est similaire à celle spécifiée dans les normes de propreté volumique et surfacique de salles propres mais aussi à la distribution en taille des aérosols atmosphériques^{66, 67}.

Dans l'injection, les taux de particules, de dimension supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$, mesurés et calculés sont proches. La faible différence observée devient de plus en plus importante avec des particules de taille plus élevée. Même si les grosses particules ($\geq 10\ \mu\text{m}$) sont peu nombreuses, leur présence serait non conforme à ce qui est toléré dans le volume. Si nous considérons les spécifications de surface, nous montrons que sur une optique propre c'est-à-dire sans particule, lors de sa mise en place dans la chaîne laser, un jour n'est pas suffisant pour dépasser la concentration surfacique spécifiée. Plus la taille des particules est élevée, plus la durée nécessaire pour atteindre les niveaux spécifiés est courte : 2,5 jours pour les particules de taille supérieure à $50\ \mu\text{m}$ et 77 jours pour les particules de dimension supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$.

Dans le fond de cavité et à proximité de l'amplificateur de transport, les taux de pollution mesurés sont supérieurs à ceux calculés quelle que soit la taille des particules. Ils mettent en évidence une pollution excessive. La comparaison avec les valeurs caractéristiques du niveau 88 montre que cinq jours sont nécessaires pour dépasser le seuil toléré pour les particules

⁶⁶ CE. Junge. Air chemistry and radioactivity, Ed New York:Academic Press (1963).

⁶⁷ K.T. Whitby. The physical characteristics of sulfur aerosols, Atmos. Envir. **12**, 135 (1978).

supérieures ou égales à 3 μm mais qu'une journée suffit pour les particules supérieures ou égales à 20 μm (et donc moins d'une journée pour celles $\geq 50 \mu\text{m}$).

Devant les réseaux 1 ω , nous retrouvons des taux de pollution plus élevés que ceux calculés. Cette différence devient également de plus en plus importante si nous considérons des particules de plus en plus grosses. Ces résultats montrent donc la présence d'une autre source de pollution dans cet environnement. La concentration surfacique de référence, le niveau 100, est dépassé au bout d'une journée pour les particules supérieures ou égales à 15 μm alors que plus de 5 jours sont nécessaires pour atteindre la concentration surfacique spécifiée de particules supérieures ou égales à 3 μm .

L'analyse des particules dont la dimension est comprise entre 3 et 100 μm fait apparaître une pollution collectée dans les quatre zones de prélèvement du même ordre de grandeur. Le taux de pollution est évalué à 0,3 $\text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$. Une répartition en taille équivalente est obtenue dans les trois zones de la SA. Cependant, sur le substrat placé devant les réseaux 1 ω , la proportion de particules de taille comprise entre 10 et 20 μm est plus importante que dans la SA. Une quantité de particules légèrement plus élevée a donc été comptabilisée dans cette zone (0,56 $\text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$). Ces résultats laissent penser que les particules déposées sont issues d'une part d'une pollution « ambiante », et d'autre part d'une pollution plus localisée. La répartition en taille des particules détectées montre que malgré une croissance du nombre de polluants vers les petites tailles, les particules de dimensions supérieures ou égales à 10 μm sont moins favorables au respect des normes. Pour compléter cette analyse, nous avons réalisé une étude de la composition chimique de ces mêmes particules.

2.2. Composition chimique élémentaire

Deux pastilles carbonées, positionnées côte à côte dans le dispositif de prélèvement dans la zone 3 de la SA, proche de l'amplificateur de transport, ont collecté respectivement 0,61 $\text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ et 0,46 $\text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$. La répartition des particules en trois groupes (organique, métallique et minérale) est représentée sur la figure III-8, pour chaque échantillon.

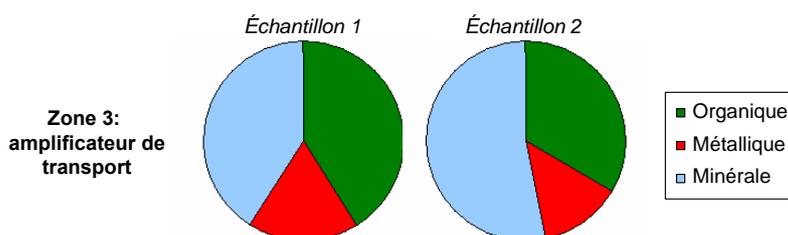


Figure III-8 : Répartition des particules collectées en fonction de leur nature dans la zone 3 de la SA.

Bien que le taux de pollution soit légèrement différent, les deux substrats ont collecté des particules dont la répartition en nature est proche. Une légère différence apparaît entre la proportion de particules minérales et organiques. Elle provient de la présence de quelques particules d'origine humaine (constituées de carbone, sodium, chlore et fluor) sur l'échantillon 1, certainement issues de la manipulation de l'échantillon. Ce résultat conforté par ceux obtenus dans les autres environnements de la SA montre que les mesures sont reproductibles. L'ensemble de particules collectées sur les deux pastilles, placées dans les zones 1, 2 et 3, est utilisé pour calculer les taux de pollution relatifs aux différents types de particules. Ces taux, ainsi que ceux obtenus sur la pastille positionnée devant les réseaux 1 ω

du SCF, sont représentés sur la figure III-9. La précision sur ces taux de pollution est de $0,02 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$.

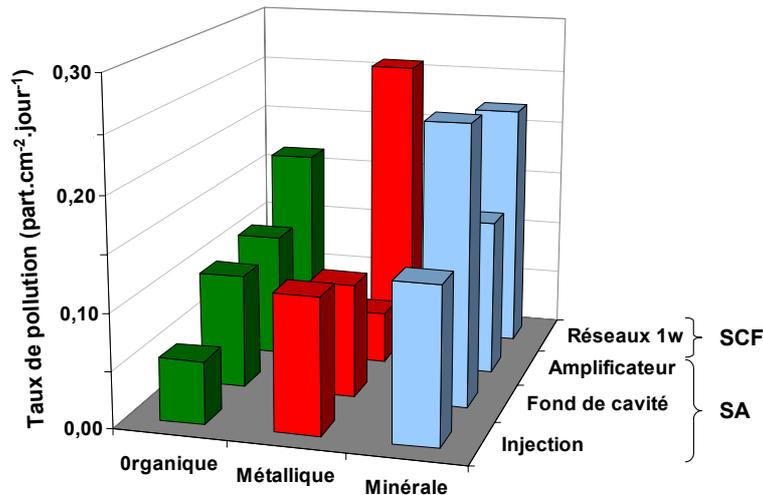


Figure III-9 : Répartition des particules collectées en fonction de leur nature et leur zone de prélèvement.

Le taux de pollution pour les particules d'origine organique, très faible dans l'injection, augmente dans le fond de cavité, à proximité de l'amplificateur de transport pour atteindre un maximum devant les réseaux 1ω . Les particules métalliques sont collectées dans les mêmes proportions dans l'injection et le fond de cavité. À proximité de l'amplificateur de transport, elles représentent une faible proportion. Devant les réseaux 1ω , elles sont en plus grand nombre. Le taux de particules d'origine minérale est le plus élevé dans la plupart des zones et particulièrement au niveau du fond de cavité et des réseaux 1ω .

De manière générale, la pollution collectée dans la SA est composée en majorité de particules d'origine minérale. Le nombre de particules d'origine métallique ou organique diffère selon la zone, mais l'ensemble est du même ordre de grandeur dans les trois zones. Ceci confirme l'homogénéité de la pollution tout au long de la SA, en terme à la fois quantitatif et qualitatif. Devant les réseaux 1ω , la répartition en nature des particules ne semble pas suivre cette tendance : les trois types de particules s'équi-répartissent. Pour confirmer l'homogénéité de la pollution émise dans la SA et préciser l'origine de cette pollution, la répartition des particules détectées est représentée sur la figure III-10 de façon plus détaillée. La précision sur ces taux de pollution est de $0,007 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$.

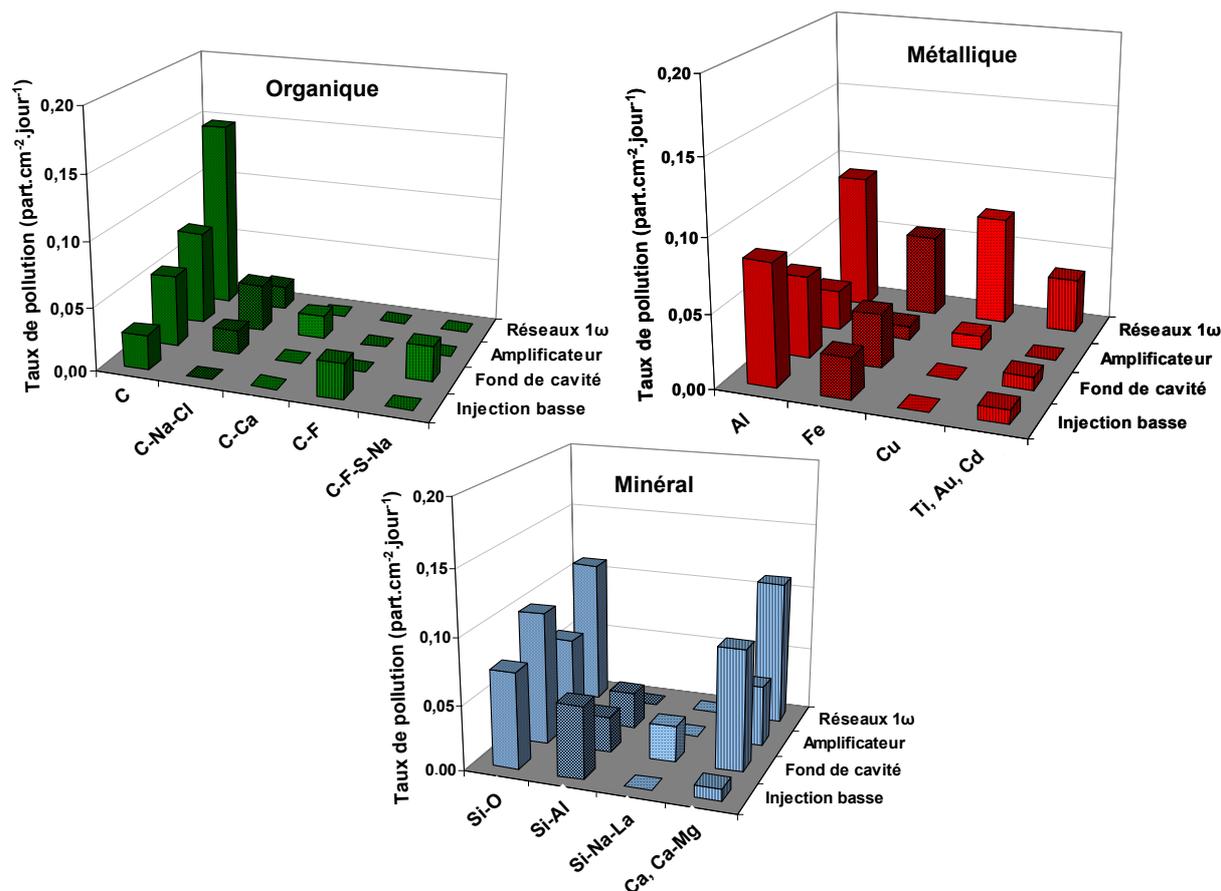


Figure III-10 : Répartition des particules collectées en fonction de leur composition chimique élémentaire et de la zone de prélèvement.

Parmi les particules d'origine organique, nous distinguons celles composées principalement de carbone. Elles sont présentes dans tous les environnements et constituent la majorité des particules organiques. Les proportions mesurées augmentent sur les substrats placés dans l'injection, le fond de cavité, à proximité de l'amplificateur de transport et devant les réseaux 1 ω . Les sources potentiellement émettrices de carbone sont les plastiques, joints, vêtements synthétiques, gants en latex, ou tout matériau brûlé sur le passage de faisceau laser... Au niveau des réseaux 1 ω , le faisceau laser a atteint son énergie maximale. Cette forte énergie pourrait correspondre à une plus grande capacité à brûler tout matériau organique proche. Nous pouvons noter la présence de particules composées, essentiellement, de fluor dans l'injection et le fond de cavité. Les particules à base de fluor, soufre et sodium peuvent provenir de squames de peau. La présence du personnel aurait donc été détectée uniquement dans le fond de cavité et l'injection. Cependant, l'apport de pollution par le personnel reste peu significatif. Excepté dans l'injection, quelques particules de carbone associé à du chlorure de sodium ou du sulfate de calcium ont été également détectées. Ces particules pourraient également provenir du personnel. Mais au niveau des amplificateurs, aucune intervention n'a été comptabilisée. L'autre origine serait la recombinaison d'ions caractéristiques des embruns marins. Les ions Na⁺, Cl⁻, Ca²⁺ et SO₄²⁻ qui ont la propriété de se condenser sous forme de sel sur les surfaces, pourraient traverser les filtres de climatisation⁶⁸.

Les particules métalliques sont essentiellement de l'aluminium, du fer, du cuivre. L'aluminium et le fer sont présents dans tous les environnements. Dans le fond de cavité et à proximité de l'amplificateur de transport, ces particules peuvent provenir de l'illumination des

⁶⁸ G. Guéhéneux, M. Veillerot, I. Tovenà. Evaluation of the airborne molecular contamination inside the LIL, Nucl. instrum. methods phys.res. **557**, 676 (2006).

structures par les lampes flashes d'énergie 2 MJ. Ces éléments peuvent également être issu de tout frottement avec les structures métalliques. Du cuivre a été détecté sur les substrats placés devant les réseaux 1ω . Cet élément est l'élément majeur des nombreux câbles électriques. Du cadmium a également été collecté ; il rentre dans la composition de traitement de certaines vis. Quelques particules de titane ou d'or ont également été retrouvées de façon ponctuelle mais leur origine reste indéterminée. Ces résultats montrent qu'il y a une bonne corrélation entre la nature chimique des particules collectées et les matériaux environnants (support des optiques, caillebotis, caisson de confinement...).

Les particules d'origine minérale semblent être plus diversifiées. Une majorité de particules composées de silicium et d'oxygène est retrouvée dans toutes les zones. L'origine des particules de Si_xO_y pourrait être le vieillissement des composants optiques et leur dégradation sous flux laser. En effet, les proportions sont élevées dans les zones 2 et 4, dans le fond de cavité et devant les réseaux 1ω où les pastilles carbonées sont proches de composants optiques. Elles pourraient également provenir de grains fins de sable apportés par les opérateurs. Une forte proportion de particules composées de calcium et/ou magnésium est également détectée. Ces éléments peuvent provenir des embruns marins. D'autres particules composées de silicium et d'aluminium ont été collectées en quantité non négligeable dans la SA et pourraient avoir des origines similaires.

Ainsi, des particules de carbone, d'aluminium, de fer, de silicium et d'oxygène, de calcium et/ou de magnésium semblent constituer une pollution ambiante collectée en tout point de la LIL. Elles représentent la majorité des particules organiques, métalliques et minérales. Les très légères variations de proportions entre les différentes particules de chaque classe semblent confirmer l'homogénéité de la pollution dans la SA. Par contre, la pollution collectée devant les réseaux 1ω montre une proportion de particules organiques (carbone essentiellement) et métallique (présence importante de cuivre) plus élevée qu'ailleurs.

Une seconde analyse des résultats a été menée en répartissant les particules par classe de taille. Cette caractérisation par granulométrie met en évidence des différences plus fines aussi bien pour la taille que pour la nature des particules. Une répartition en fonction de la taille des particules, de leur nature et de leur zone de prélèvement est représentée sur la figure III-11.

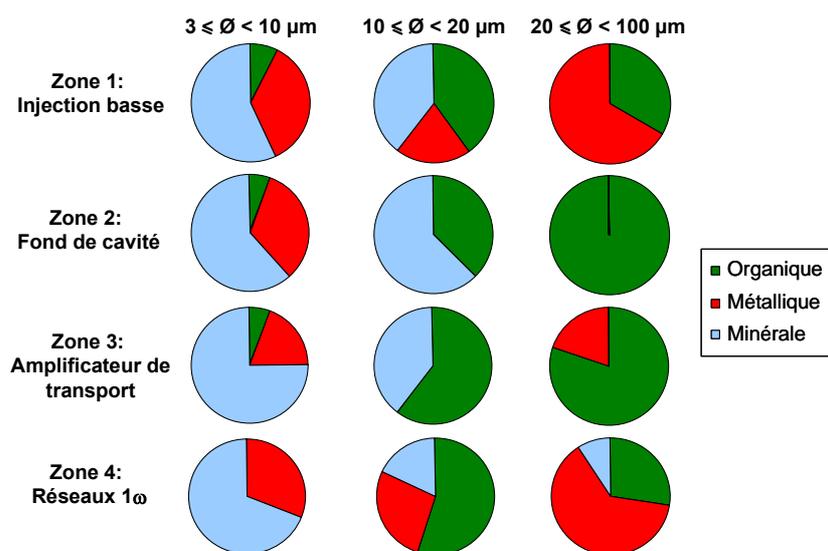


Figure III-11 : Répartition des particules collectées en fonction de leur nature, de leur taille et de leur zone de prélèvement.

Quelle que soit la zone analysée, les particules d'origine organique sont supérieures à 10 μm , et les particules minérales sont inférieures à 20 μm . Seules quelques particules, dans la zone 4, sont minérales et supérieures à 20 μm . Les quelques particules organiques dont la taille est inférieure à 10 μm , ont toutes une provenance d'origine humaine. Les particules métalliques ne montrent pas de tendance significative, elles peuvent être de toute taille. De façon remarquable, la nature de la pollution par rapport à la taille des particules est à nouveau semblable sur chacune des trois zones de la SA. En combinant donc les effets de nombre, de taille et de nature, ces résultats démontrent que malgré l'éloignement des trois zones, la présence de matériaux différents, la pollution au sein des trois zones étudiées dans la SA est très semblable. L'ensemble de la section amplificatrice est donc pollué uniformément.

Du point de vue qualitatif, la pollution particulaire des quatre zones étudiées présente une homogénéité en nature comparable à celle obtenue du point de vue quantitatif. Celle-ci est résumée dans le tableau III-3 ci-dessous.

Type de pollution	Répartition	Dimension	Éléments principaux
Organique	30 %	>10 μm	Carbone
Métallique	30 %	Aléatoire	Fer et Aluminium
Minéral	40 %	<20 μm	Silicium

Tableau III-3 : Bilan des résultats d'analyse de composition chimique des particules collectées dans la LIL.

Les principaux éléments détectés peuvent provenir des structures métalliques dans le cas des métaux, et des composants optiques dans le cas des minéraux. Le carbone qui est également détecté dans chaque zone a une origine plus complexe à déterminer. Il est important de noter qu'aucune pollution « humaine » significative n'est observée. Nous remarquons enfin que l'environnement du réseau 1 ω a subi une pollution localisée à base de cuivre. La pollution précédemment caractérisée peut être induite par l'activité ou le fonctionnement de la chaîne pendant la période de prélèvement. Cette pollution peut donc varier au cours du temps. Pour vérifier cela, une autre campagne de prélèvement a été réalisée.

2.3. Comparaison entre deux périodes de prélèvement

Les résultats précédents ont été obtenus après une période de prélèvement de 48 jours, pendant les mois de novembre et décembre 2005. Cette période, pendant laquelle de nombreux tirs et quelques interventions ont été réalisés, est appelée période de tirs.

Pendant une période, dite de maintenance, de 84 jours (d'août à octobre 2005), nous avons introduit des substrats identiques à ceux utilisés pendant la période de tirs dans la SA, et placés dans les mêmes zones. Pendant cette période, trois interventions de maintenance dans l'injection et cinq dans le fond de cavité ont été comptabilisées. 23 tirs ont été réalisés. Ces tirs de faible puissance n'étaient pas suivis d'une intense ventilation d'azote. Le nombre moyen de particules de dimension supérieure à 0,3 μm , émises pendant un tir laser est mesuré au moyen d'un compteur de particules localisé sous l'amplificateur de transport. Il est d'environ 117000 part/cm³, pendant la période de maintenance, alors qu'il était de 313000 part/cm³, pendant la période de tirs. Aucune n'est supérieure à 5 μm .

Dans cette partie, nous comparons les résultats obtenus pendant les deux campagnes.

Les zones de la SA étudiées sont l'injection basse et le fond de cavité (zone 1 et 2). L'injection est sous air, sans ventilation et située en amont des amplificateurs. Les nombres d'intervention dans cette zone étant similaires, aucune différence ne devrait donc être observée entre les deux périodes de prélèvement. Les taux de particules de dimension supérieure ou égale à 3 μm , collectées dans l'injection (zone 1), pendant les deux périodes distinctes de tirs et de maintenance sont respectivement de 0,35 et 0,26 \pm 0,07 part./cm²/jour. Elles sont effectivement du même ordre de grandeur.

Les particules sont réparties en quatre classes de taille. Cette répartition pendant les deux périodes d'exposition est représentée sur la figure III-12.

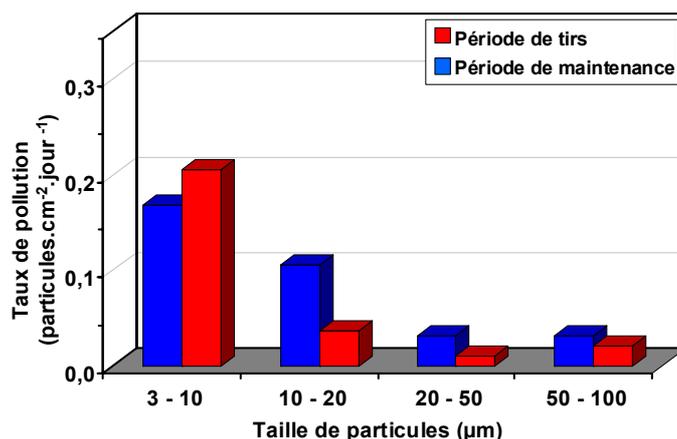


Figure III-12 : Répartition en taille des particules collectées dans l'injection (zone 1).

Pour les deux périodes de prélèvement, le nombre de particules varie selon les différentes classes de taille. De manière générale, plus la taille des particules est petite, plus leur nombre est élevé. Pendant la période de maintenance, un nombre plus important de particules de taille supérieure à 10 μm pourrait provenir d'une pollution supplémentaire. D'après les résultats obtenus précédemment, nous savons que les particules d'origine minérale sont inférieures à 20 μm , les organiques supérieures à 10 μm et les métalliques aléatoires. Cette pollution supplémentaire étant supérieure à 10 μm , nous pouvons supposer qu'il s'agit de particules organiques ou métalliques. Pour déterminer la nature de cette pollution, nous analysons la composition chimique de chaque particule. La répartition par nature des particules est représentée sur la figure III-13. Les trois classes principales (organique, métallique et minérale) sont subdivisées.

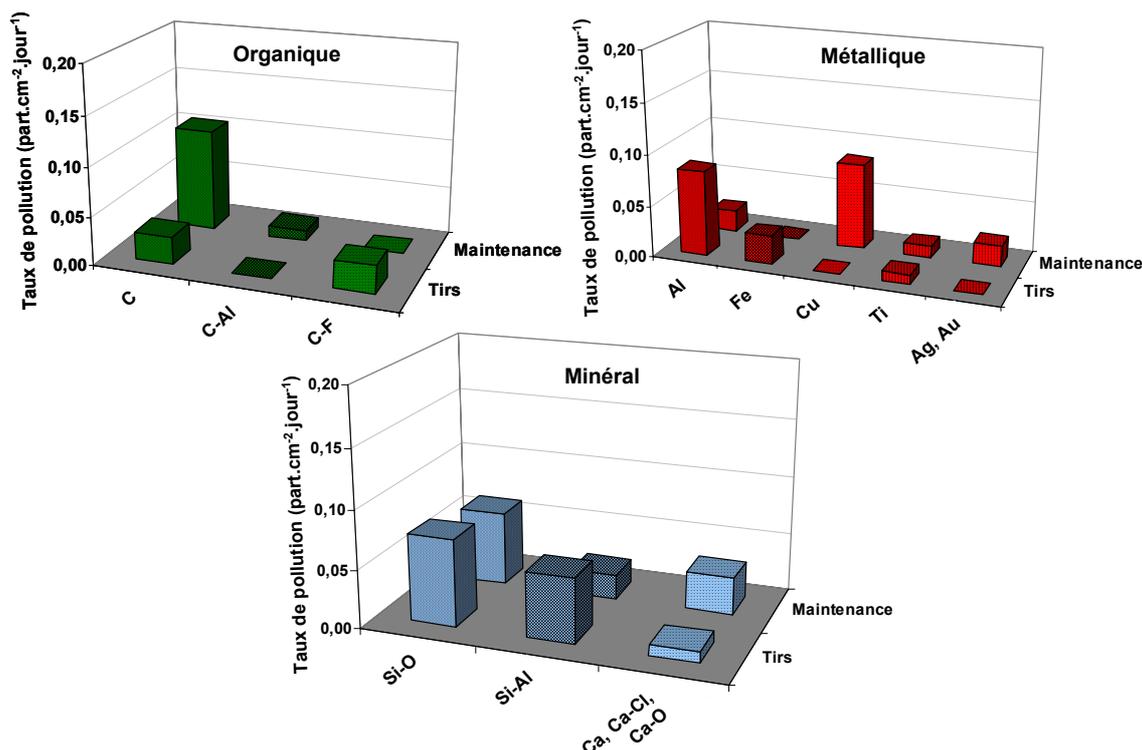


Figure III-13 : Répartition des particules collectées dans l'injection pendant deux périodes selon leur composition chimique.

La comparaison de la composition chimique élémentaire des particules révèle une pollution organique principalement constituée de carbone, pendant la période de maintenance, plus élevée que pendant la période de tirs. La pollution métallique semble présente dans les mêmes proportions pendant les deux périodes. Cependant la nature diffère : l'aluminium et le fer ne sont détectés que pendant la période de tirs lorsque les lampes flash sont activées. L'hypothèse selon laquelle l'aluminium et le fer seraient émis par vaporisation de la structure sous les lampes flashes se confirme. Le cuivre détecté pendant la période de maintenance pourrait provenir de la connexion et la déconnexion de câbles. Les particules d'origine minérale, collectées pendant les deux périodes, sont de même nature et dans les mêmes proportions. D'après ces résultats, la pollution supplémentaire de taille supérieure à 10 μm , récoltée pendant la période de maintenance, correspond au carbone. Par contre, nous pouvons constater que la nature de la pollution métallique varie au cours du temps, selon l'activité de la chaîne laser. Toutefois, le taux de pollution reste relativement constant.

Cette variation en nature des particules peut s'étendre dans toute la chaîne laser mais ne semble pas affecter la pollution d'origine organique ou minérale. Nous proposons d'étendre cette comparaison à une autre zone de la LIL. Elle a été effectuée au niveau du fond de cavité, la zone 2. Les taux de pollution sont plus élevés : 0,71 et $0,39 \pm 0,07$ part./cm²/jour collectées pendant les mêmes période de tirs et de maintenance. La différence devient significative. Comme la figure III-12 au niveau de l'injection, la figure III-14 compare les taux de pollution obtenus en fonction des tailles de particules prélevées dans le fond de cavité.

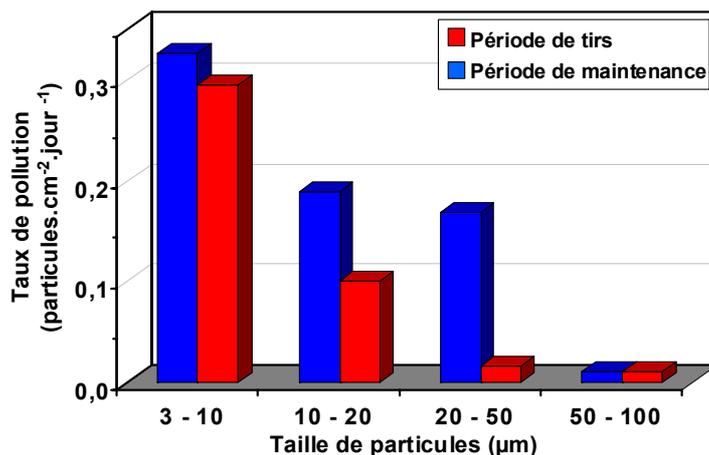


Figure III-14 : Répartition en taille des particules collectées dans le fond de cavité (zone 2).

Pendant la période de maintenance, les particules de dimension supérieure à 10 µm représentent plus de 50 % du taux de pollution obtenu. Une pollution supplémentaire de dimension comprise entre 10 et 50 µm apparaît très nettement. Cette pollution correspondrait à des particules d'origine minérale, métallique et organique. Pour préciser cette hypothèse, nous analysons plus en détail la composition chimique des particules collectées. La figure III-15 représente le taux de particules récoltées par jour ($\geq 3 \mu\text{m}$), dans le fond de cavité, en fonction de leur composition chimique élémentaire, pendant les deux périodes.

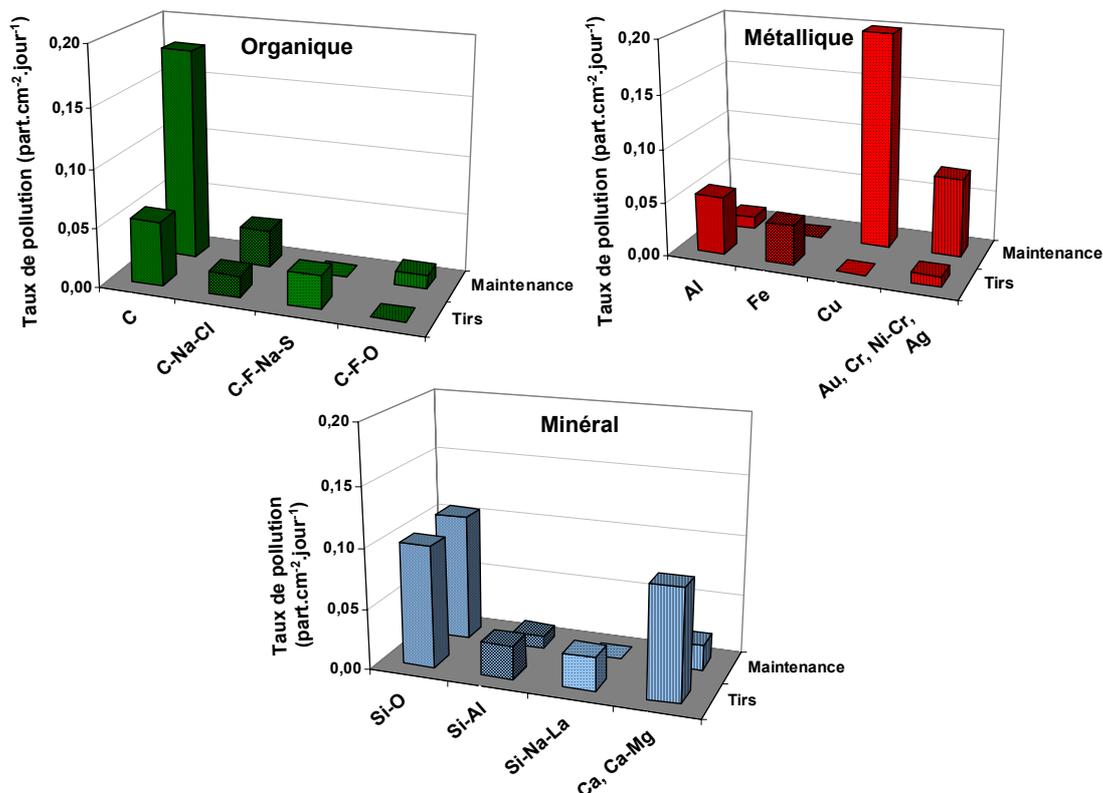


Figure III-15 : Répartition des particules collectées dans le fond de cavité pendant deux périodes, en fonction de leur composition chimique élémentaire.

Pendant la période de maintenance, dans le fond de cavité, la pollution organique est essentiellement composée de carbone. La pollution métallique, pendant la maintenance, confirme également la tendance observée dans l'injection ; le cuivre représente la majorité des

particules métalliques. Il est complètement absent parmi les particules collectées pendant les tirs. De plus les divers métaux collectés tels que l'argent, le chrome, le nickel peuvent provenir de tout outil en inox ou de certaines connexions en argent. Parmi les particules minérales, la différence majeure observée pendant la maintenance, est une quantité moins importante de calcium et/ou magnésium. Ces particules seraient émises pendant la période de tirs. La pollution supplémentaire observée pendant la période de maintenance est donc constituée de carbone et de cuivre essentiellement. Par contre, nous pouvons attribuer la proportion plus élevée de particules comprises entre 3 et 5 μm , collectées pendant la période de tirs, à des particules de Ca, et/ou Mg.

Il semble donc que la pollution collectée varie d'une période à l'autre de la même façon dans les deux environnements de la SA. Les résultats obtenus sur l'ensemble des zones de prélèvement, dans la SA, pendant les deux périodes, sont moyennés pour mettre en évidence les évolutions des principaux polluants sur la figure III-16.

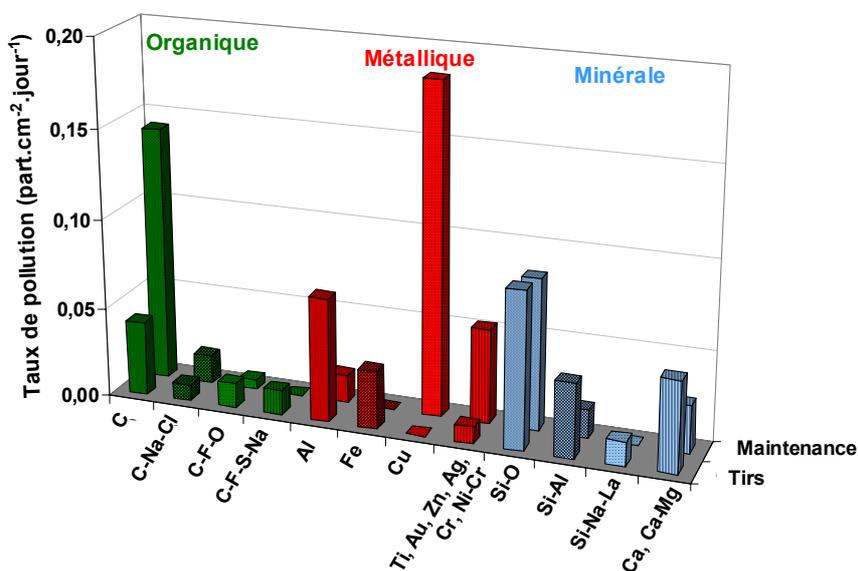


Figure III-16 : Répartition des particules collectées dans la SA en fonction de leur nature pendant la période de tirs et celle de maintenance.

La période de maintenance correspond à de fortes proportions de C, Cu, et divers autres métaux. La période de tirs est caractérisée par de forte proportion d'Al, de Fe principalement. Nous observons de faibles variations du nombre des particules d'origine minérale. La période de maintenance s'est déroulée avant la période de tirs. Par conséquent, la plupart de la pollution récoltée pendant la période de maintenance a été évacuée avant la mise en place des échantillons de la période de tir, à l'exception des particules contenant principalement du silicium et de l'oxygène. Cette répartition montre également que les particules récoltées pendant les tirs n'étaient pas présentes pendant la maintenance (exemple : le fer).

Aussi bien dans l'injection que dans le fond de cavité, la nature chimique de la pollution est très différente entre une période de tirs et une période de maintenance. Le tableau III-4 résume les proportions des principaux éléments récoltés pendant chaque période.

Type de pollution	Principaux éléments	Répartition pendant la période de:	
		Tirs	Maintenance
Organique	Carbone	11 %	26 %
Métallique	Fer + Aluminium	26 %	3 %
	Cuivre	0 %	34 %
Minéral	Silicium	37 %	18 %

Tableau III-4 : Bilan des résultats d'analyse de composition chimique des particules collectées dans l'injection et le fond de cavité pendant les deux campagnes de prélèvement.

D'après cette comparaison, la pollution particulaire émise dans la SA dépend plus de la période de prélèvements que de la localisation des échantillons.

2.4. Conclusion

Pour caractériser la pollution présente dans la LIL, nous avons utilisé des pastilles carbonées. Celles-ci ont été placées pendant 48 jours dans différentes zones où la longueur d'onde du laser est de 1053 nm. Chacune des particules recueillies a été analysée. Nous avons limité cette étude aux particules dont la taille est comprise entre 3 et 100 μm . L'existence d'une pollution ambiante dans la LIL a été démontrée. Grâce à la démarche expérimentale employée, cette pollution a été quantifiée et caractérisée chimiquement.

Cette pollution est du même ordre de grandeur dans les quatre zones de prélèvement. Ce taux de pollution est évalué à 0,3 $\text{part.cm}^{-2}\cdot\text{jour}^{-1}$. Une répartition en taille équivalente est obtenue dans les trois zones de la SA, et une quantité de particules plus élevée de particules comprise entre 10 et 20 μm a été comptabilisée devant les réseaux 1ω .

Du point de vue qualitatif, trois catégories de particules ont été détectées ; les organiques largement à base de carbone, les métalliques composés d'aluminium, de fer ou de cuivre, et les minérales principalement constituées de silicium. Les minérales sont de taille généralement plus petites que les organiques, tandis que les métalliques sont de dimension aléatoire.

Nous avons observé que la nature de cette pollution varie dans le temps selon l'activité de la chaîne laser (période de tirs ou de maintenance).

3. Irradiation des particules déposées par sédimentation

Pour étudier l'effet de l'irradiation laser sur les polluants de la LIL, des substrats de silice représentatifs des composants optiques ont été utilisés. Tous sont issus du même lot de fabrication, et certains d'entre eux sont traités antireflet. Les substrats de silice ont été pollués dans les mêmes conditions que les pastilles carbonées. Positionnés horizontalement dans la LIL, ils sont supposés collecter une pollution particulaire similaire à celle caractérisée sur les pastilles carbonées. Chaque substrat est observé au microscope optique. Toutes les particules de dimension supérieure ou égale à 3 μm sont photographiées et comptabilisées. Dans un premier temps, nous comparons ces résultats à ceux obtenus sur les pastilles carbonées. Ensuite les substrats de silice sont irradiés et observés à nouveau. La comparaison des images obtenues avant et après irradiation permet de mettre en évidence l'évolution des particules sur un substrat de silice traité antireflet ou non traité sous flux laser à 1064 nm.

3.1. *Particules collectées sur les substrats de silice*

Dans un premier temps, nous comparons les taux de pollution obtenus sur ces substrats de silice avec ceux obtenus sur les pastilles carbonées. Les substrats de silice sont positionnés sur la platine du microscope de la même manière que lors de la caractérisation de leur état initial. Les particules repérées lors de l'état initial doivent se situer précisément au même endroit que défini avant exposition des substrats. Ceci permet de différencier les particules issues de la LIL et les défauts de surface qui présentent parfois de même aspect. Chaque particule est photographiée et comptabilisée.

Sur les substrats de silice traités anti-reflet positionnés dans la SA, aucune particule n'a été comptabilisée. Sur les substrats de silice non traités, les concentrations surfaciques de particules obtenues sont très variables d'un substrat à un autre placé l'un à côté de l'autre dans la même zone. Ces variations peuvent être attribuées au procédé d'insertion et de retrait des substrats. Ils sont placés dans le dispositif de prélèvement (cf. II.1) et insérés manuellement par pression sur la poignée de préhension. La pression exercée pour retirer les substrats en place dans la LIL peut provoquer une accélération. Cette accélération générerait un déplacement de particules sur les substrats de silice et, par conséquent, de l'inhomogénéité de concentrations surfaciques relevée sur chacun des substrats, placés dans la même zone. Cependant le grand nombre d'échantillons utilisés, nous a permis de sélectionner ceux dont la concentration surfacique de particules était comparable à celle obtenue sur les pastilles carbonées.

Cette comparaison est effectuée également sur les substrats placés directement devant les réseaux 1ω , zone 4. Les taux de pollution mesurés sur les substrats de silice traités antireflet ou non traités sont en moyenne de $0,36 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$. Cette valeur est inférieure de 30 % à celle obtenue sur les pastilles carbonées. Cette différence s'explique par le mouvement du SIMA (cf. III.1.2). Ce dernier est un ensemble mécanique mobile d'une vitesse de déplacement de l'ordre de $0,2 \text{ m.s}^{-1}$. Bien que sa vitesse soit faible, l'accélération lors de la mise en mouvement permet d'évacuer certaines particules des échantillons de silice de surface moins adhérente que les pastilles carbonées. Plus de la moitié des particules étant présentes sur les substrats de silice, nous supposons la pollution restante comme représentative de l'environnement de la LIL au niveau des réseaux 1ω .

Pour tester l'évolution des particules sous un flux laser, il est impossible d'irradier les pastilles carbonées. Les substrats de silice qui sont représentatifs des composants optiques permettent d'évaluer le comportement sous le rayonnement laser de l'ensemble pollution/composant optique.

3.2. *Irradiation des particules*

Les substrats de silice sont positionnés verticalement sur le banc de tenue au flux BLANCO. La face polluée correspond à la « face arrière » du substrat par rapport au faisceau laser. Chaque substrat traité antireflet ou non traité, pollué dans la LIL est irradié en mode « Raster scan » à la longueur d'onde λ de 1064 nm, une durée d'impulsion τ de 6,5 ns et un diamètre de faisceau de 0,6 mm à $1/e$. La fluence maximale est fixée à 22 J/cm^2 . Chaque particule observée avant irradiation est à nouveau observée. Pour cela, un positionnement du substrat très précis sur la platine du microscope optique doit être réalisé pour identifier

chacune des particules repérées avant irradiation et déterminer son comportement après irradiation. Quelle que soit la fluence d'irradiation, trois situations, représentées sur la figure III-17, ont été observées sur les substrats de silice traités antireflet ou non traités.

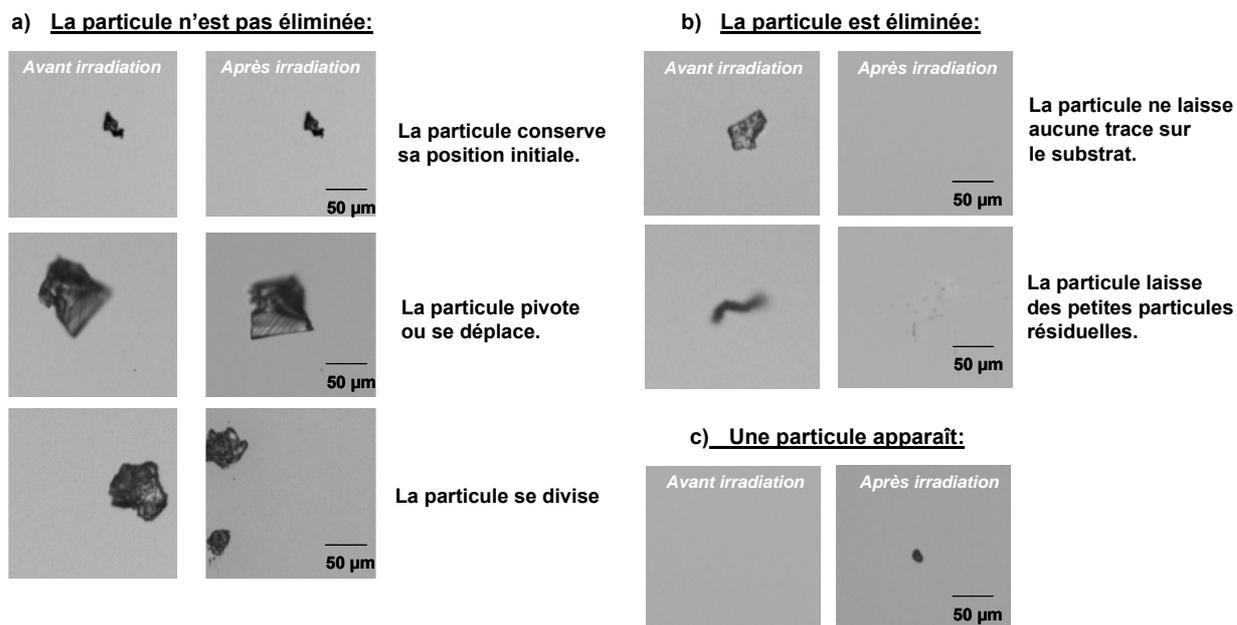


Figure III-17 : Particules déposées sur un substrat de silice observées avant et après irradiation.

Trois types de comportement sont mis en évidence après irradiation : des particules restent sur le substrat, certaines sont éliminées et d'autres apparaissent dans la zone observée. Les particules qui restent inchangées après irradiation (a) représentent environ 30 % des particules soumises au flux laser à 22 J/cm². Moins de 10 % d'entre elles pivotent ou se déplacent de quelques micromètres. Dans ce dernier cas, parfois, certaines se divisent. Celles qui sont éjectées du substrat (b) représentent plus de 70 % du nombre de particules présentes avant irradiation. Moins de 5 % d'entre elles laissent des nombreux résidus de petites particules. Enfin, les particules qui se redéposent après le tir laser (c) sont toujours de petite taille ($\leq 5 \mu\text{m}$) et peu nombreuses. A ce stade de notre étude, aucune différenciation n'est possible entre l'évolution sous flux laser des différentes natures de particules. Cet aspect d'élimination de particules est développé dans le chapitre V.

Parfois, l'élimination de la particule par irradiation à 1064 nm peut marquer le revêtement antireflet de façon irréversible⁶⁹. C'est ce qu'on appelle un endommagement laser. La figure III-18a montre les images d'une particule d'environ 5 μm observée au microscope optique avant et après irradiation à 22 J/cm². Lors de l'irradiation, la face polluée correspond à la face avant. La figure III-18b représente une cartographie AFM mesurée au niveau de la marque laissée par la particule et une coupe réalisée au centre de l'image.

⁶⁹ S. Palmier, S. Garcia, L. Lamagnère, P. Manac'h, J.L. Rullier, I. Tovina. La pollution surfacique de la LIL et son évolution sur un composant optique soumis à une irradiation laser: 1^{ère}, 2^{ème} et 3^{ème} série d'expériences, rapport CEA-R-6103 (2006), rapports CEA-R-6123 (2006), à paraître (2007).

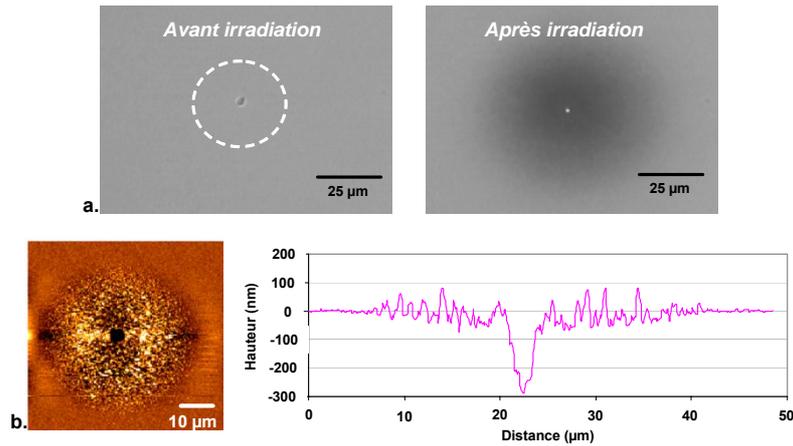


Figure III-18 : Particule déposée sur un substrat de silice traité antireflet observé avant et après irradiation en microscopie optique (a.) et AFM (b.).

Une tache noire diffuse répartie autour de la particule est apparue après irradiation. Cette modification de surface altère les propriétés du revêtement antireflet sur une zone d'environ 50 μm de diamètre alors que la particule n'était que de quelques micromètres. Le profil montre un trou dans le revêtement de silice colloïdale d'environ 300 nm de profondeur au niveau de la particule. Cette profondeur correspond à l'épaisseur du revêtement. De part et d'autre de ce trou, la surface est devenue plus rugueuse sur toute la zone correspondant à la tache noire.

Une particule positionnée en «face arrière» et irradiée dans les mêmes conditions, $\lambda=1064$ nm, et $\tau=6,5$ ns, et à une fluence de 15 J/cm² a été éliminée en laissant un autre type d'endommagement dans le revêtement antireflet. Il est observé avant et après irradiation par microscopie optique sur la figure III-19a. Une cartographie mesurée au niveau de la marque laissée par la particule et un profil réalisé au centre de l'image sont représentés sur la figure III-19b.

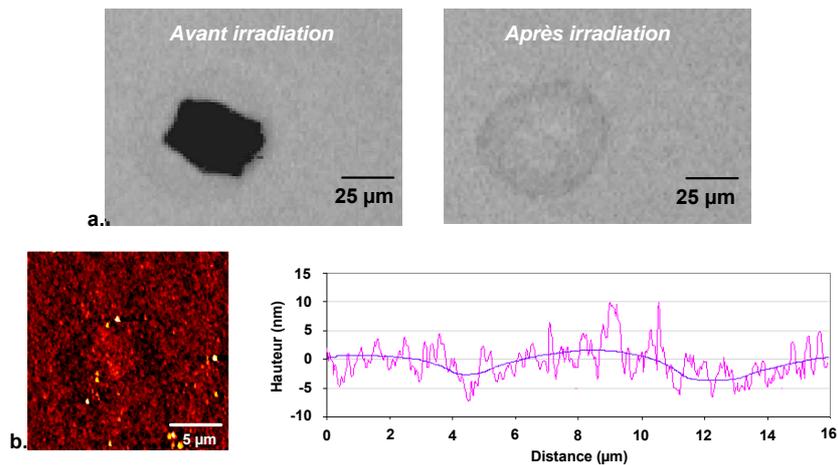


Figure III-19 : Observations de particules, déposées par sédimentation, avant et après irradiation en microscopie optique (a.) et AFM (b.).

L'aurole observable sur les clichés de la particule irradiée peut provenir d'un effet de diffusion révélé après éjection de la particule ou d'un simple enfoncement du revêtement provoqué par l'interaction du rayonnement laser avec la particule sur la silice. D'après la mesure en AFM, cette aurole correspond à un léger enfoncement du revêtement de 5 nm de

profondeur, au niveau des contours de la particule. Plusieurs irradiations à la même fluence de 15 J/cm² n'engendrent aucune évolution de l'auréole.

Dans nos expériences, toutes les différentes marques observées sur un substrat de silice traité antireflet, sont obtenues après une irradiation laser supérieure ou égale à 15 J/cm², et une durée de 6,5 ns. Bien que cette fluence soit relativement élevée, aucune évolution n'a été observée. Il ne s'agit donc en aucun cas d'un endommagement critique. Un exemple d'endommagements critiques initiés par irradiation laser de particules a été observé par Norton et al.⁷⁰. Sur des miroirs en verre borosilicate recouverts d'un traitement diélectrique réfléchissant d'hafnium et de silice qui ont été irradiés à une longueur d'onde 1053 nm, et une durée d'impulsion de 12 ns, des traces de brûlures, et des piqûres très étendues sont apparues. Ces endommagements sont initiés à faible fluence (environ 5 J/cm²), et ils s'étendent avec la répétition des tirs laser.

L'irradiation de substrats de silice, traités antireflet ou non traités met en évidence différents comportements des particules. Elles sont souvent éliminées de la surface du substrat, certaines restent intactes, et quelques unes apparaissent sur la surface d'observation.

A une fluence ≥ 15 J/cm², l'éjection des particules du revêtement antireflet peut modifier localement la surface du substrat. Cette modification de surface n'évoluant pas sous plusieurs irradiations, elle n'est pas assimilable à un endommagement critique.

3.3. Comparaison avec des particules présentes dans le revêtement antireflet

La procédure d'irradiation permet d'irradier toute la surface du substrat et donc la totalité des défauts présents y compris ceux ne provenant pas de la LIL. L'évolution d'un type de défaut, connu comme intrinsèque au revêtement antireflet déposé par procédé sol gel, a été observée. La figure III-20 représente les observations réalisées avant et après irradiation.

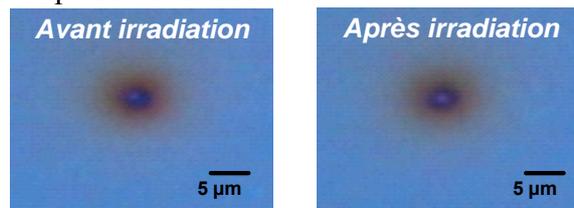


Figure III-20 : Défauts du revêtement antireflet observés avant et après irradiation.

Un défaut intrinsèque au revêtement antireflet est caractérisé par une auréole diffuse tout autour du défaut. Ce défaut peut provenir d'agglomérat de colloïdes solides ou de la présence d'une particule polluante. Le traitement antireflet étant effectué par trempage retrait du substrat de silice dans une solution filtrée de silice colloïdale, des agglomérats de colloïdes solides peuvent rester en surface lors du retrait du substrat. Ils forment ainsi une particule. Une zone diffuse et irisée est provoquée par un phénomène de capillarité de la fine couche de silice colloïdale qui adhère aux contours de cette particule de façon à légèrement augmenter l'épaisseur du dépôt. Il est également parfois possible qu'une particule polluante se dépose

⁷⁰ M.A. Norton, C.J. Stolz, E.E. Donohue, W.G. Hollingsworth, K. Listiyo, J.A. Pryatel, R. Hackel. Impact of contaminants on the laser damage threshold of 1w HR coatings, Proc. of SPIE **5991**, 59910O (2005).

dans la solution de silice colloïdale ou sur le substrat avant trempage. Cette particule intégrée au revêtement antireflet se distingue d'une pollution externe au traitement par cette irisation observée sur la figure III-20. La figure III-20 met en évidence l'absence d'évolution après l'irradiation à 22 J/cm² de ce type de particule placée en « face avant ». Par contre, certains défauts également attribués au traitement antireflet peuvent évoluer sous irradiation. La figure III-21 est composée d'observations effectuées au microscope optique avant et après irradiation, d'une cartographie AFM et d'une coupe.

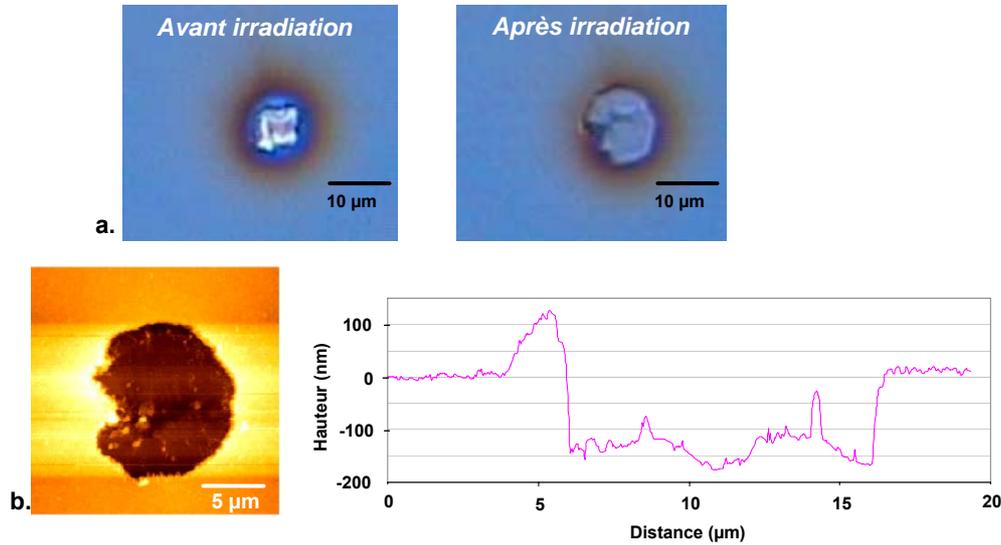


Figure III-21 : Défauts du revêtement antireflet observés avant et après irradiation en microscopie optique (a.) et AFM (b.).

La particule au centre du défaut a été éjectée du substrat laissant l'auréole intacte. Les résultats obtenus en AFM montrent que le défaut a laissé un creux dans le substrat d'environ 150 nm de profondeur et de 10 μm de large (correspondant à la largeur de la particule). Cette particule intégrée dans le revêtement a simplement été éjectée sous irradiation laser laissant un trou dans la silice colloïdale aux dimensions du défaut. Comme précédemment, ce marquage du substrat n'évolue pas sous plusieurs irradiations.

L'irradiation de polluants intrinsèques au substrat de silice traité antireflet affecte peu ou pas la surface. Ces modifications n'évoluent pas sous plusieurs irradiations, elles ne sont donc pas assimilables à des endommagements critiques.

3.4. Conclusion

Nous avons utilisé des substrats de silice représentatifs des composants optiques pour évaluer le comportement sous le rayonnement laser de l'ensemble pollution/composant optique.

Nous avons montré qu'une grande partie de la pollution particulaire est éliminée d'une surface de silice traitée antireflet ou non traitée, par le passage d'un faisceau laser d'une longueur d'onde de 1064 nm, et d'une durée d'impulsion de 6,5 ns. Les particules intrinsèques au revêtement antireflet ont souvent un comportement similaire.

A une fluence supérieure ou égale à 15 J/cm², cette élimination peut modifier de façon irréversible la surface. Cette modification de surface ne s'étend pas sous une succession de tirs lasers.

Cette étude démontre que les particules récoltées dans l'environnement de la LIL ne génèrent pas d'endommagement laser critique d'une surface de silice, de type LMJ, sous flux laser à 1064 nm.

4. Irradiation des particules «modèles»

Dans de nombreux cas, l'irradiation laser provoque l'élimination des particules. Mais parfois l'élimination s'accompagne d'une modification irréversible de surface non évolutive du composant optique. Dans le cadre de la LIL et du LMJ, nous avons cherché dans quelles conditions ces phénomènes apparaissent. Pour cela, nous avons choisi une particule métallique pour laquelle nous avons étudié l'influence de différents paramètres caractéristiques. Des particules «modèles» d'aluminium, créées par photolithographie, ont été déposées sur un substrat de silice par évaporation. Les échantillons sont placés tels que les particules soient sur la « face arrière » par rapport au faisceau laser et irradiées. Le laser a une longueur d'onde de 1064 nm, et une durée d'impulsion de 6,5 ns. L'influence de différents paramètres relatifs aux particules ou au faisceau laser est testée. L'analyse par microscopie optique, photothermique, à force atomique, profilométrie ou ellipsométrie des effets observés permet d'appréhender les mécanismes mis en jeu dans l'interaction rayonnement laser/particule/substrat^{71, 72}.

4.1. Différentes natures de particules

D'après les expériences décrites dans la partie III-3, la nature des particules qui, après irradiation laser, demeurent en surface ou sont éjectées est inconnue. Pour étudier le comportement de différents types des particules sous flux laser, nous avons utilisé des particules «modèles» dont la nature est représentative de celles collectées dans la LIL : aluminium, silice et carbone. Elles sont préparées sur trois substrats similaires en silice super polie. Ces échantillons ont été irradiés dans les mêmes conditions représentées sur le schéma de la figure III-22.

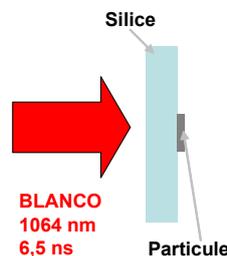


Figure III-22 : Schéma d'irradiation.

La face polluée est positionnée, sur le banc de test BLANCO, en « face arrière » par rapport au faisceau laser incident. Les particules sont irradiées à 1064 nm, avec une durée d'impulsion de 6,5 ns. Chaque particule est soumise à une impulsion laser de fluence

⁷¹ S. Palmier, I. Tovenà, L. Lamaignère, JL. Rullier, J. Capoulade, JY. Natoli, L. Servant. Study of laser interaction with aluminum contaminant on fused silica, Proc. of SPIE **5991**, 5991OR (2005).

⁷² J. Capoulade, JY. Natoli, S. Palmier, JL. Rullier, I. Tovenà. Influence of artificial metallic defects size on the surface cleaning process, Proc. of SPIE à paraître (2007).

déterminée. Une observation au microscope optique de chaque type de particule est réalisée avant et après une irradiation à 1 J/cm² et 40 J/cm². Les clichés sont représentés sur la figure III-23.

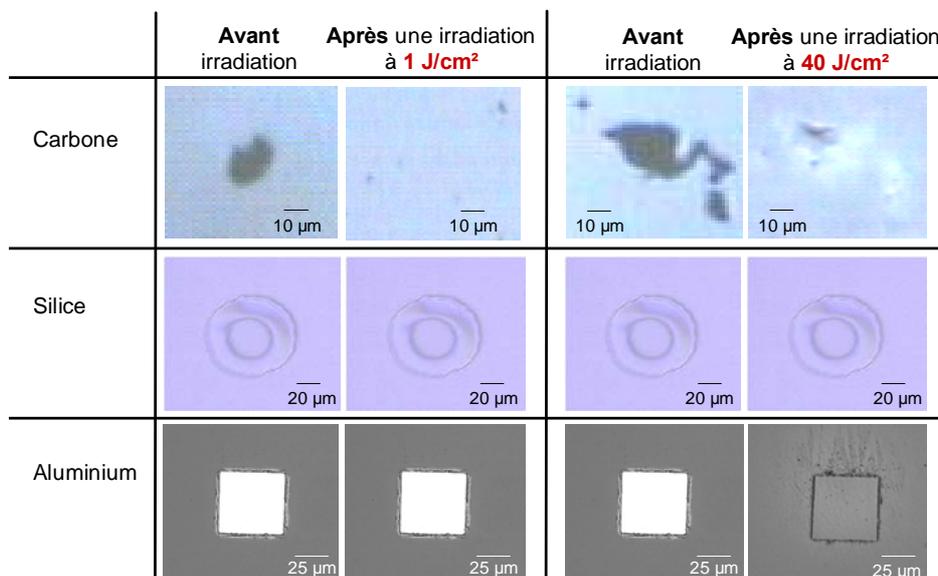


Figure III-23 : Particules de carbone, de silice et d'aluminium à l'état initial et irradiées en face arrière à 1064 nm observées au microscope optique.

La particule de carbone est éliminée après un tir à 1 J/cm². Elle laisse un substrat intact sur lequel sont apparues de plus petites particules. Par contre, une particule irradiée à 40 J/cm² est éliminée en laissant une trace dans le substrat qui se caractérise par une zone claire et diffuse sur la silice correspondant aux dimensions de la particule.

La particule de silice possède une forme particulière avant irradiation. D'après les observations au microscope, elle est inchangée suite à une irradiation à 1 J/cm². Même après une irradiation à 40 J/cm², elle est identique à son état initial. Cette particularité a été mise en évidence par des simulations numériques pour des particules de silice déposées sur un substrat de silice et dont l'adhésion est assurée par les forces de Van Der Waals⁷³.

Sous un flux laser à 1 J/cm², la particule d'aluminium est inchangée. Mais l'aluminium évolue à 40 J/cm² ; il semble être complètement éliminé. Une marque correspondant aux dimensions de la particule est observable sur la surface de la silice. Autour de l'emplacement initial de la particule, le substrat semble modifié, plus rugueux. Ce résultat déjà observé précédemment⁷⁴ est assimilable à un début d'endommagement laser critique.

L'objectif de notre étude est d'identifier les paramètres qui conduisent, d'une part, à l'élimination d'un polluant et, d'autre part, à la modification du substrat. Pour une gamme de fluence correspondant au fonctionnement de la LIL (≤ 15 J/cm², 3 ns), la particule de carbone ou de silice est éliminée sans marquer le substrat ou laissée intacte contrairement à une particule d'aluminium.

⁷³ S. Pleasants, N. Arnold, D.M. Kane. Acoustic substrate expansion in modelling dry laser cleaning of low absorbing substrates, Appl. Phys. A **79**, 507 (2004).

⁷⁴ F.Y. Génin, K. Mitchlitsch, J. Furr, MR. Kozwolski, P. Krulevitch. Laser induced damage of fused silica at 355 and 1064 nm initiated at aluminum contamination particles on the surface, Proc. of the SPIE **2966**, 126 (1997).

4.2. Effet de la fluence du laser

L'effet de la fluence est testé sur plusieurs particules d'aluminium identiques, déposées sur un substrat de silice. Elles ont une forme carrée dont les dimensions sont $50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$. La face polluée du substrat est positionnée en « face arrière » par rapport au faisceau laser incident, tel que représenté sur la figure III-22, sur le banc de tenue au flux BLANCO. Chaque particule est soumise à une impulsion laser à 1064 nm, avec une durée d'impulsion de 6,5 ns, à une fluence déterminée. Ainsi, le comportement de chaque particule, caractéristique d'une fluence donnée, est analysé. La figure III-24 montre une comparaison de l'état de différentes particules d'aluminium irradiées à différentes fluences. Elle est composée de clichés des particules irradiées, obtenus dans les mêmes conditions d'éclairage en lumière blanche par microscopie optique. Sur chaque cliché, un trait en tiret indique où les profils, obtenus par profilométrie optique, ont été mesurés. Sur les profils, le trait épais noir et les lignes verticales en pointillés bleus représentent la dimension latérale de la particule avant irradiation : $50\ \mu\text{m}$. Notons que l'axe des distances est en micromètre alors que les hauteurs/profondeurs sont en nanomètres. Toutes les valeurs de hauteurs/profondeurs sont mesurées par rapport à la surface de la silice non irradiée.

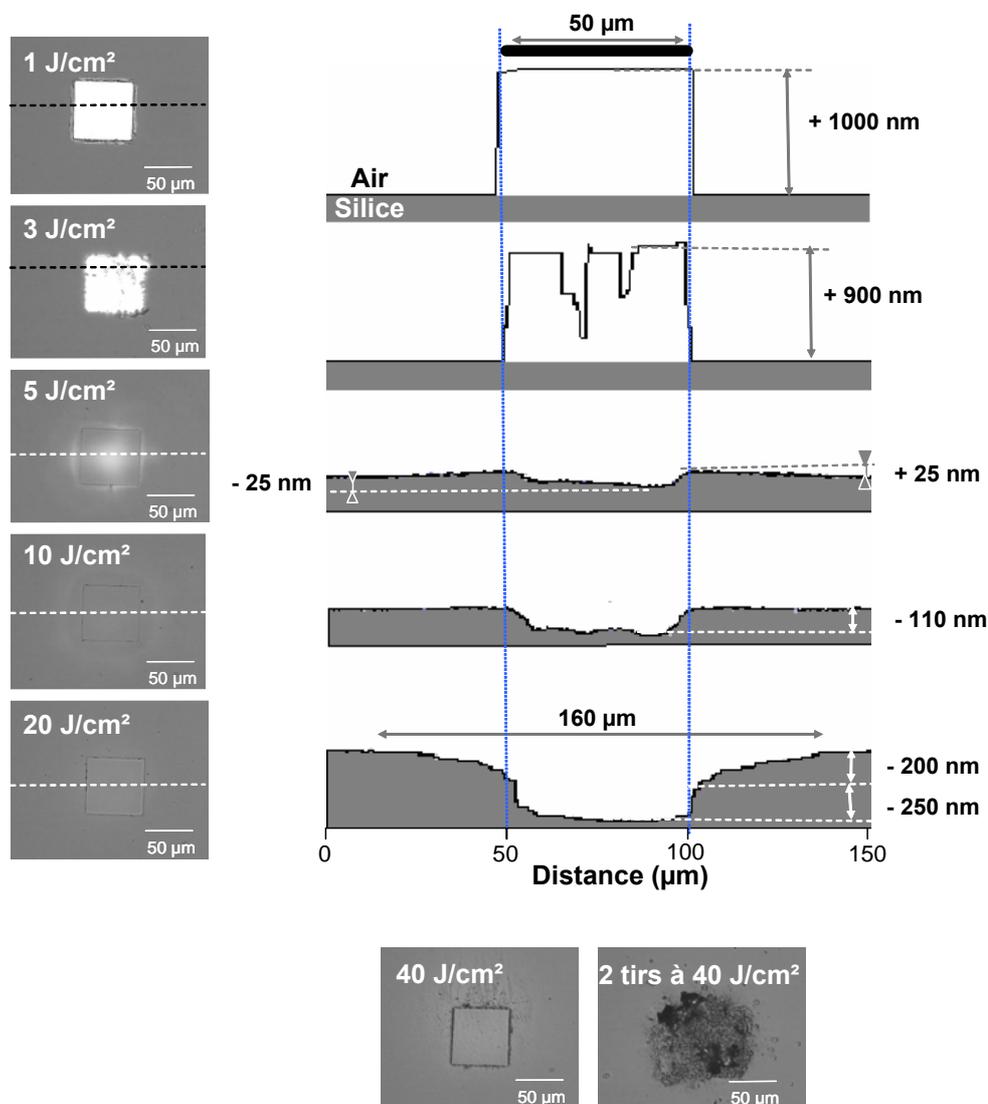


Figure III-24 : Particule d'aluminium irradiée à différentes fluences, observée au microscope optique et au profilomètre.

L'aspect et les dimensions de la particule irradiée à 1 J/cm² sont identiques à ceux d'une particule non irradiée. A 3 J/cm², l'état de surface de la particule est plus diffusant. Des inhomogénéités de surface apparaissent. Elles atteignent une profondeur de 0,7 µm. Leur forme est faussée par la différence d'unité entre la largeur et la hauteur. En réalité, elles sont beaucoup plus larges que profondes. A 5 J/cm², la particule semble avoir été éliminée laissant apparaître une zone claire sur le cliché. Ses contours sont marqués dans la silice. Ils correspondent à une marche ; le niveau de la silice est abaissé d'une vingtaine de nanomètres à l'emplacement initial de la particule alors qu'autour, le substrat présente un renflement. Ce renflement s'étend sur une distance de quelques micromètres et une hauteur d'une vingtaine de nanomètres. A 10 J/cm², la particule semble complètement éliminée laissant une excavation dans la silice d'une largeur identique à celle de la particule et de 110 nm de profondeur. Autour de la particule initiale, le substrat est lisse et homogène. A 20 J/cm², la particule est complètement éliminée et laisse une trace de ses contours dans la silice. A ce stade, d'après le cliché, le même phénomène que celui observé à 10 J/cm² semble se dérouler. Mais, un autre phénomène est révélé par le profil : une excavation de la silice en forme de cuvette autour de la position de la particule. Il s'étend sur une zone de 160 µm de diamètre et atteint jusqu'à 450 nm de profondeur sur les 50 µm de long correspondant à l'emplacement de la particule initiale. A 40 J/cm², la particule est également éliminée. Les contours sont marqués de façon plus importante qu'à 20 J/cm². La surface de silice autour de la particule semble griffée, piquée. Deux tirs consécutifs à 40 J/cm² sur une particule modifient complètement l'état de surface de la silice. Des éclats sont observables. C'est un endommagement laser critique.

D'après ces résultats, il apparaît une fluence seuil à partir de laquelle la particule est entièrement éliminée. Cette fluence se situe entre 3 et 5 J/cm². Nous pouvons émettre deux hypothèses sur l'origine de l'élimination de la particule. La première considère une éjection mécanique de la particule. La différence importante entre les propriétés de conduction thermique de la silice et de l'aluminium peut provoquer l'apparition de contraintes transverses sous flux laser. Lorsque ces contraintes sont suffisamment importantes, la particule est éjectée. La deuxième hypothèse considère un processus thermique. A faible fluence, l'aluminium reste solide. Pour une fluence plus importante, l'aluminium absorbe l'énergie laser, sa température augmente et il se liquéfie. A une fluence plus élevée, il se vaporise.

L'élimination de la particule s'accompagne d'une excavation de la silice, à l'emplacement de la particule initiale. Nous supposons que la silice a été densifiée et/ou ablatée.

A 40 J/cm², la présence de nombreux défauts et surtout l'endommagement laser critique observé après 2 tirs montre que nous avons atteint la fluence seuil d'endommagement laser. Or dans les mêmes conditions, nous avons mesuré, sur des substrats de silice identiques non pollués, un seuil d'endommagement de 60 J/cm². Nous confirmons l'abaissement de la résistance au flux laser dû à la présence de particules d'aluminium.

Pour lever l'ambiguïté sur le procédé d'élimination de la particule, des expériences complémentaires sont nécessaires. Pour cela, une particule d'aluminium a été irradiée avec un tir à 5 J/cm² centré non pas sur la particule mais à quelques micromètres de distance. Nous observons ainsi sur la figure III-25, l'état de surface de la particule et du substrat entre 3 et 5 J/cm². Cette figure est composée d'un cliché de la particule irradiée sur lequel sont reportées des courbes iso fluences, d'une cartographie de hauteur/profondeur de la particule irradiée et le profil associé mesuré au niveau des tirets blancs.

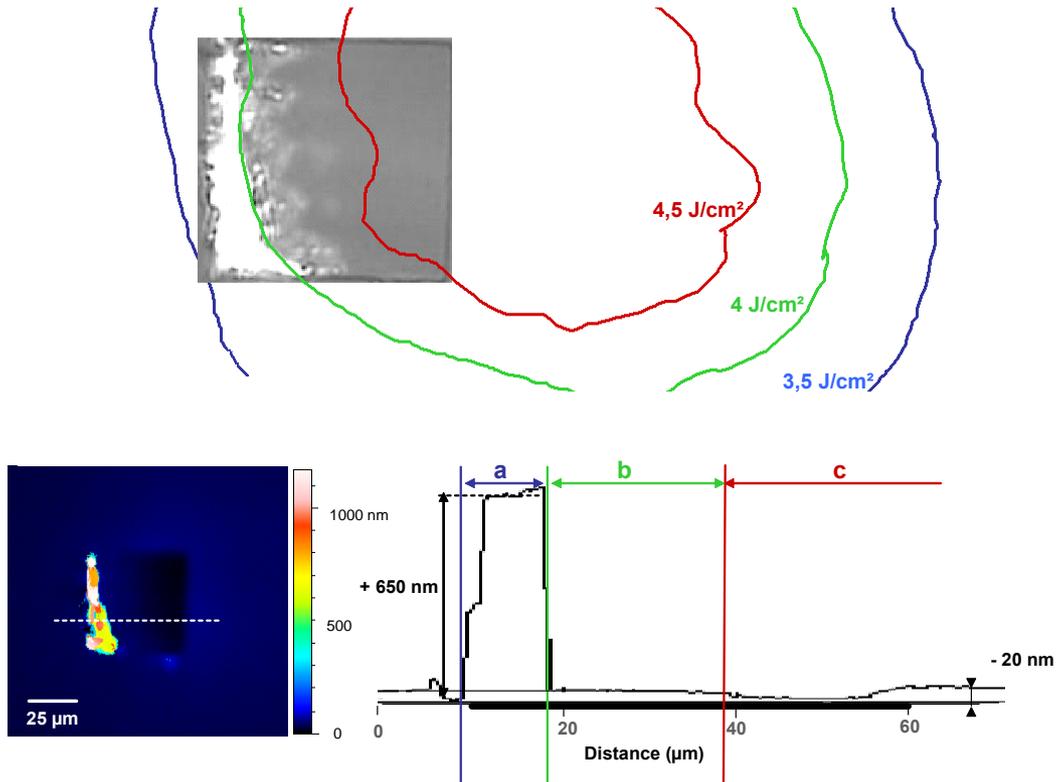


Figure III-25 : Courbes iso fluences superposées sur une observation au microscope optique de la particule irradiée et cartographie avec son profil associé mesuré au profilomètre.

De la particule initiale, seule une bande d'aluminium reste présente en surface de la silice. Il s'agit de la zone irradiée à la plus faible fluence, entre 3,5 et 4 J/cm². La majeure partie de la particule irradiée entre 4 et 5 J/cm² est éliminée. Entre les zones où l'aluminium est présent et où il est éliminé, une zone plus claire aux formes arrondies, comme une coulée, ainsi que quelques points brillants en forme de gouttes apparaissent. Elle correspond à la particule irradiée à une fluence légèrement supérieure à 4 J/cm².

La hauteur de la bande d'aluminium est irrégulière. Elle varie du vert au rouge soit de 500 nm à 1000 nm. Le profil associé met en évidence trois zones notées (a), (b) et (c) qui correspondent à trois zones de fluences. La zone (a) correspond à la bande d'aluminium irradiée entre 3,5 et 4 J/cm². Ses dimensions sont de l'ordre de 10 µm de large et 650 nm de haut. La zone (b) correspond à la zone claire sur le cliché aux aspects de coulée d'aluminium fondu. Le niveau de la silice correspond à celui de la silice non irradiée. Dans la zone (c), la silice est enfoncée sur 20 nm. Sur le bord externe de la particule irradiée, nous distinguons un léger bourrelet.

Plus la fluence est importante, plus l'aluminium est éliminé. L'aspect de la particule inhomogène, sous forme de gouttes et cette zone claire qui prend l'aspect d'une coulée indique un passage à l'état liquide. Par conséquent, l'élimination de l'aluminium par irradiation laser correspond à la vaporisation de la particule. C'est un effet thermique. La fluence pilote le changement d'état de l'aluminium.

A l'emplacement de la particule initiale, lorsque l'aluminium est éliminé, la silice est enfoncée. Pour déterminer le ou les mécanismes à l'origine de cette excavation des mesures complémentaires ont été réalisées. La densification de la silice entraînerait une variation des indices optiques. Nous avons donc utilisé l'ellipsométrie (décrite en annexe A.5) pour mesurer les constantes optiques de la particule et son substrat irradiés. L'appareil utilisé est un I-Elli 2000 de chez NanoFilm Technologie (Gottingen, Allemagne) équipé d'un laser Nd : YAG doublé ($\lambda = 532$ nm). Les variations de polarisation mesurées sont telles qu'elles ne

peuvent être obtenues sur un substrat seul. Les résultats traduisent clairement la présence d'un matériau autre que la silice. La surface se conduit comme un système composé du substrat sur lequel est déposée une couche mince inhomogène et dont l'épaisseur est inconnue. La mesure ne permet donc pas d'obtenir une valeur fiable des indices optiques. Par contre, elle montre la présence d'un autre matériau qui serait de l'aluminium pur ou oxydé.

Un autre moyen de mettre en évidence la densification de la silice pourrait être la spectroscopie Raman^{75, 76}. Cette technique est décrite en annexe A.6. Elle permet à partir de la lumière diffusée d'un échantillon, illuminé par un faisceau laser, d'analyser la nature chimique, la position relative des atomes et leur distance interatomique. L'appareil utilisé est un Micro-spectromètre Raman confocal LABRAM I équipé d'une source laser Argon ionisé. Les paramètres du laser sont une longueur d'onde de 514 nm, une puissance de 4 mW et un diamètre de 1 μm . Le temps d'acquisition d'un spectre est de 30 s. La figure III-26 représente le cliché d'une particule irradiée à 40 J/cm², son profil ainsi que les spectres Raman de la silice non irradiée, de la silice à l'emplacement initial de la particule irradiée, noté (a), et à 50 μm de l'emplacement initial, noté (b).

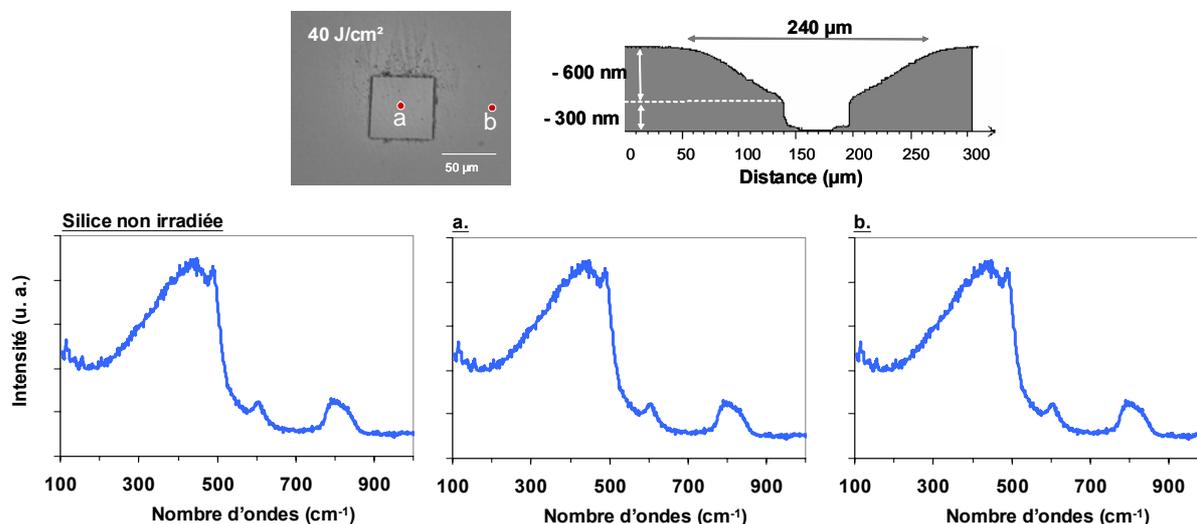


Figure III-26 : Cliché d'une particule d'aluminium irradiée à 40 J/cm² et son spectre Raman.

Le cliché montre la silice marquée après élimination de la particule par irradiation laser. Le profil révèle une zone enfoncée de 240 μm de large et une profondeur maximale à l'emplacement initial de 900 nm.

Le spectre de la silice non irradiée est caractérisée par un large pic vers 445 cm^{-1} (largeur de l'ordre de 200 cm^{-1}), de deux pics étroits à 495 et 605 cm^{-1} (de largeur respective 12 et 2 cm^{-1}) et une large bande peu intense à 800 cm^{-1} ^{77, 78}. Les spectres obtenus au point (a) et au point (b) sont identiques au spectre de la silice non irradiée.

La large bande à 445 cm^{-1} est attribuée au mouvement symétrique des liaisons Si-O-Si des oxygène dans le plan de la bissectrice de la liaison Si...Si. Les deux pics fins correspondent aux mouvements de « respiration » des oxygènes découplés. Le mode à 800 cm^{-1} est attribué à l'étirement de la vibration Si-O. Un déplacement en fréquence des pics ainsi qu'une variation

⁷⁵ C.H. Polsky, K.H. Smith, G.H. Wolf. Effect of pressure on the absolute Raman scattering cross section of SiO₂ and GeO₂ glasses, J. of Non-Crystalline solids **248**, 159 (1999).

⁷⁶ M. Okuno, B. Reynard, Y. Shimada, Y. Syono, C. Willaime. A Raman spectroscopy of shock-wave densification of vitreous silica, Phys. Chem. Minerals **26**, 304 (1999).

⁷⁷ F.L. Galeener, A.J. Leadbetter, M.W. Stringfellow. Comparison of the neutron, Raman, and infrared vibrational spectra of vitreous silica SiO₂, GeO₂ and BeF₂, Phys. Rev. B, **27**, 1052 (1983).

⁷⁸ J.C. Phillips. Structural model of Raman "defect" bands of vitreous silica, Phys. Rev. B **35**, 6409 (1987).

d'intensité se traduit par une densification de la silice. Cette densification correspond à une réduction de l'angle Si-O-Si (variation des pics à 445, 495 et 605 cm^{-1}). L'absence d'évolution du spectre de la silice aux différents points de mesure montre l'absence de densification. La silice est donc ablatée sous le flux laser.

A partir de 5 J/cm^2 , l'aluminium et la silice sont donc ablatés. Mais l'ablation s'accompagne souvent d'un re-dépôt. Si des résidus d'aluminium pur ou oxydé ou de silice se sont redéposés de part et d'autre de la particule irradiée, la rugosité même faible doit être modifiée. Pour la mesurer, nous avons utilisé la Microscopie à Force Atomique (AFM). Elle permet une détermination précise de la rugosité du substrat (Rms) après élimination de la particule. Elle consiste à effectuer une cartographie carrée de 10 μm de côté de 256×256 points, afin d'obtenir la précision nécessaire à différentes distances du centre de l'emplacement de la particule. La figure III-27 représente les valeurs obtenues sur les particules irradiées à 5, 10, 20 ou 40 J/cm^2 . La rugosité de la silice non irradiée est mesurée à 1 nm.

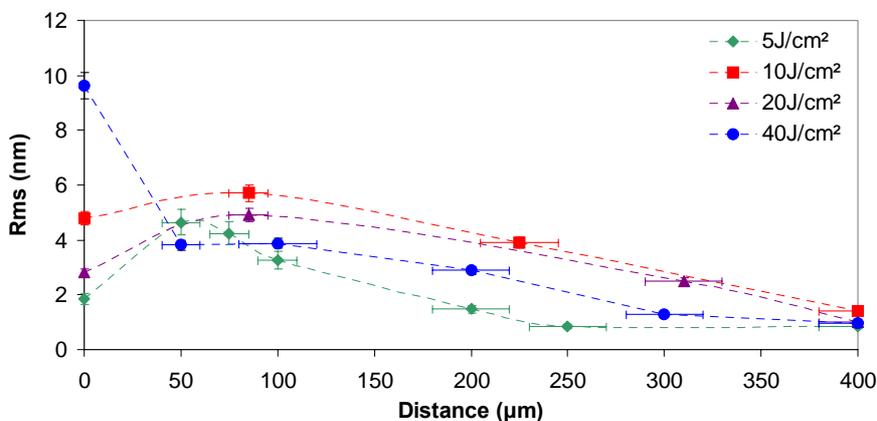


Figure III-27 : Rugosité de la silice en fonction de la distance depuis le centre de la particule irradiée.

Les mesures montrent la même évolution de la rugosité, en fonction de la distance, sur les particules irradiées à 5, 10 et 20 J/cm^2 : la rugosité est légèrement élevée au centre de la particule irradiée, elle augmente pour atteindre un maximum à une distance inférieure à 100 μm puis diminue pour atteindre une rugosité de 1 nm à une distance de 400 μm . L'ensemble des valeurs mesurées sur la particule irradiée à 5 J/cm^2 est moins élevé que celles mesurées à 20 J/cm^2 et à 10 J/cm^2 . A 40 J/cm^2 , la rugosité maximale se situe au centre de la particule, diminue rapidement jusqu'à 4 nm à 50 μm du centre de la particule, puis progressivement sur 450 μm .

Cette variation de la rugosité peut être générée par l'ablation d'une silice super polie ou par un re-dépôt. Mais la zone la plus ablatée au centre de la particule ne correspond pas à la rugosité la plus élevée, excepté à 40 J/cm^2 (seuil d'endommagement laser). Ceci semble confirmer l'hypothèse d'un re-dépôt. Même si ce dépôt est nanométrique, il est plus grossier à 10 J/cm^2 , qu'à 20 et 40 J/cm^2 . Pour essayer de visualiser ces nanoparticules, des mesures en contraste de phase, utilisées en général pour les mesures sur les polymères^{79, 80}, sont

⁷⁹ I. Shmiz, M. Schreiner, G. Friedbacher, M. Grasserbauer. Phase imaging as an extension to tapping mode AFM for the identification of material properties on humidity sensitive surfaces, Appl. Surf. Sc. **115**, 190 (1997).

⁸⁰ F. Clément, A. Lapra, L. Bokobza, L. Monnerie, P. Menez. Atomic force microscopy investigation of filled elastomers and comparison with transmission electron microscopy _ application to silica filled silicone elastomers, Polymer, **42**, 6259 (2001).

réalisées. La figure III-28 représente les différents signaux enregistrés en mode non contact sur une silice non irradiée et au centre de la particule irradiée à 20 J/cm² : topographie, signal d'amplitude et signal phase (développés en annexe A). Les cartographies obtenues en signal topographique et signal d'amplitude sont très similaires et mettent en évidence la rugosité de la surface que nous avons mesurée. La comparaison entre le signal d'amplitude (plus résolu que la topographie) et le signal de phase permet de nous renseigner sur l'hétérogénéité de la surface. Nous pouvons ainsi comparer l'hétérogénéité de la surface de la silice non irradiée avec celle d'une silice sur laquelle une particule était déposée puis a été éliminée par une irradiation laser à 20 J/cm².

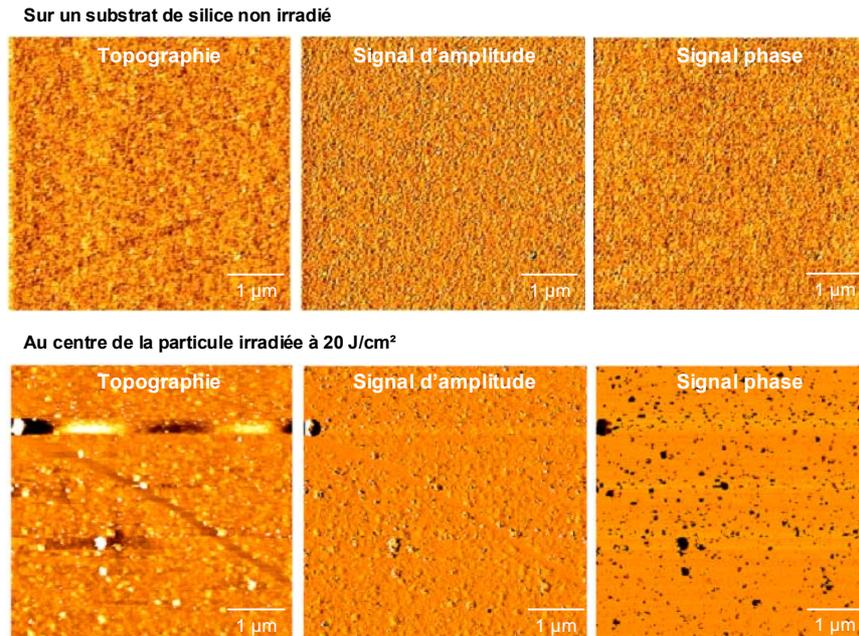


Figure III-28 : Différents signaux mesurés en AFM : topographie, signal d'amplitude et signal phase à l'emplacement de la particule irradiée à 20 J/cm².

Sur le substrat de silice avant irradiation, la topographie montre un état de surface présentant de fines aspérités qui sont représentées de façon identique sur le signal d'amplitude et sur le signal de phase.

Sur la particule irradiée à 20 J/cm², la topographie montre des variations de hauteur plus importantes, plus grossières. La surface semble granuleuse. Les signaux d'amplitude montrent les mêmes différences à une échelle plus fine. Le signal phase semble binaire : certaines aspérités, observées sur la topographie ou le signal d'amplitude, sont oranges et d'autres sont noires. Les défauts de la silice tel qu'une rayure, visible sur le signal de topographie et peu sur le signal d'amplitude, ne provoquent aucune variation du signal de phase. Elle apparaît donc orange. Par contre, les particules les plus en relief et certaines aspérités sont noires montrant un signal de phase différent du substrat de silice.

Cette variation de phase de la vibration de la pointe provient d'une interaction différente entre la pointe et le matériau substrat. Elle indique la présence d'un matériau aux propriétés mécaniques ou chimiques différentes de celles du substrat de silice. Des nanoparticules, de nature autre que la silice, sont réparties de façon relativement homogène sur la surface. Ces nanoparticules ont été observées sur toutes les zones où la rugosité était différente de 1 nm. La mesure par AFM a donc permis de conforter l'hypothèse de la présence de nanoparticules d'aluminium sur la silice.

La fluence est un paramètre essentiel dans l'interaction rayonnement laser/particule/substrat. La figure III-29 résume l'ensemble des résultats expérimentaux

décrits ci-dessus. Ceux-ci ont été obtenus après une irradiation laser à une longueur d'onde de 1064 nm et une durée d'impulsion de 6,5 ns.

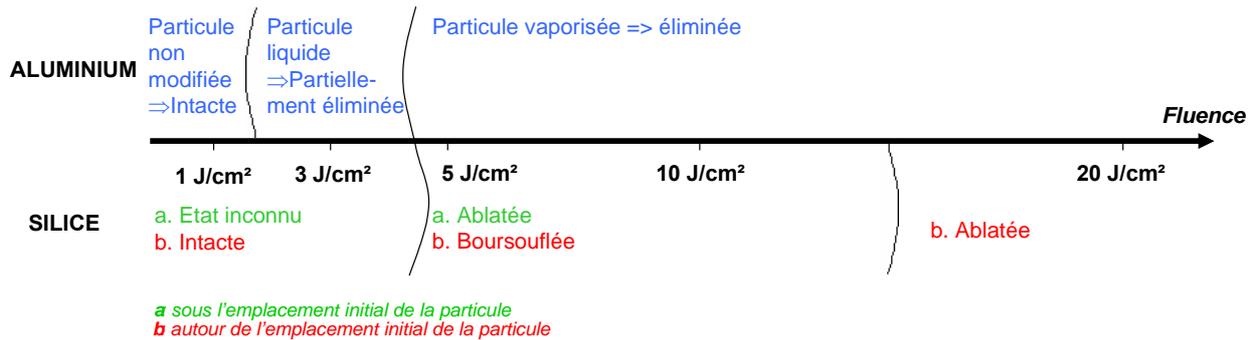


Figure III-29 : Schéma bilan de l'effet de la fluence.

L'élimination de la particule démarre à environ 3 J/cm². Comme l'aluminium n'est que liquéfié, son élimination est incomplète. Autour de 5 J/cm², bien que l'ablation de la particule soit totale, elle s'accompagne d'une migration de nanoparticules d'aluminium dans la silice. Pour des fluences supérieures à 5 J/cm², l'aluminium est totalement vaporisé.

Aucune modification du substrat de silice n'est détectée lorsque la particule n'est pas éliminée. Dès que la particule est vaporisée, une modification de surface apparaît. Elle correspond à une excavation générée par l'ablation de la silice à l'emplacement initial de la particule. De part et d'autre, la silice peut présenter des renflements (entre 5 et 10 J/cm²) ou former une cuvette (> 10 J/cm²).

Dans la suite de ce travail, des mesures expérimentales complémentaires ont été réalisées pour tester l'effet de la forme et de la taille des particules.

4.3. Effet de la forme et de la taille des particules

La pollution collectée dans la LIL est constituée de particules de tailles et de formes diverses. Nous essayons, dans cette partie, d'évaluer l'influence de ces deux paramètres dans l'interaction du rayonnement laser avec des particules préparées par photolithographie sur un substrat de silice. Ces particules « modèles » sont irradiées dans la même configuration que celle représentée sur la figure III-22 : la longueur d'onde du laser est de 1064 nm et la durée d'impulsion de 6,5 ns. Chaque particule est soumise à une impulsion laser de fluence déterminée.

- **Forme des particules**

Pour observer l'influence de la forme des particules, nous étudions et comparons deux formes de particules d'aluminium : de surface carrée ou de surface circulaire. Dans les deux cas, l'épaisseur de 1 µm est identique. Leurs dimensions sont similaires : 50 µm de côté et 1 µm d'épaisseur pour les particules carrées, 50 µm de diamètre et 1 µm d'épaisseur pour les particules circulaires. Précédemment, nous avons observé les images obtenues après une irradiation laser à la longueur d'onde de 1064 nm et une durée d'impulsion de 6,5 ns, de particules carrées, placées sur la « face arrière » du substrat par rapport au faisceau laser (figure III-24). Les particules de forme circulaire sont soumises au rayonnement laser dans les mêmes conditions. La figure III-30 montre une comparaison entre les observations effectuées sur les particules carrées et circulaires, après une irradiation laser à une fluence de 3 et 5 J/cm². Le tir réalisé à 5 J/cm² n'est pas centré sur la particule mais est désaxé de quelques

micromètres. Un axe tracé sur le cliché permet de visualiser la fluence d'irradiation en fonction de ce décentrage.

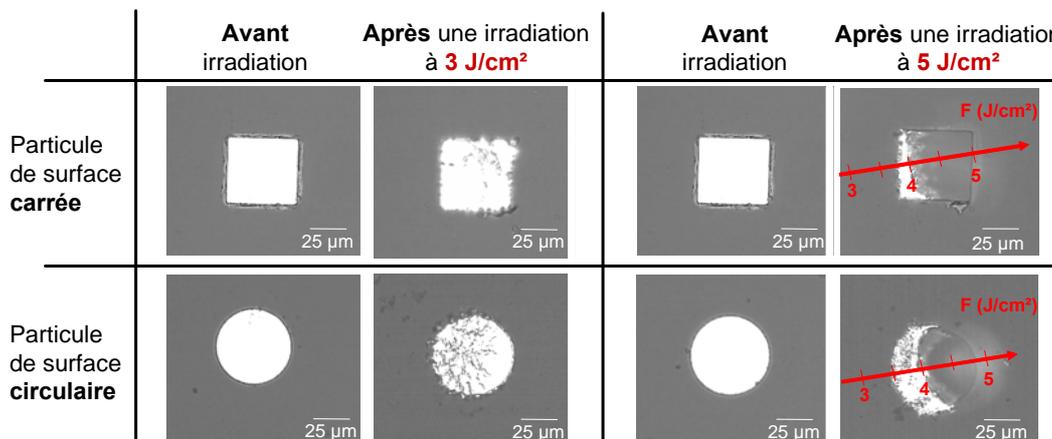


Figure III-30 : Particules d'aluminium soumise au rayonnement laser à 1064 nm et 6,5 ns observées au microscope optique.

D'après les observations au microscope optique, après une irradiation laser à 3 J/cm², indépendamment de la forme de la particule, l'aluminium présente le même aspect de surface. Après un tir décentré à 5 J/cm², la même transition solide/liquide/vapeur est observée sur la particule de forme circulaire et celle de forme carrée. Sur la partie vaporisée de la particule, la silice est marquée des contours de la particule initiale. Nous avons montré précédemment sur la particule de forme carrée que cette marque correspond à une marche d'une vingtaine de nanomètres de profondeur.

Deux particules de même épaisseur et aux dimensions latérales comparables sont liquéfiées ou vaporisées aux mêmes fluences, quelle que soit leur forme.

Lors de la vaporisation de l'aluminium, la profondeur de l'empreinte laissée à la surface du substrat de silice est semblable que la particule soit initialement carrée ou circulaire.

- **Taille des particules**

Pour observer l'influence de la taille des particules, nous étudions et comparons deux tailles de particules d'aluminium. Elles ont été choisies en relation avec les particules collectées dans la LIL et analysées, dont les dimensions varient entre 3 et 100 μm. Dans les deux cas, l'épaisseur de 1 μm et la forme sont identiques. Seules les dimensions latérales varient : 50 μm × 50 μm pour le premier échantillon et 7 μm × 7 μm pour le second. Les résultats obtenus avec le premier échantillon constitué d'un substrat de silice et des particules de dimension 50 μm × 50 μm ont été développés précédemment. Dans ce paragraphe, nous présentons les principaux résultats concernant le deuxième échantillon et nous les comparons au premier. Comme précédemment les particules sont placées sur la « face arrière » du substrat de silice par rapport au faisceau laser. Chacune des particules est exposée à un rayonnement laser de longueur d'onde de 1064 nm, d'une durée d'impulsion de 6,5 ns, à une fluence déterminée. La figure III-31 représente les deux types de particules après une irradiation à une fluence comprise entre 1 et 20 J/cm².

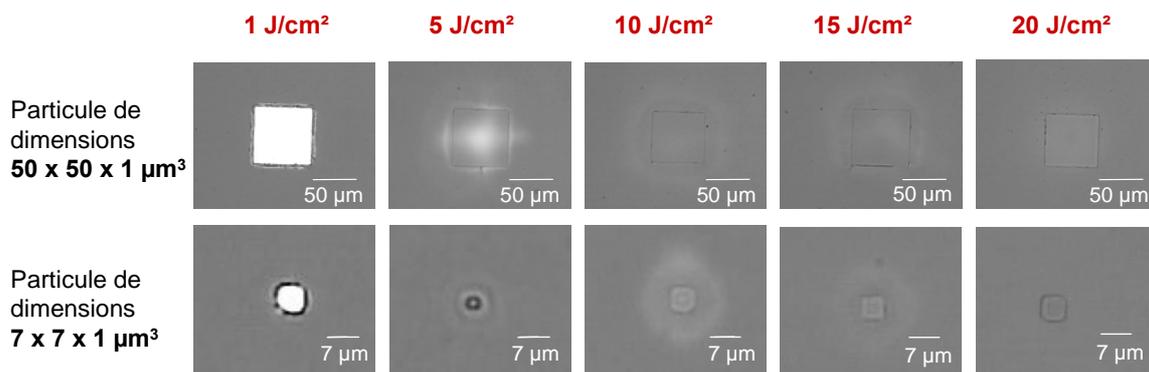


Figure III-31 : Particules d'aluminium de deux tailles différentes observées au microscope optique après irradiation ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

L'irradiation à 1 J/cm² ne provoque aucune modification de la particule quelle que soit sa taille. L'aluminium reste solide. Après une irradiation de 5 J/cm², la particule est éliminée. A l'emplacement initial de la particule de 50 μm, une zone claire est observable alors qu'une zone sombre semble plutôt apparaître au centre de la particule de 7 μm. Dans les deux cas, la silice est marquée par les contours de la particule. L'étude précédente sur les particules de 50 μm nous a montré qu'il s'agit d'une excavation dans la silice. L'allure des marques des particules irradiées à 10, 15 ou 20 J/cm² observées sur les clichés semble équivalente et indépendante de la taille de la particule. L'auréole présente autour des particules semble s'estomper avec la fluence. Nous notons que celle-ci est relativement plus étendue autour des particules de 7 μm.

Pour préciser ces observations, des mesures de profilométrie ont été réalisées. La figure III-32 est composée de 8 cartographies de hauteur/profondeur réalisées autour des particules irradiées et déjà observées ci-dessus. Ces cartographies permettent de comparer les modifications générales de la surface de la silice générées pour les deux tailles de particules. Notons que les niveaux de couleurs caractéristiques des hauteurs/profondeurs ne sont pas comparables d'une cartographie à une autre.

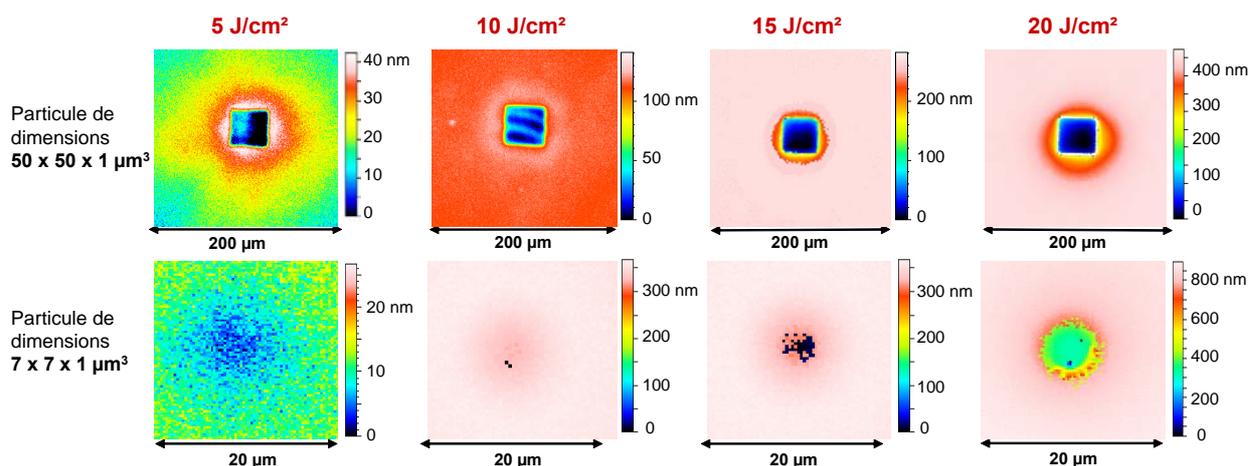


Figure III-32 : Cartographies de profondeurs de particules d'aluminium de deux tailles différentes et irradiées ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

Indépendamment de la fluence d'irradiation laser, nous distinguons les cartographies réalisées sur les particules de 50 μm par une excavation relativement uniforme sur toute une surface de 50 μm × 50 μm à l'emplacement initial de la particule. La profondeur de cette excavation augmente avec la fluence. Autour de cette excavation carrée, nous distinguons différents états de surfaces. Après une irradiation de 5 J/cm², une couronne d'une hauteur plus

élevée que la surface de la silice et d'environ 20 μm de large est observable. Après une irradiation à 10 J/cm^2 , une couronne moins étendue que précédemment est également visible. Pour les fluences de 15 et 20 J/cm^2 , autour de la particule se forme une zone circulaire dont la profondeur croît jusqu'à l'excavation créée à l'emplacement initial de la particule (cf. Figure III-24). Cette zone forme une cuvette plus profonde et plus étendue à 20 J/cm^2 qu'à 15 J/cm^2 .

Les cartographies de hauteur/profondeur réalisées sur les particules de 7 μm irradiées révèlent une excavation dont la forme ne correspond pas à la particule initiale. Après une irradiation à 5 J/cm^2 , une excavation d'une dizaine de nanomètres est créée. Ses contours sont diffus. Son diamètre semble plus important que la largeur initiale de la particule. L'irradiation à 10 J/cm^2 provoque la formation d'une excavation ponctuelle d'une profondeur de l'ordre de 300 nm, au centre d'une zone circulaire d'une dizaine de micromètres de large et peu profonde. Cette zone peu profonde ressemble à la cuvette formée autour des particules de 50 μm à plus haute fluence. Après une irradiation à 15 J/cm^2 , ces excavations ponctuelles sont en plus grand nombre mais toujours de même profondeur. A 20 J/cm^2 , à l'emplacement initial de la particule, le nombre d'excavations ponctuelles est si élevé qu'elles forment une excavation unique. Sa largeur est comparable à celle de la particule initiale et sa profondeur est d'environ 400 nm.

Dans un premier temps, nous comparons l'évolution des cuvettes en fonction de la fluence du laser, pour les deux tailles de particules. La figure III-33 est composée de deux graphiques. Le premier montre la profondeur de la cuvette en fonction de la fluence pour des particules initialement de 7 et 50 μm de large. Le deuxième donne le diamètre des cuvettes correspondantes toujours en fonction de la fluence. Notons que la profondeur est exprimée en nanomètres et le diamètre en micromètres.

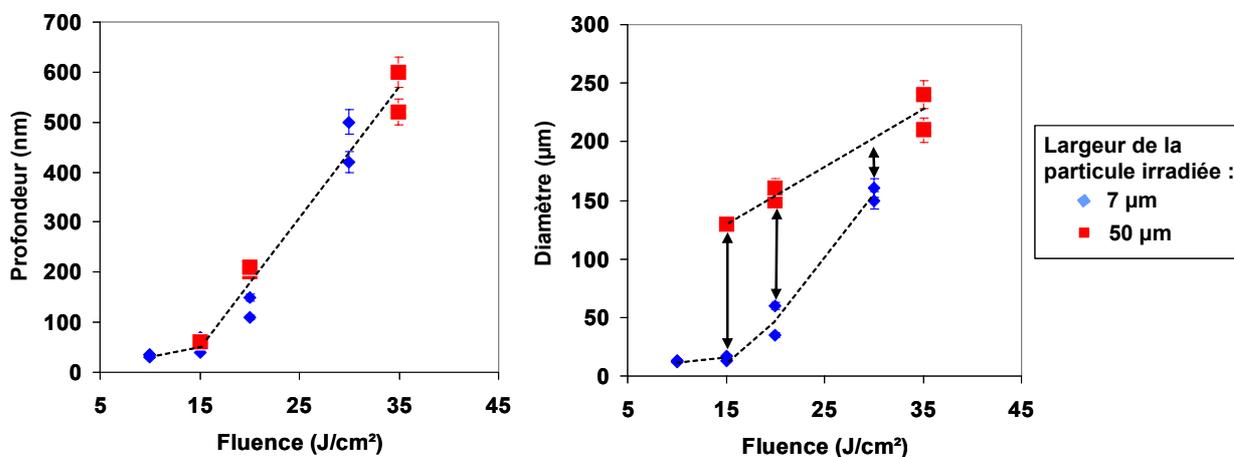


Figure III-33 : Evolution de la profondeur et du diamètre de la cuvette formée après irradiation de particules de 5 et 50 μm de côté, en fonction de la fluence.

La cuvette autour des particules de 50 μm n'apparaît qu'après l'irradiation à 15 J/cm^2 alors que dès 5 J/cm^2 , elle est visible autour des particules de 7 μm de large. Les profondeurs mesurées sont du même ordre de grandeur, quelle que soit la taille de la particule. Elles suivent la même tendance : elles augmentent avec la fluence.

A partir de 15 J/cm^2 , indépendamment de la taille de la particule, le diamètre de la cuvette formée augmente avec la fluence de façon linéaire. L'écart entre le diamètre de la cuvette autour des petites et des grandes particules se réduit avec l'élévation de la fluence. A partir d'environ 30 J/cm^2 , l'écart est très faible et la dimension de la cuvette semble devenir indépendante de la taille de la particule.

L'évolution similaire de la profondeur de la cuvette entre petites et grandes particules peut s'expliquer par une épaisseur d'aluminium identique. Par contre, les différences de diamètre de cuvette sont certainement liées à la largeur de la particule. Avec l'augmentation de la fluence, la surface du faisceau gaussien dont l'énergie est suffisante pour provoquer la formation d'une cuvette devient plus grande. Ainsi, à forte fluence, le diamètre de la cuvette est caractéristique de l'énergie du faisceau laser.

On s'intéresse maintenant aux excavations apparues à l'emplacement initial de la particule. Pour les caractériser plus précisément, des profils sont relevés au niveau de la particule irradiée sur les cartographies décrites ci-dessus. Il est important de noter que le niveau zéro correspond soit à la surface de la silice, soit au fond de la cuvette quand celle-ci existe. Afin de mieux visualiser les différences de profondeur relevées dans la silice après l'irradiation des particules à 5, 10, 15 ou 20 J/cm², les profils sont superposés. Ils sont présentés sur la figure III-34 pour chacune des deux dimensions de particules.

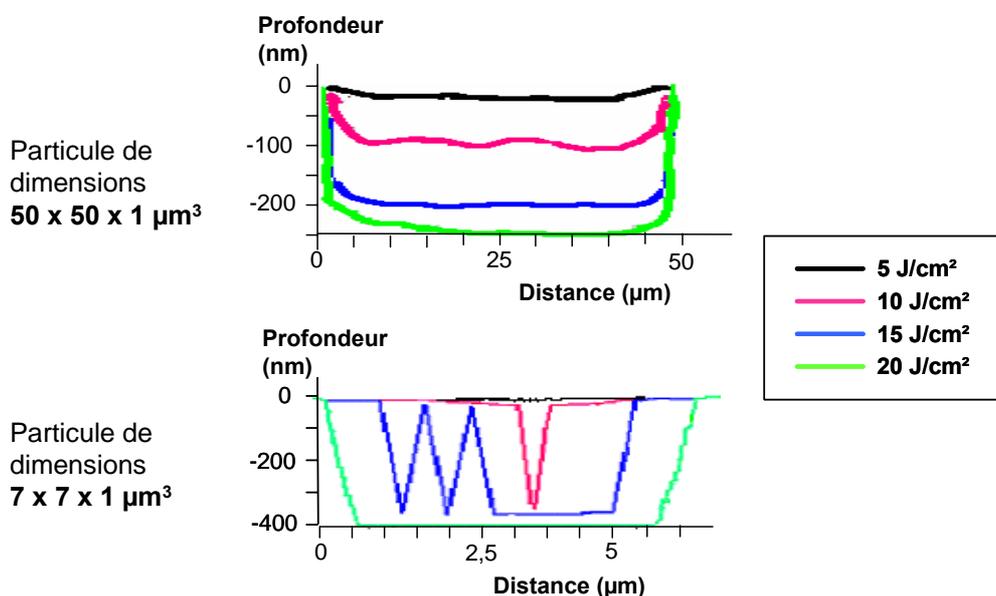


Figure III-34 : Profils de particules d'aluminium de deux tailles différentes et irradiées ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

Les profils mesurés à l'emplacement de la particule de 50 μm de large ont une forme semblable qui évolue avec la fluence. Ils sont caractérisés par une excavation de 50 μm de large à l'emplacement initial de la particule et d'une profondeur de 25, 110, 200 et 250 après une irradiation à respectivement 5, 10, 15 et 20 J/cm².

Les profils mesurés à l'emplacement de la particule de 7 μm sont de forme différente. Après une irradiation à 5 J/cm², l'excavation est très faible. Il est difficile de le distinguer de la cuvette plus large. Après une irradiation à 10 J/cm², une excavation ponctuelle est visible. Sa profondeur est de 300 nm et sa largeur d'environ 1 μm . Les limites de la résolution latérale du profilomètre ainsi que la différence d'unité entre la distance et la profondeur peuvent tromper sur son aspect. Des excavations semblables sont présentes en plus grand nombre après une irradiation à 15 J/cm². Leur profondeur est de 360 μm . Après une irradiation à 20 J/cm², l'excavation est uniforme sous la particule de 7 μm .

A partir de profils identiques à ceux de la figure III-34, nous obtenons les valeurs d'excavation maximale obtenues sous une particule d'aluminium après irradiation. Sur la figure III-35, nous comparons ces mesures pour les particules de 7 et 50 μm , pour plusieurs fluences d'irradiation.

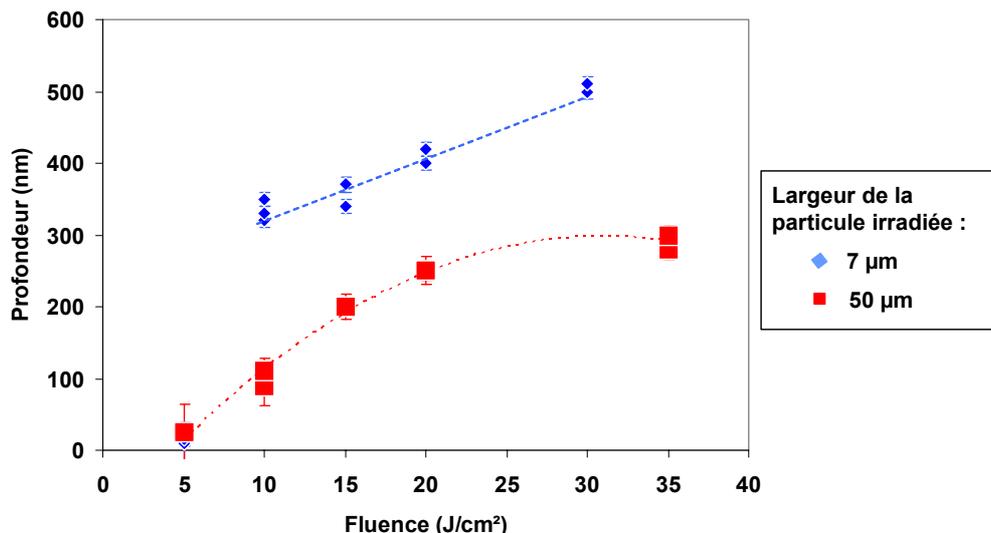


Figure III-35 : Profondeur de l'excavation sous la particule de 5 et 50 µm de côté irradiée à différentes fluences.

Quelle que soit la fluence du laser, la profondeur est très différente selon qu'elle est provoquée par une particule de 7 ou de 50 µm de large. Pour une seule fluence proche de 5 J/cm², l'irradiation laser provoque une très faible excavation du même ordre de grandeur pour les deux tailles de particules. Pour une fluence d'irradiation supérieure ou égale à 10 J/cm², l'aluminium est vaporisé provoquant une excavation de la silice d'autant plus importante que la particule est petite. De plus, l'augmentation de la profondeur en fonction de la fluence semble progresser différemment pour les deux dimensions de particule.

Pour compléter ces caractérisations, les particules irradiées entre 5 et 20 J/cm² sont analysées en microscopie photothermique. Cette technique, présentée brièvement en annexe A, permet d'obtenir une cartographie d'absorption à 1064 nm. L'absorption est mesurée avec un faisceau laser d'un micromètre de diamètre. L'échantillon se déplace par pas de 4 µm de manière à obtenir une cartographie d'une surface de 80 µm × 80 µm pour les particules de 50 µm et de 40 µm × 40 µm par pas de 2 µm pour les particules de 7 µm. La figure III-36 regroupe les cartographies d'absorption obtenues sur chacune des particules de 50 ou 7 µm de large, pour les quatre fluences qui nous concernent. A noter que l'échelle du niveau d'absorption est différente pour les particules irradiées à 5 J/cm².

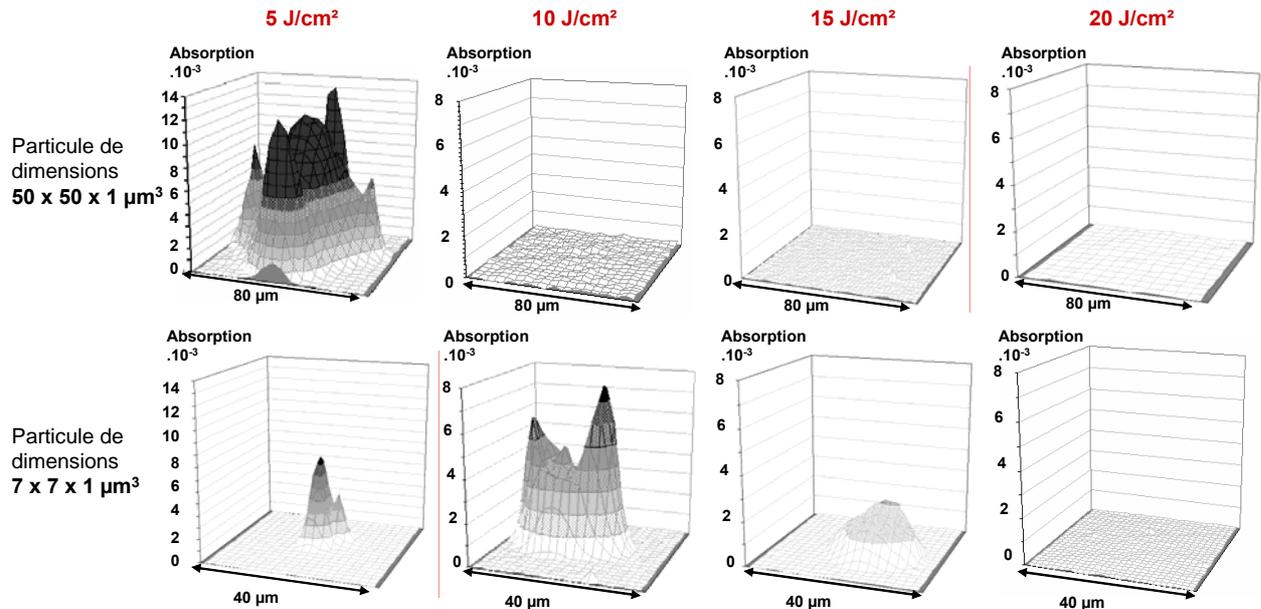


Figure III-36 : Cartographies d'absorption de particules d'aluminium de 7 ou 50 µm de large ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

Pour les particules de 50 µm, seule la cartographie mesurée autour de la particule irradiée à 5 J/cm² montre une absorption élevée. La zone absorbante s'étend sur une surface d'environ 80 µm de diamètre. Le maximum d'absorption détecté se situe au centre de la position initiale de la particule est de 14.10⁻³. Les pics secondaires d'absorption élevée proviennent probablement de la diffraction du rayonnement incident sur les renflements de la silice. Pour des fluences d'irradiation supérieures, l'absorption mesurée est comparable au bruit de fond de la mesure.

Pour les particules de 7 µm, un niveau d'absorption supérieur au bruit de fond de la mesure est détecté à 5, 10 et 15 J/cm². Après une irradiation à 5 J/cm², la zone absorbante de la silice s'étend sur une surface circulaire de 15 µm de diamètre. L'absorption maximale est proche de 8.10⁻³. Après une irradiation à 10 J/cm², l'absorption est aussi élevée qu'après une irradiation à 5 J/cm² mais la zone absorbante est plus étendue (30 µm de diamètre). Pour des irradiations à des fluences supérieures, l'absorption diminue pour être confondue avec le bruit de fond à 20 J/cm².

Quelle que soit la taille de la particule, après une irradiation à 5 J/cm², nous avons détecté une surface et un niveau d'absorption en rapport avec le volume d'aluminium initialement disponible. Par contre pour une fluence d'irradiation supérieure ou égale à 10 J/cm², un comportement très différent est observé entre les deux tailles de particules. Ce résultat confirme les observations précédentes effectuées au profilomètre, montrant ainsi la forte influence de la taille d'une particule sur son élimination.

La taille de la particule semble donc avoir une influence sur la morphologie de la modification de surface de la silice lors de l'irradiation. Une particule de 7 µm sous un rayonnement laser de longueur d'onde de 1064 nm et de durée d'impulsion de 6,5 ns provoque une excavation de la silice plus profonde qu'une particule de 50 µm. Une hypothèse pour expliquer cette différence de profondeur est un échauffement différent de la silice dans les deux cas. Lors de l'irradiation de grandes particules, l'aluminium absorbe l'énergie et chauffe la silice de façon homogène. L'énergie laser peut être diffusée sur la surface relativement étendue de la particule. Lors de l'irradiation de petites particules, la silice est chauffée localement sur une surface moindre. Cette chaleur intense et ponctuelle peut créer une zone de fragilisation. De l'aluminium peut alors migrer dans cette silice fragilisée

induisant ainsi un signal d'absorption non négligeable. La silice chauffée et fragilisée peut se fracturer et/ou s'ablater localement et de façon inhomogène.

Pour les deux dimensions de polluants étudiées ($50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$ et $7\ \mu\text{m} \times 7\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$), un comportement similaire des particules est observé. Elles sont éliminées à une fluence proche de $5\ \text{J}/\text{cm}^2$ pour un faisceau laser de $\lambda=1064\ \text{nm}$ et $\tau=6,5\ \text{ns}$.

Lorsque la particule est vaporisée et que la silice est ablatée, des états de surface très différents sont obtenus entre les deux tailles de polluant. De manière surprenante, la particule la plus petite génère sous irradiation laser une excavation dans le substrat de silice plus prononcée, plus accidentée, et également plus absorbante.

Afin de mesurer la gravité de cet état de surface, il est important de tester l'influence d'impulsions laser successives.

4.4. Influence du nombre d'impulsions laser

Pour tester l'influence du nombre d'impulsions sur les modifications de surface observées, nous utilisons les mêmes échantillons que précédemment et les particules d'aluminium sont toujours irradiées en « face arrière » à une longueur d'onde de 1064 nm, et une durée d'impulsion de 6,5 ns (cf. figure III-22). Pour une fluence donnée, deux particules distinctes sont soumises à 1 ou 1000 irradiations. Les 1000 irradiations sont effectuées de façon progressive afin d'observer après chaque tir la croissance d'un endommagement laser. Comme précédemment chacune d'entre elles est analysée par microscopie optique, profilométrie et microscopie photothermique. Chaque particule est soumise à 1 ou 1000 impulsions laser de fluence déterminée.

Dans le cas des particules de $50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m} \times 1\ \mu\text{m}$, nous avons observé une particule après un tir laser à une faible fluence $3\ \text{J}/\text{cm}^2$ intéressante car elle ne permet pas la vaporisation complète de la particule. L'aluminium est légèrement fondu et une petite partie est éliminée. Par contre, après un tir laser à $20\ \text{J}/\text{cm}^2$, la particule est complètement vaporisée en laissant une empreinte sur la silice. Comme ces deux fluences génèrent des comportements très différents tant pour la particule que pour le substrat de silice, nous avons répété les irradiations. Nous avons comparé les particules qui ont subi 1 et 1000 irradiations successives. La figure III-37 représente les clichés obtenus en microscopie optique sur ces particules.

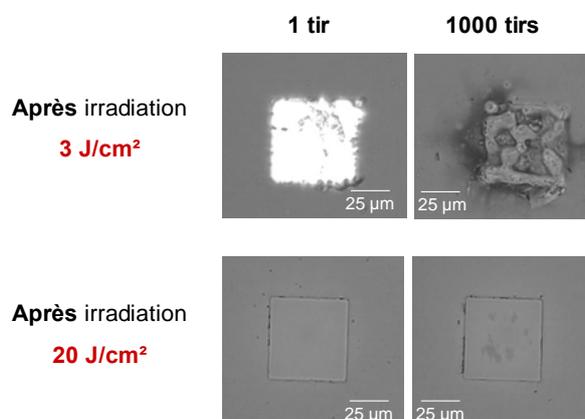


Figure III-37 : Clichés de particules d'aluminium soumise à 1 et 1000 irradiations à 3 et $20\ \text{J}/\text{cm}^2$, ($\lambda=1064\ \text{nm}$ et $\tau=6,5\ \text{ns}$).

A 3 J/cm^2 , les mille irradiations semblent avoir éliminé d'avantage d'aluminium qu'après un tir, mais une modification de l'état de surface de la silice est observée. La surface est marquée. Après 1000 tirs laser à 20 J/cm^2 , l'empreinte visible dans la silice semble rester stable. Il apparaît sur ces résultats que l'effet des tirs consécutifs dépend très fortement des modifications générées lors du premier tir.

Les cartographies de hauteur/profondeur réalisées sur chacune des particules observées ci-dessus sont représentées sur la figure III-38. De manière à préciser sa caractérisation, un profil de la particule qui a subi plusieurs tirs est montré sur la même figure.

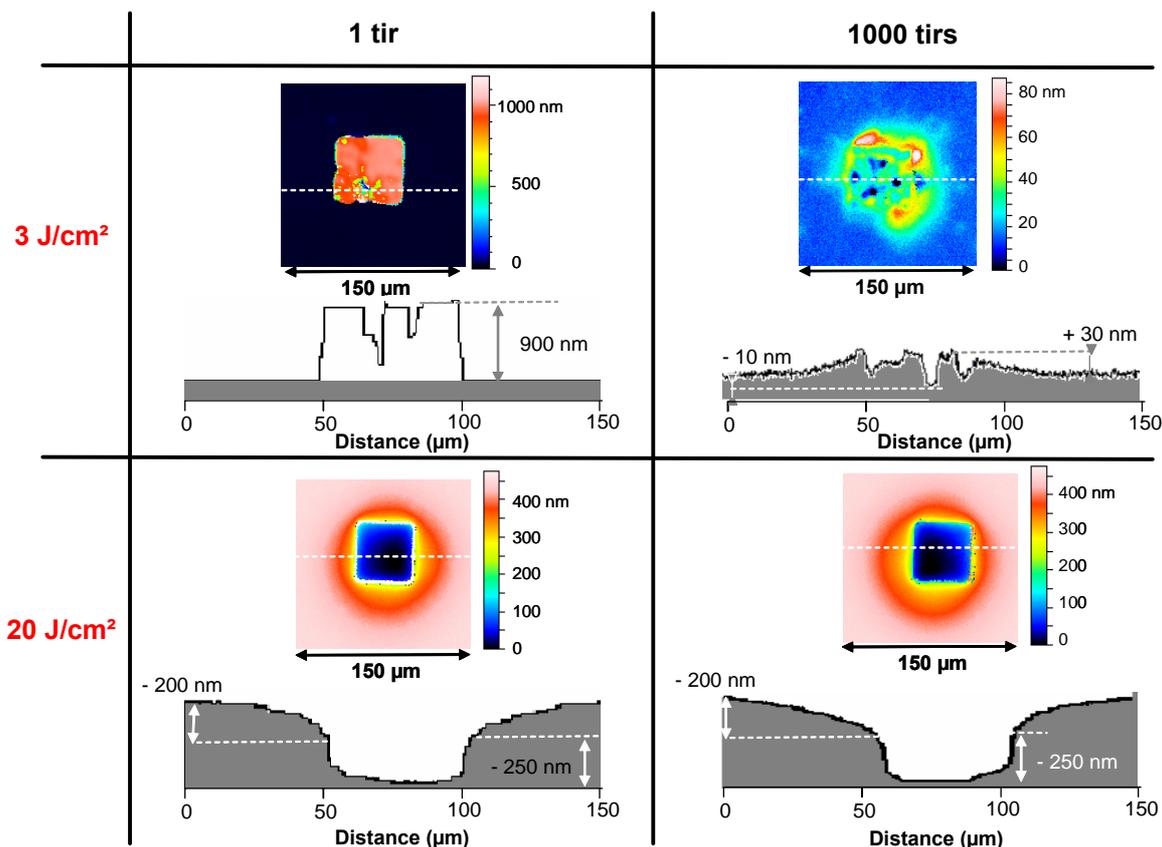


Figure III-38 : Cartographies de hauteur/profondeur et profil de particules soumises à 1 et 1000 tirs à une fluence de 3 et 20 J/cm^2 .

Après un tir à 3 J/cm^2 , la particule conserve une hauteur d'environ $1 \mu\text{m}$. Quelques inhomogénéités visibles ont été attribuées à l'aluminium fondu. Après 1000 tirs à 3 J/cm^2 , l'état de surface de la particule est très perturbé. Des variations de hauteur atteignant jusqu'à 80 nm (cf. cartographie) sont mesurées au centre de la particule. La silice semble également légèrement boursoufflée sur une zone correspondant aux contours de la particule irradiée.

Après un tir à 20 J/cm^2 , la particule est éliminée en laissant une empreinte dans la silice. Cette empreinte a la forme d'une cuvette d'environ $150 \mu\text{m}$ de diamètre et 200 nm de profondeur. Au centre, une excavation de même largeur que la particule $50 \mu\text{m}$ est formée dans la silice sur une profondeur de 250 nm . Après 1000 tirs à 20 J/cm^2 , le profil est identique à celui obtenu après un tir.

Pour compléter ces observations, des mesures d'absorption ont été réalisées par microscopie photothermique. Dans la configuration du microscope utilisée, la mesure d'absorption de l'échantillon est impossible lorsque la particule d'aluminium est présente. C'est le cas de la particule après 1 tir à 3 J/cm^2 . Seule la cartographie d'absorption de la particule après 1000 tirs peut être réalisée. Elle est représentée sur la figure III-39 et comparée à celle obtenue après 1000 irradiations à 20 J/cm^2 .

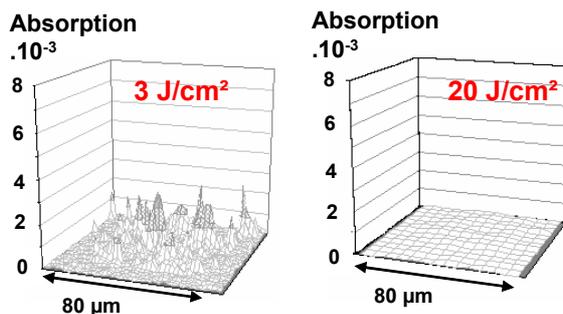


Figure III-39 : Cartographies d'absorption de particules d'aluminium soumise à 1000 tirs à 3 et 20 J/cm².

Après 1000 irradiations à 3 J/cm², l'ensemble de la zone de silice modifiée a un niveau d'absorption faible mais non négligeable. Cette absorption semble montrer que l'aluminium est toujours présent en surface. La zone modifiée de la silice dont le niveau d'absorption était proche du bruit de fond après une irradiation à 20 J/cm² reste non absorbante à 1064 nm après mille irradiations.

Nous supposons qu'à faible fluence, la succession de tirs permet d'éliminer progressivement l'aluminium. A chaque irradiation, l'absorption du rayonnement laser par l'aluminium résiduel provoque un échauffement de la silice. L'état de surface boursoufflé à l'emplacement de la particule résulte de la fusion de la silice dans laquelle l'aluminium a probablement migré. A cette fluence, l'élimination de la particule s'effectue de façon progressive sans qu'un endommagement laser critique n'apparaisse. A forte fluence, la modification de surface de la silice est quasiment identique à celle observée après un tir et le niveau d'absorption, comme après un seul tir est égal au bruit de fond. Aucune évolution n'est donc mesurée entre 1 et 1000 tirs.

Dans le cas des particules de 7 μm × 7 μm × 1 μm, nous avons montré qu'une fluence supérieure ou égale à 10 J/cm² est nécessaire pour observer un comportement différent de celui d'une particule de 50 μm. Nous étudions donc le cas d'une particule irradiée à une fluence de 15 J/cm². La figure III-40 représente les observations d'une particule soumise à 1 tir et d'une autre soumise à 1000 tirs.

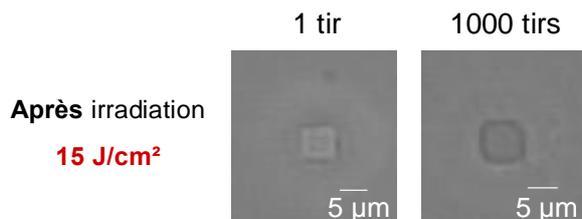


Figure III-40 : Particules soumise à 1 tir et 1000 tirs à 15 J/cm² observées au microscope optique.

A cette fluence, l'élimination de la particule après un tir est nette. La particule soumise à 1000 irradiations présente une empreinte peu différente. Aucun endommagement critique n'apparaît. Ce résultat est plutôt surprenant car nous avons vu que l'état de surface après une seule irradiation était accidenté. La figure III-41 montre cette mesure réalisée par profilométrie et la compare avec celle obtenue pour la particule irradiée 1000 fois.

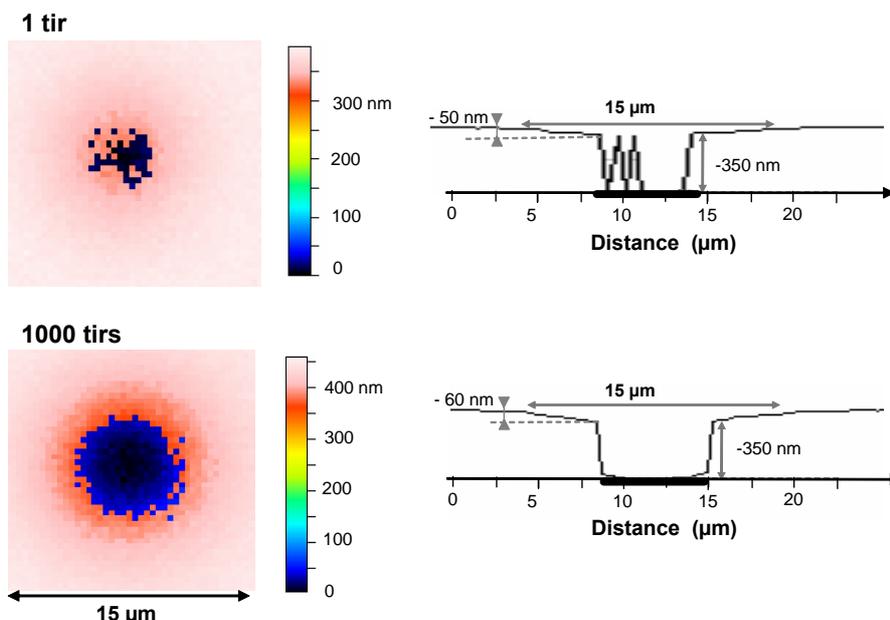


Figure III-41 : Cartographies de profondeur et profil de particules irradiées à 15 J/cm² après 1 et 1000 tirs.

Les cartographies, comme les profils, montrent des différences invisibles sur nos clichés. Après 1000 tirs, une excavation homogène d'une profondeur de 350 nm est mesurée à l'emplacement de la particule. La profondeur mesurée après un tir n'a donc pas augmenté après 1000 tirs. L'excavation a atteint les dimensions latérales de la particule initiale. De plus, la cuvette formée après le premier tir autour de la particule irradiée évolue peu (même largeur et profondeur proche). Donc, seule la silice initialement sous la particule d'aluminium est affectée par la répétition des irradiations. Pour compléter nos observations, nous utilisons la microscopie photothermique. La figure III-42 représente les cartographies d'absorption des deux particules soumises à 1 et 1000 tirs à 15 J/cm².

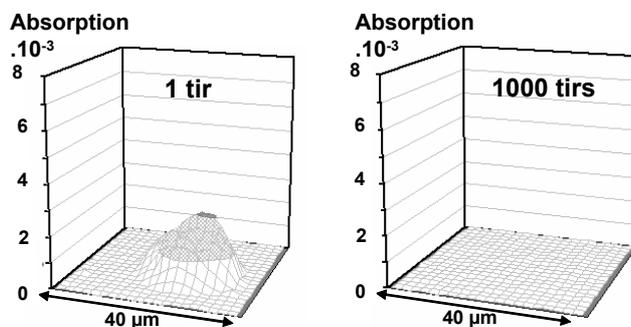


Figure III-42 : Cartographies d'absorption de particules d'aluminium soumise à 1 ou 1000 tirs à 15 J/cm².

L'absorption observée après une seule irradiation se confond avec le bruit de fond après 1000 tirs. Nous pouvons imaginer que l'absorption de la silice décroît avec le nombre d'irradiations. Nous avons vu que la silice qui entoure la particule initiale n'est pas affectée par la répétition des irradiations. Comme l'absorption de cette couronne de silice ne dépasse pas le bruit de fond après 1000 tirs, nous pouvons penser qu'elle contient de l'aluminium résiduel qui migre avec la répétition des tirs. Ces observations confirment l'hypothèse selon laquelle le signal d'absorption est lié à la présence d'aluminium.

Si la particule est liquéfiée après un tir laser, 1000 irradiations successives ne permettent pas d'atteindre l'élimination totale de l'aluminium.

Si la particule est vaporisée après un tir laser, quel que soit son état de surface, aucun endommagement laser critique n'est observé après 1000 irradiations successives. De plus, plusieurs irradiations provoquent l'élimination progressive des résidus d'aluminium laissés après un tir.

4.5. Conclusion

Nous avons utilisé des substrats de silice représentatifs des composants optiques, pollués par des particules d'aluminium obtenues par photolithographie. Ces particules «modèles» dont l'épaisseur est de 1 μm ont été irradiées en « face arrière », à une longueur d'onde de 1064 nm, et une durée d'impulsion de 6,5 ns.

Du point de vue de la particule, nous avons montré que son élimination dépend de la fluence du laser. Elle démarre à environ 3 J/cm^2 . Comme l'aluminium n'est que liquéfié, son élimination est incomplète. Même 1000 irradiations successives ne permettent pas de l'évacuer totalement. Autour de 5 J/cm^2 , bien que l'ablation de la particule soit totale, elle s'accompagne d'une migration de nanoparticules dans la silice. Pour des fluences supérieures à 5 J/cm^2 , l'aluminium est totalement vaporisé. Ces niveaux de fluences sont inchangés quelle que soit la forme ou la dimension latérale de la particule.

Du point de vue du substrat de silice, aucune modification n'est détectée lorsque la particule n'est pas éliminée. Dès que la particule est vaporisée, une modification de surface apparaît. Elle correspond à une excavation générée par l'ablation de la silice à l'emplacement initial de la particule. De part et d'autre de cette excavation, la silice peut présenter des renflements ou former une cuvette ($\geq 10 \text{ J}/\text{cm}^2$). Des états de surface très différents sont obtenus en fonction de la taille de la particule. Plus elle est petite, plus l'excavation dans le substrat de silice est prononcée, accidentée, et absorbante. La répétition des tirs permet d'éliminer progressivement les résidus d'aluminium laissés après un tir.

Pour une gamme de fluence de 10 à 20 J/cm^2 , la particule est vaporisée dès le premier tir laser et quel que soit l'état de surface du substrat, aucun endommagement laser critique n'est observé après 1000 irradiations successives.

Cette étude expérimentale a permis d'évaluer l'influence de quelques paramètres dans l'interaction laser/particule/substrat. Pour compléter et pour évaluer l'influence d'autres paramètres tels que le type de métal ou l'épaisseur de la particule, des simulations numériques ont été réalisées. Elles sont développées dans la partie suivante.

5. Simulation de l'interaction rayonnement laser/particule/substrat

Afin de prolonger l'étude expérimentale présentée dans la partie précédente, nous avons réalisé des simulations numériques à l'aide du code monodimensionnel ESTHER, présenté au chapitre I.4.3. D'une part, ces simulations permettent une meilleure interprétation des observations expérimentales, et d'autre part, elle complètent ces résultats. La particule est

simulée par une couche mince d'une épaisseur déterminée, au contact d'une lame de silice. Chaque matériau est défini par des grandeurs géométriques, telles que l'épaisseur du matériau et le nombre de mailles, ainsi que des grandeurs physiques telles que l'équation d'état, la conductivité thermique, les indices optiques... Le faisceau laser est caractérisé par une impulsion gaussienne de longueur d'onde, de durée d'impulsion, de polarisation et d'angle d'incidence déterminés. Pour toutes les simulations présentées dans cette partie, la longueur d'onde est de 1064 nm, la durée d'impulsion de 6,5 ns, la polarisation S et l'irradiation s'effectue selon un angle d'incidence de 0° , « en face arrière ». La lame de silice est donc orientée de façon à être irradiée directement par la face qui n'est pas en contact avec la particule. Avec ce choix de paramètre, les calculs montrent que la variation d'épaisseur du substrat joue un rôle important sur l'énergie déposée. Grâce à ces simulations, nous analysons le comportement de métaux différents, paramètre qui n'a pas été évalué expérimentalement. Les résultats obtenus sur une particule d'aluminium, comparés à ceux obtenus expérimentalement, permettent d'évaluer une épaisseur d'oxyde d'aluminium présent à l'interface entre le métal et le substrat de silice. L'effet de la fluence sur le comportement de l'aluminium et de la silice est déterminé numériquement et comparé aux résultats expérimentaux. Enfin, nous évaluons l'influence de l'épaisseur de la particule à une fluence d'irradiation fixe.

5.1. Effet de l'épaisseur du substrat

Expérimentalement, les substrats sur lesquels sont préparées les particules « modèles » sont des disques de silice superpolie. L'épaisseur mesurée sur deux pièces d'un lot de 25 substrats est de 2,86 mm. Bien que l'épaisseur ne soit pas définie au micromètre près, la rugosité inférieure à 2 \AA et la planéité des faces du substrat inférieure à 2 franges impliquent une épaisseur du substrat homogène et identique sous toutes les particules. Même une faible variation d'épaisseur du substrat ne devrait pas avoir une grande influence. Pour vérifier cela, des simulations numériques ont été réalisées avec le code ESTHER. La couche mince d'aluminium qui simule la particule a une épaisseur de 1 \mu m , équivalente à celle mesurée précédemment sur l'ensemble des particules du protocole expérimental. Elle est au contact d'une lame de silice d'épaisseur très supérieure, proche de 3 mm, et proportionnelle à 1064 nm (λ). L'ensemble est irradié par un rayonnement laser gaussien d'une longueur d'onde de 1064 nm, d'une durée d'impulsion de 6,5 ns, et d'une fluence de 8 J/cm^2 . Le rayonnement laser se propage dans le vide, traverse le substrat en « face arrière » et perpendiculairement comme représenté sur la figure III-43.



Figure III-43 : Schéma d'irradiation simulée par ESTHER.

Par la simulation, nous déterminons l'évolution de l'aluminium et de la silice dans le temps et nous relevons la température maximale atteinte dans la couche d'aluminium pendant l'irradiation. Nous répétons ce calcul en augmentant légèrement l'épaisseur de la silice de $\lambda/4$ à $\lambda/2$ soit de 266 à 532 nm. La figure III-44 montre l'évolution de la température maximale de l'aluminium en fonction de la variation d'épaisseur de la silice.

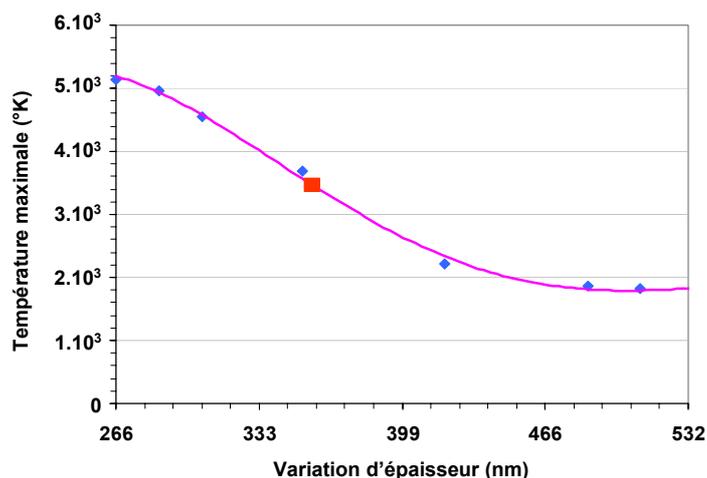


Figure III-44 : Evolution de température maximale dans l'aluminium en fonction de la variation d'épaisseur de la silice.

Dans le domaine de variation choisi, les températures calculées pour différents accroissements d'épaisseur décrivent une sinusoïde caractéristique des variations de l'onde électromagnétique. Le maximum de cette sinusoïde est atteint pour un accroissement d'épaisseur de 266 nm ($\lambda/4$) et le minimum correspond à un accroissement d'épaisseur de 532 nm ($\lambda/2$). Sur cette variation d'épaisseur de seulement 266 nm ($\lambda/4$), la température maximale de l'aluminium varie de 5000 K à 1900 K.

Les températures de fusion et de vaporisation de l'aluminium sont respectivement 933 K et 2720 K à 1 bar⁸¹. Par conséquent, l'aluminium peut être partiellement vaporisé ou simplement liquéfié en fonction de l'épaisseur réelle de la silice. Les simulations montrent que la température maximale de l'aluminium est atteinte sur les couches proches de l'interface de la silice. Ainsi pour une fluence de 8 J/cm², la particule peut être éliminée (interface vaporisée) ou non (interface liquéfiée) en fonction de l'épaisseur du substrat. Pour expliquer cette variation, il faut considérer une onde électromagnétique dans un matériau délimité par deux lames planes parallèles dont une est transparente et l'autre est réfléchissante et absorbante. Le laser entre dans le matériau par la lame transparente. L'énergie absorbée par la lame réfléchissante dépend de la distance parcourue par l'onde dans le matériau et surtout de cette distance par rapport à la période de cette onde soit la longueur d'onde.

Comme nous ne pouvons pas évaluer l'épaisseur de nos substrats à 0,1 μm près, pour minimiser l'erreur induite sur le comportement de l'aluminium, nous considérons pour la suite de nos calculs un accroissement d'épaisseur de 355 nm, (carré rouge sur la figure III-44). Cette valeur correspond à une température moyenne de l'aluminium de (3550 ± 1650) K, pour notre exemple à 8 J/cm².

Pour certaines fluences d'irradiation, une variation de l'épaisseur du substrat de silice inférieure au micromètre peut considérablement influencer sur le comportement de la particule. Nous avons donc déterminé une épaisseur moyenne pour étudier l'influence d'autres paramètres.

⁸¹ D. Bäuerle. Laser Processing and Chemistry, Ed. Springer, Berlin, (1996).

5.2 Comportement des différents métaux

Grâce aux études précédentes, nous avons montré la présence de nombreux métaux dans la LIL. Nous avons choisi d'étudier les trois particules métalliques les plus représentatives : aluminium, fer et cuivre. Dans nos simulations réalisées avec le code ESTHER, ils sont représentés par un empilement de 50 mailles en contact avec la silice. Une maille représente une fine « tranche de matière » de masse constante. Les 50 mailles forment la couche d'1 μm d'épaisseur. Chaque maille est repérée par sa position par rapport à la surface de la silice en contact avec le métal qui correspond donc à la surface de référence. L'ensemble silice/métal est irradié en « face arrière », à une longueur d'onde de 1064 nm, et à une durée d'impulsion de 6,5 ns (cf. figure III-43). La fluence d'irradiation est fixée à 4 J/cm². La figure III-45 représente l'évolution de la température atteinte dans l'aluminium, le fer et le cuivre. Pour chacun des métaux, nous avons représenté la température de la maille située à l'interface avec la silice (épaisseur 0 nm, en tiretés), au milieu de la couche métallique (épaisseur de 50 nm, pointillés) et à l'interface avec l'air (épaisseur 1000 nm, trait plein). Un délai de 12 nanosecondes après le début de l'impulsion laser est suffisant pour mettre en évidence les fortes différences observées entre les trois métaux. L'impulsion gaussienne normalisée est également représentée (trait fin noir).

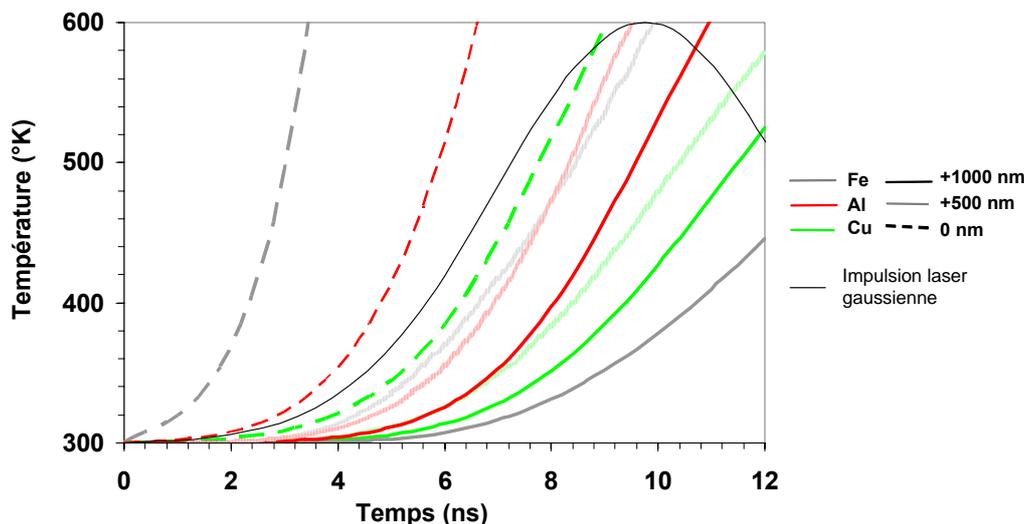


Figure III-45 : Evolution de la température dans une particule d'aluminium, de cuivre et de fer d'épaisseur 1 μm , irradiées à 1064 nm, 6,5 ns, 4 J/cm².

Pour chaque métal, les températures calculées augmentent avec l'intensité de l'impulsion laser qui atteint son maximum à 10 ns. Comme l'irradiation s'effectue en « face arrière », la température décroît de l'interface avec la silice (tireté) vers l'interface avec l'air (trait plein). De grandes variations de température apparaissent dans un même métal aux différentes épaisseurs. Par exemple, dans le cas de l'aluminium, 6,5 ns après le début de l'impulsion laser, la maille à 0 nm atteint une température de 530 K, tandis que celles situées à 500 nm et à 1000 nm sont respectivement à 350 K et 320 K. De grandes variations apparaissent également entre les métaux. C'est dans le fer que la température augmente le plus rapidement : elle excède 600 K, 3,5 ns après le début de l'impulsion laser.

L'augmentation de la température dans le métal est liée à l'absorption de l'énergie laser qui est proportionnelle à $1-R$, R étant la réflectivité du métal. Plus un métal est réfléchissant, moins il sera absorbant et par conséquent moins sa température sera élevée. La réflectivité des trois métaux considérés est 0,66 pour le fer, 0,95 pour l'aluminium, et 0,97 pour le cuivre. C'est pourquoi le fer est plus chauffé que l'aluminium et que le cuivre.

La conductivité thermique qui est de $0,56 \text{ W.cm}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour le fer, $2,4 \text{ W.cm}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour l'aluminium et $3,9 \text{ W.cm}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour le cuivre est un paramètre important pour expliquer le gradient de température dans la couche mince. Une conductivité thermique élevée, dans le cuivre par exemple, permet de diffuser rapidement la chaleur et donc de rendre la couche de métal rapidement homogène. Par contre lorsque la conductivité thermique est faible, comme dans le cas du fer, l'homogénéisation en température est plus longue. C'est pourquoi nous observons un gradient élevé de température dans ce métal.

A chaque pas temporel de notre calcul, nous avons moyenné les températures atteintes dans toutes les mailles afin d'obtenir une température moyenne dans l'ensemble de l'épaisseur ($1 \mu\text{m}$) de la couche de fer, d'aluminium ou de cuivre. Nous avons ensuite relevé la valeur maximale de cette température moyenne. Dans tous les cas, elle est obtenue 2 ou 3 ns après que l'impulsion ait atteint son maximum d'intensité. Nous les comparons dans le tableau III-5 aux températures de fusion et de vaporisation à 1 bar de chacun des métaux⁸¹.

	Aluminium	Cuivre	Fer
Température de Fusion (K)	933	1357	1808
de Vaporisation (K)	2720	2840	3023
Maximum de la température moyenne du métal (K)	1080	730	5550

Tableau III-5 : Températures caractéristiques du fer, du cuivre et de l'aluminium et la température maximale atteinte sous irradiation laser.

Pour l'aluminium, une température de 1080 K se situe entre sa température de fusion et de vaporisation. Pour le cuivre, 730 K est très inférieure à sa température de fusion. Enfin pour le fer, la température de 5550 K est très supérieure à sa température de vaporisation. Nous observons donc que pour une irradiation laser identique, trois métaux ont un comportement différents ; l'aluminium est liquéfié, le cuivre reste solide et le fer est vaporisé.

Une irradiation à 4 J/cm^2 , à la longueur d'onde de 1064 nm et une durée d'impulsion de 6,5 ns se situe à une énergie moyenne d'utilisation de la LIL ($\leq 15 \text{ J/cm}^2$, 3 ns). A ce niveau d'énergie, l'aluminium qui est un des polluants métalliques les plus présents dans la LIL est liquéfié.

Nous avons montré que le comportement sous flux laser d'une particule métallique est fortement dépendant des caractéristiques telles que la conductivité thermique ou la réflectivité. Parmi les métaux principalement présents dans la LIL, l'aluminium semble être le métal le plus approprié pour notre étude.

5.3. *Prise en compte de l'interface aluminium/silice*

D'après les précédentes simulations, l'aluminium est fondu à 4 J/cm^2 . Or d'après les résultats expérimentaux et pour des paramètres d'irradiation identiques, l'aluminium est vaporisé. Afin de mieux corréler les calculs aux expériences, il est nécessaire de considérer plus précisément l'interface aluminium/silice.

Dans le code ESTHER, nous simulons un substrat de silice en contact avec la couche d'aluminium. Or l'aluminium est d'un côté en contact avec la silice et de l'autre avec l'air. La présence d'oxygène permet donc la formation d'une fine couche d'oxyde d'aluminium des deux côtés. Comme l'interaction laser se déroule en « face arrière », c'est la présence d'oxyde d'aluminium à l'interface silice/aluminium qui nous intéresse. La couche d'oxyde

d'aluminium formée au contact de l'air a une épaisseur de l'ordre de 2 nm⁸². Nous réalisons donc des calculs en faisant varier l'épaisseur d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) de 1 à 10 nm. La fluence d'irradiation est fixée à 4 J/cm². La figure III-46 représente l'évolution temporelle de la première maille d'aluminium située à l'interface oxyde/aluminium (de 0 à 10 nm) et la dernière située à l'interface avec l'air (à 1000 nm). Les différentes épaisseurs d'oxyde d'aluminium sont représentées par des couleurs différentes. La forme temporelle de l'impulsion laser est également représentée (trait noir fin).

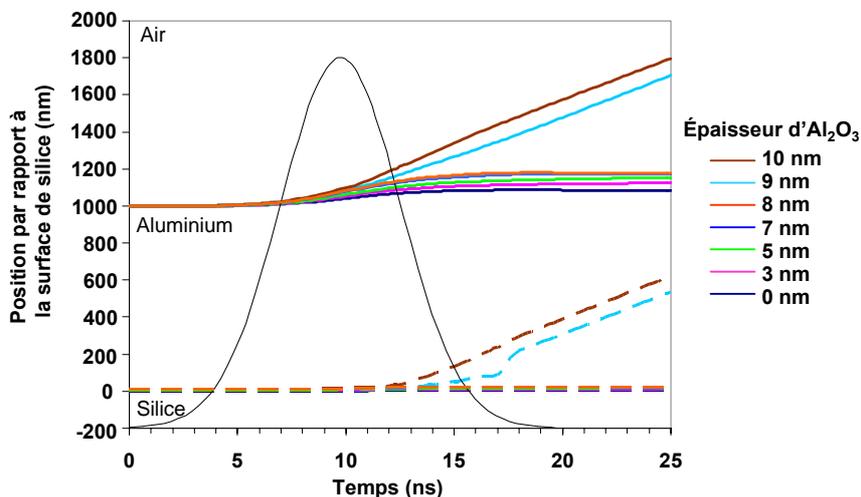


Figure III-46 : Evolution de la position des mailles d'aluminium en fonction de l'épaisseur de la couche d'alumine (4 J/cm², 1064 nm, 6,5 ns).

Pour une épaisseur d'oxyde comprise entre 0 et 8 nm, la variation de position de la première maille d'aluminium (traits pointillés) est imperceptible. Cependant le chauffage de la couche d'aluminium crée une dilatation nettement observable sur la maille externe de la couche (trait plein).

Pour une épaisseur supérieure à 8 nm, la première maille d'aluminium (traits pointillés) s'écarte d'une distance importante de l'interface qui signifie que l'aluminium est vaporisé. L'élimination des premières mailles se répercute sur la couche supérieure comme le confirme l'évolution de la dernière maille des cas à 9 et 10 nm d'oxyde (trait plein).

Nous observons également que plus la couche d'oxyde est épaisse, plus la dilatation de l'aluminium sous le rayonnement laser est importante. Au-delà d'une certaine épaisseur, la couche métallique est éliminée. Pour que les simulations numériques soient en accord avec les résultats expérimentaux, dans le cas d'une particule d'aluminium de 1 μm d'épaisseur, il est nécessaire de prendre en compte la présence d'une couche d'oxyde de 8 nm. Pour la suite de nos calculs, nous utiliserons cette épaisseur.

Nous avons montré que la présence d'une couche d'oxyde d'aluminium à l'interface entre la particule d'aluminium et le substrat de silice abaisse la fluence nécessaire pour chauffer le métal. Par comparaison entre les simulations et les résultats expérimentaux, nous avons fixé l'épaisseur de cette couche d'oxyde d'aluminium à 8 nm.

⁸² T. Buffeteau, B. Desbat, J.M. Turllet. Polarization modulation FT-IR spectroscopy of surfaces and ultra-thin films : experimental procedure and quantitative analysis, Appl. Spect. **45**, 380 (1991).

5.4. Effet de la fluence

Nous considérons un substrat de silice sur lequel une couche de 8 nm d'oxyde d'aluminium sert d'interface avec une couche de 992 nm d'aluminium. La comparaison entre les résultats expérimentaux et la théorie, à différentes fluences, va permettre de préciser l'interaction du rayonnement laser avec une particule déposée sur un substrat. Dans la même configuration que précédemment, une impulsion laser de forme gaussienne irradie l'ensemble à une longueur d'onde de 1064 nm, et une durée d'impulsion de 6,5 ns. Elle passe par la silice puis l'oxyde d'aluminium et enfin par l'aluminium. Chacun des matériaux est simulé par un empilement de mailles. Pour exploiter ces calculs, nous définissons chacune d'entre elles en fonction de leur distance par rapport à la surface de silice, qui est prise comme référence. Les simulations sont réalisées à des fluences variant de 1 à 35 J/cm². Pour chaque fluence, nous analysons l'évolution de la température, de la masse volumique et de la position des mailles. L'évolution de la température permet de connaître l'état thermique des matériaux (solide/liquide/vapeur). Celle de la masse volumique traduit un effet de densification et/ou de dilatation des matériaux. Enfin, la position des mailles permet de visualiser le comportement de l'aluminium et de la silice.

La figure III-47 représente les résultats obtenus à 1 J/cm². Afin de rendre lisible les graphiques, seulement trois mailles de l'aluminium (en rouge) et trois autres de la silice (en bleu) sont représentées. Pour l'aluminium, il s'agit de la maille la plus proche de l'interface avec la silice (8 nm ; tirets), la maille centrale de la couche (500 nm ; pointillés) et la maille de l'interface avec l'air (1000 nm ; trait plein). Dans le cas de la silice, la maille de l'interface avec l'oxyde d'aluminium (0 nm ; tirets) ainsi que les symétriques de l'aluminium (-500 nm ; pointillés et -1000 nm ; trait plein) sont représentées. Enfin l'impulsion laser est également indiquée sur le graphique (a).

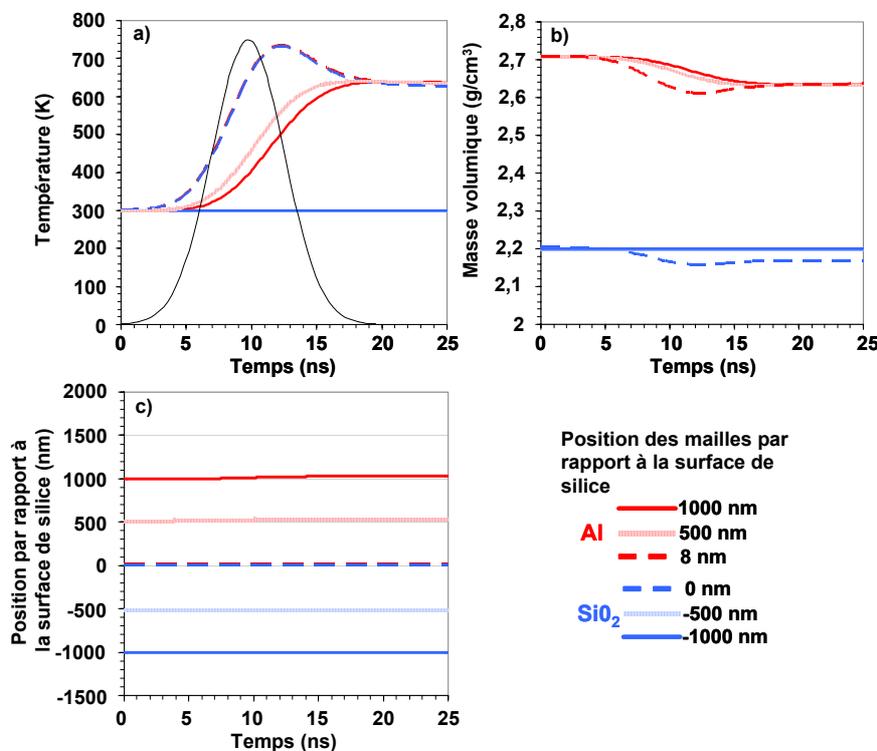


Figure III-47 : Evolution de la température (a), de la masse volumique (b), et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice (c) pendant une irradiation laser à 1 J/cm² ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

Le graphique (a) montre que les deux mailles proches de la surface de référence (0 nm) ont la même évolution. Elles atteignent la température maximale de 750 K. Dès que

l'impulsion laser est terminée, la température devient homogène dans la couche métallique autour de 650 K. Dans la silice, pour les mailles plus éloignées de la surface de référence, aucune augmentation de température n'est observée.

Le graphique (b) montre que la masse volumique de l'aluminium et de la silice varie peu ; elle suit les variations de température. La faible dilatation du métal est observable sur le graphique (c). Elle atteint environ 20 nm à la fin de l'impulsion laser.

A 1 J/cm², la température atteinte dans l'aluminium n'est pas assez élevée pour provoquer sa fusion et une faible dilatation s'opère. La silice n'est quasiment pas affectée.

Les résultats obtenus à une fluence plus importante de 3 J/cm² sont représentés sur la figure III-48. Chacun des graphiques représente les paramètres identiques à ceux définis pour 1 J/cm² (cf. figure III-47).

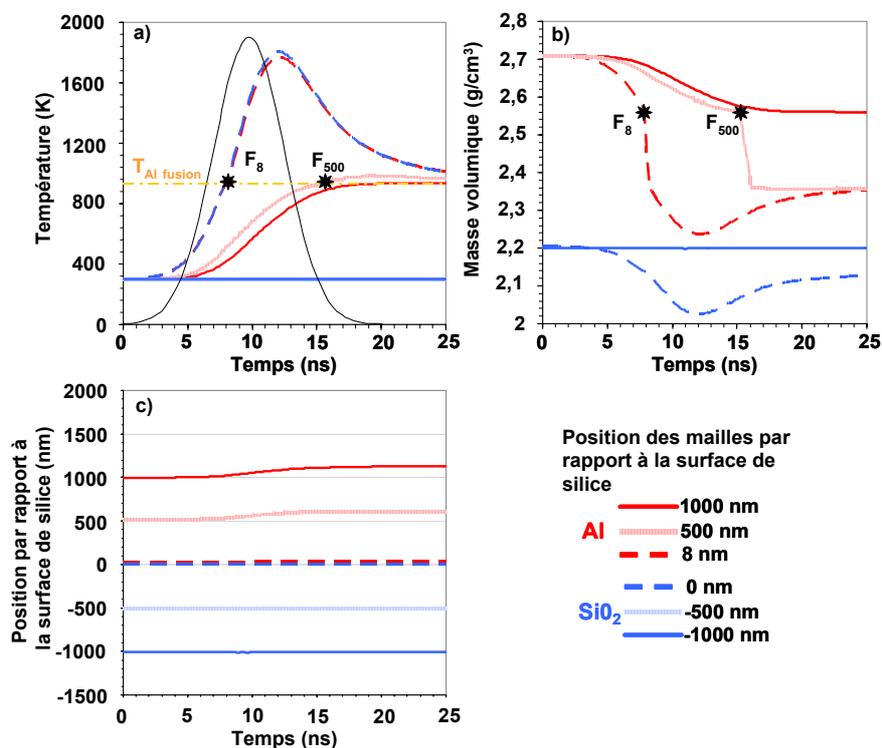


Figure III-48 : Evolution de la température, de la masse volumique, et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice pendant une irradiation laser à 3 J/cm² ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

Le graphique (a) montre que les mailles proches de la surface de référence dans l'aluminium comme dans la silice ont la même évolution et atteignent une température maximale de 1800 K. Dans la couche d'aluminium, après un délai de quelques nanosecondes seulement après la fin de l'impulsion laser, la température devient homogène autour de 1000 K, qui est légèrement au dessus de la température de fusion. L'aluminium semble donc entièrement liquéfié. Malgré une température en surface de 1800 K, la silice ne présente aucune augmentation de température à une profondeur de 500 nm.

Les annotations F₈ et F₅₀₀ indiquent la transition entre l'état solide et l'état liquide de l'aluminium pour les mailles à 8 et à 500 nm respectivement. Elles correspondent sur le graphique (b) à une diminution brutale de la masse volumique. La maille externe, plus éloignée du point chaud qui se situe près de l'interface avec la silice, ne subit pas cette variation rapide. Ceci signifie que la couche d'aluminium n'est pas liquéfiée dans sa totalité.

Cette liquéfaction même partielle provoque une augmentation de volume de la couche d'aluminium d'environ 150 nm comme le montre la maille externe sur le graphique (c). Dans

la silice, malgré une diminution de près de 10 % de la masse volumique au niveau de la maille de surface (graphique b), aucune dilatation sensible n'est observée (graphique c).

A 3 J/cm², la température atteinte dans l'aluminium provoque la liquéfaction partielle de la couche et une augmentation de volume. La silice n'est que faiblement affectée.

Pour poursuivre cette étude, nous augmentons à nouveau la fluence du laser. Les résultats de simulations obtenus à une fluence de 5 J/cm² sont représentés sur la figure III-49. Pour les graphiques (a), (b), et (c), les paramètres sont les mêmes que ceux définis à 1 J/cm² (cf. figure III-47). Le graphique (d) supplémentaire est un agrandissement de (c). Il est représenté pour mieux visualiser l'interface aluminium/oxyde d'aluminium/silice. Dans ce but, une maille d'oxyde d'aluminium à 3 nm a été ajoutée.

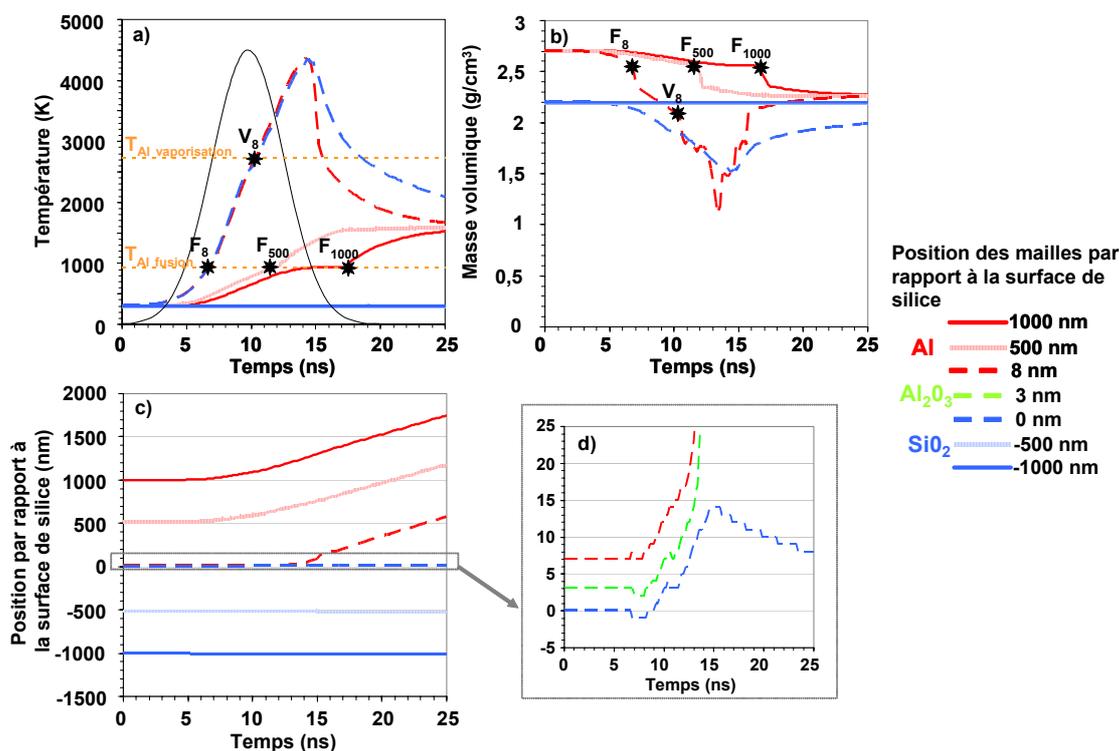


Figure III-49 : Evolution de la température, de la masse volumique, et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice pendant une irradiation laser à 5 J/cm² (λ=1064 nm et τ=6,5 ns).

Le graphique (a) montre que les mailles proches de la surface de référence, dans l'aluminium comme dans la silice, atteignent une température de 4500 K. Avant d'atteindre cette température, la maille d'aluminium subit deux changements d'état successifs : de solide à liquide noté F₈ et de liquide à vapeur noté V₈. Les mailles centrale (500 nm) et externe (1000 nm) sont liquéfiées plus tardivement. Leur changement d'état est noté F₅₀₀ et F₁₀₀₀ respectivement. L'énergie fournie par l'impulsion laser n'est donc plus suffisante pour qu'elles se vaporisent. Mais finalement, lorsque l'impulsion laser est terminée, même la maille proche de la silice (8 nm) redevient liquide à une température de 1600 K homogène dans l'ensemble de la couche métallique. Dans la silice, la maille de surface suit l'augmentation de température de l'aluminium mais se refroidit plus lentement que le métal dont la chaleur diffuse vers les couches supérieures (meilleure conductivité thermique). Malgré une température de 4500 K en surface, la silice ne présente aucun échauffement à une profondeur de 500 nm.

Sur le graphique (b), les deux mailles proches de la surface de référence ont une évolution très différente. Dans le cas de l'aluminium, des variations brutales apparaissent à chaque

changement d'état (F_8 et V_8). Par contre, la silice évolue suivant la même tendance que sa température. Comme le montre le graphique (c), cela se traduit par une expansion de l'aluminium proche de la surface de silice et de l'ensemble de la couche liquéfiée avec une vitesse de l'ordre de 50 m/s. Pour observer l'impact de cette éjection sur la silice, il est nécessaire de faire un agrandissement au niveau de l'interface.

Le graphique (d) montre que la fine couche d'oxyde d'aluminium est vaporisée comme les premières mailles d'aluminium. Dans la silice, la maille de surface, dont la température est supérieure à la température de fusion (4000 K), se dilate à partir de 9 ns, puis se re-densifie vers 15 ns. Cette inversion de tendance semble corrélée avec la vaporisation de l'oxyde d'aluminium qui intervient légèrement plus tard (12 à 15 ns) que celle de l'aluminium (11 ns). Ces simulations, bien que monodimensionnelles, laissent supposer qu'autour d'une particule d'aluminium, la silice ne serait pas comprimée par la vaporisation de l'aluminium. La présence de « bourrelets » résiduels devrait être observée.

A 5 J/cm², la température atteinte dans la couche d'aluminium permet de la liquéfier et de l'éjecter. La silice est superficiellement chauffée et se refroidit.

Malgré l'élimination de la particule à une fluence de 5 J/cm², nous étudions une fluence plus élevée pour évaluer le comportement du substrat de silice. Les résultats de simulations à 10 J/cm² sont représentés sur la figure III-50. Pour chaque graphique, les paramètres sont les mêmes que ceux définis à 1 J/cm² (cf. figure III-47).

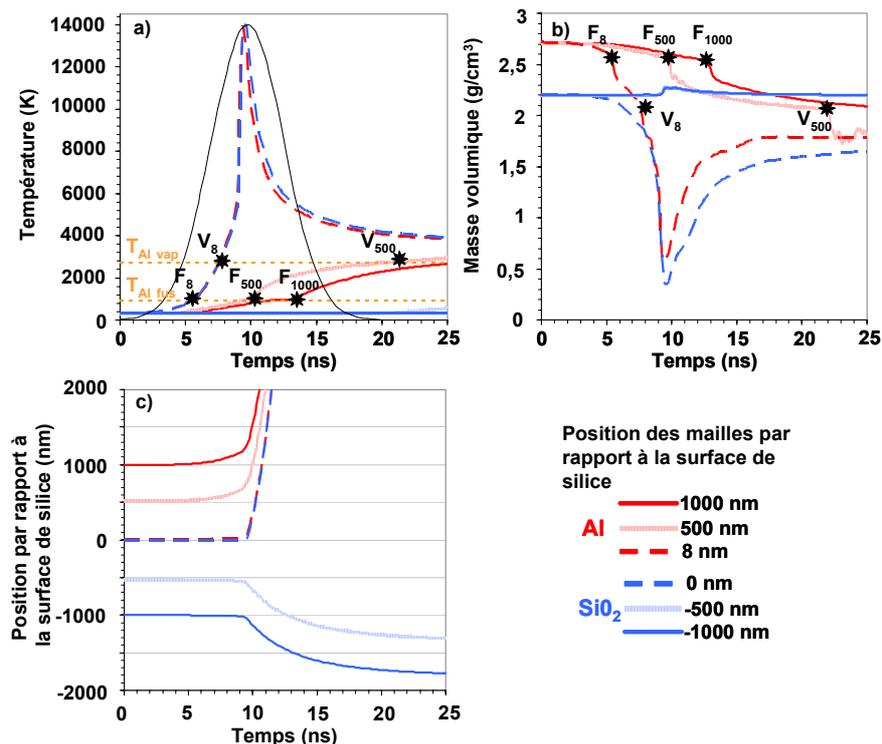


Figure III-50 : Evolution de la température, de la masse volumique, et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice pendant une irradiation laser à 10 J/cm² ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns).

Le graphique (a) montre que les mailles proches de la surface de référence, dans l'aluminium et dans la silice, atteignent une température de 13500 K lorsque l'intensité de l'impulsion laser est maximale. Avant d'atteindre cette température, la maille d'aluminium subit deux changements d'état (notés F_8 et V_8). Comme pour les fluences inférieures, la température de la couche d'aluminium devient homogène quelques nanosecondes après la fin de l'impulsion laser. Dans ce cas, la vaporisation est obtenue sur la quasi-totalité de la couche

métallique. En effet, la maille située à 500 nm de la surface de référence atteint la température de vaporisation à la fin de l'impulsion laser (V_{500}) mais la maille à l'interface de l'aluminium avec l'air (1000 nm) ne se vaporise pas.

Le graphique (b) montre explicitement que la maille externe de l'aluminium (1000 nm) n'est pas vaporisée contrairement à la maille centrale (V_{500}). Les deux mailles proches de la surface de référence (dans la silice et dans l'aluminium) ont une évolution semblable : leur masse volumique diminue de façon très importante à la vaporisation (V_8) peu de temps avant que l'énergie de l'impulsion laser soit maximale. Seulement 1 ns après, les mailles de silice situées aux profondeurs de -500 et -1000 nm sont légèrement densifiées puis recouvrent leur état initial. Ceci traduit le passage d'une onde de choc créée par l'éjection brutale de l'aluminium. Le graphique (c) montre, en effet, la vaporisation de la totalité de la couche métallique avec une vitesse de 750 m/s et un déplacement de la silice non ablatée de 800 nm induit par l'onde de choc. Celle-ci retrouve son état initial lors de la détente du substrat (un calcul beaucoup plus long serait nécessaire).

Pour mesurer, la profondeur de silice ablatée, il est nécessaire de tracer plusieurs mailles intermédiaires entre la surface qui est vaporisée et la profondeur de 500 nm qui est très peu chauffée. La figure III-51(a) représente l'évolution dans le temps de la position des mailles de silice, uniquement. Pour faciliter l'analyse, un nombre plus important de mailles est tracé. Chacune correspond à une profondeur déterminée à l'instant 0 par rapport à la surface de la silice. Les mailles vaporisées sont en pointillés. Une représentation similaire pour une irradiation à 20 J/cm^2 est donnée sur la figure III-51(b).

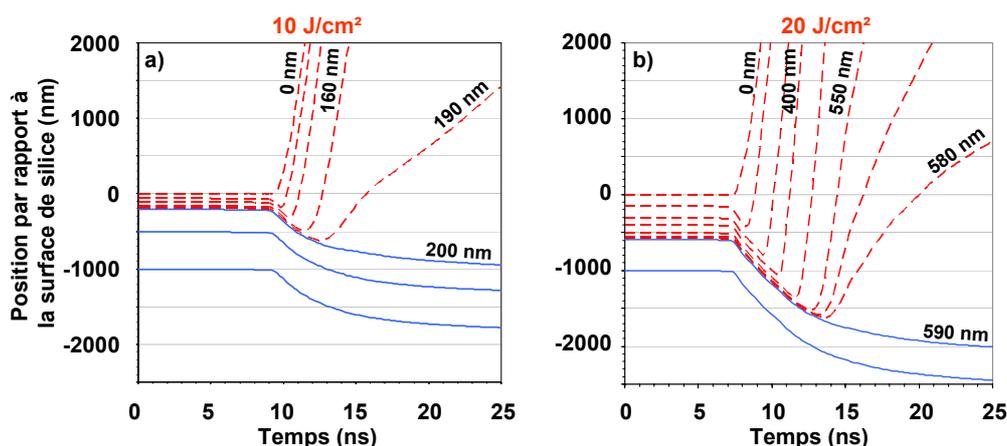


Figure III-51 : Evolution de la position de la silice pendant une irradiation laser à 10 (a) et 20 J/cm^2 (b) ($\lambda=1064 \text{ nm}$ et $\tau=6,5 \text{ ns}$).

Le cas à 10 J/cm^2 (III-51.a) montre qu'une épaisseur de 190 nm de silice est vaporisée. Les couches suivantes sont liquéfiées et restent en surface. En se refroidissant, elles forment un nouvel état de surface. A 20 J/cm^2 (III-51.b), les mêmes phénomènes se déroulent. L'énergie étant plus importante, la profondeur de silice ablatée est également plus importante : 580 nm.

A partir d'une fluence de 10 J/cm^2 , la couche d'aluminium est violemment vaporisée. Une épaisseur de quelques centaines de nanomètres de silice est également vaporisée. Cette profondeur ablatée croît avec la fluence du rayonnement laser.

Grâce à la simulation numérique, nous avons précisé l'effet de la fluence dans l'interaction du rayonnement laser à une longueur d'onde de 1064 nm, et pour une durée d'impulsion de 6,5 ns avec une particule d'aluminium déposée en face arrière d'un substrat de silice. A 1 J/cm^2 , la particule se dilate légèrement et reste solide. A

3 J/cm², l'aluminium se liquéfie entraînant une augmentation de volume de la particule. Jusqu'à cette fluence, la silice est très peu affectée. A 5 J/cm², la particule d'aluminium est éjectée sous forme liquide et la silice se liquéfie au niveau de l'interface avec l'aluminium. A des fluences supérieures ou égales à 10 J/cm², l'aluminium est violemment vaporisé et une profondeur de silice de quelques centaines de nanomètres est ablatée. A l'emplacement de la particule initiale, une épaisseur de silice de quelques dizaines de nanomètres est fondue puis re solidifiée. Nous avons observé que indépendamment de la fluence, le gradient de température est plus fort dans la silice que dans l'aluminium. Ceci s'explique par une meilleure conductivité thermique pour l'aluminium (2,4 W.cm⁻¹.K⁻¹) que pour la silice (1,4. 10⁻² W.cm⁻¹.K⁻¹).

Nous avons évalué par simulation numérique le comportement de l'aluminium et celui de la silice sous un rayonnement laser de longueur d'onde 1064 nm et une durée d'impulsion de 6,5 ns. Pour des fluences d'irradiation supérieures ou égales à 5 J/cm², nous avons observé l'élimination de la particule métallique et la vaporisation des couches superficielles de la silice. Nous comparons les profondeurs ablatées calculées pour la silice avec celles mesurées expérimentalement (cf. figure III-24). Dans la figure III-52, nous avons relevé ces profondeurs pour chacune des fluences utilisées.

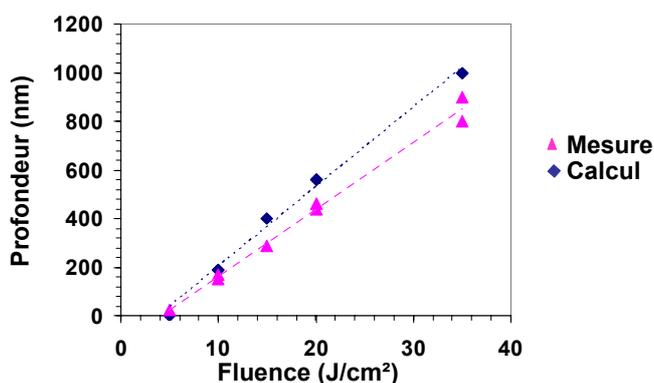


Figure III-52 : Comparaison entre les profondeurs de silice ablatée mesurées expérimentalement et calculées.

Globalement, les profondeurs mesurées expérimentalement sont proches de celles calculées. Les résultats obtenus par la simulation comme par l'expérience montrent une croissance linéaire de la profondeur de silice ablatée en fonction de la fluence d'irradiation. Cependant la pente des courbes d'ajustement est légèrement différente. Cette différence pourrait provenir, entre autres, d'une connaissance imparfaite de certains paramètres de la silice à très haute température qui sont utilisés dans la simulation.

La bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et les calculs valide l'utilisation du code ESTHER dans le cadre des études de polluant métallique au contact d'un substrat de silice sous rayonnement laser.

5.5. Effet de la taille de la particule

Expérimentalement, nous avons étudié l'influence de la forme et la dimension latérale d'une particule d'aluminium sur son comportement sous le flux laser. Nous utilisons le code ESTHER pour évaluer l'influence de l'épaisseur de la particule à une fluence d'irradiation fixée. Nous présentons les résultats obtenus avec un faisceau laser à une longueur d'onde de

1064 nm, une durée d'impulsion de 6,5 ns et une fluence de 3 J/cm². Les simulations considèrent une lame de silice en contact avec une fine couche d'oxyde d'aluminium de 8 nm d'épaisseur qui sert d'interface avec une couche d'aluminium d'épaisseur variable. La couche métallique est placée en « face arrière ». La figure III-53 montre l'évolution de l'aluminium et de la silice en fonction du temps pour les différentes épaisseurs d'aluminium choisies. Chaque graphique représente la position de trois mailles d'aluminium (en rouge) qui sont respectivement situées à l'interface avec l'oxyde d'aluminium (en tirets), au milieu de la couche (en pointillés) et à l'interface de l'aluminium avec l'air (en trait plein), et trois mailles de silice (en bleu) à 0 (tirets), -500 (pointillés) et -1000 nm de la surface (trait plein). Les quatre épaisseurs d'aluminium retenues sont : 0,1, 0,2, 0,5, et 1 µm.

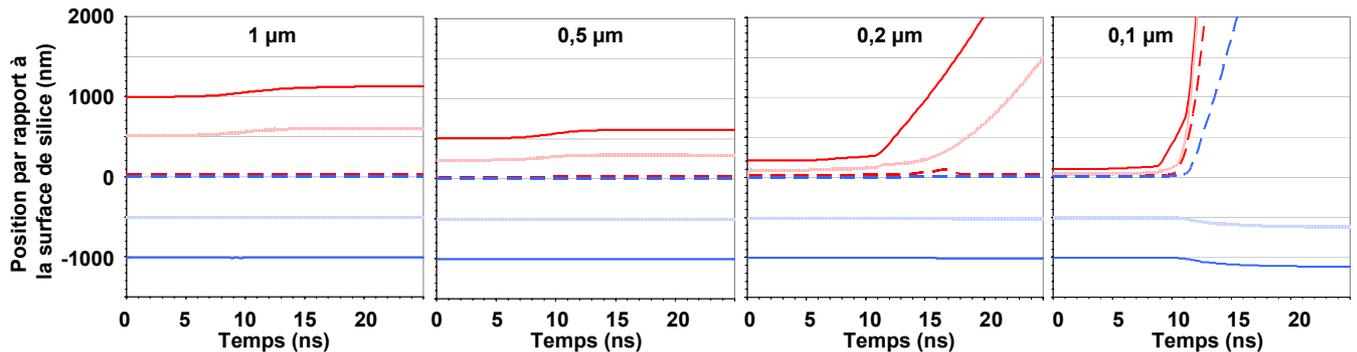


Figure III-53 : Evolution de la position des mailles d'aluminium et de silice dans le temps pendant et après une irradiation laser à 3 J/cm² ($\lambda=1064$ nm et $\tau=6,5$ ns) pour différentes épaisseurs d'aluminium.

Après une irradiation à 3 J/cm², nous avons vu précédemment que la particule de 1 µm d'épaisseur est toujours présente. Elle est liquéfiée, ce qui provoque une augmentation de volume significative (15 %). La particule de 0,5 µm d'épaisseur montre un comportement identique mais avec une augmentation de volume plus importante (25 %). Par contre, la particule de 0,2 µm d'épaisseur est en partie vaporisée. Mais cette fluence n'est pas suffisante pour complètement éliminer la particule : une faible épaisseur de l'ordre de 30 nm (non représenté sur le graphique) reste sur la surface de silice. La particule plus fine de 0,1 µm d'épaisseur est complètement vaporisée. Dans ce cas, une couche de silice de moins de 5 nm est également vaporisée.

Les différences observées entre les quatre épaisseurs d'aluminium montrent qu'une particule est éliminée d'autant plus facilement que son épaisseur est faible. Sur notre exemple, à une fluence de 3 J/cm², la particule d'aluminium de 0,1 µm est vaporisée tandis qu'une particule de 0,5 µm ne l'est pas. Notons qu'à cette fluence, une particule d'aluminium d'une épaisseur de 0,1 µm se comporte de la même manière qu'une particule de 1 µm d'épaisseur à une fluence comprise entre 5 et 10 J/cm².

De manière générale, pour un ensemble de paramètres fixés, la diminution de l'épaisseur d'une particule d'aluminium permet de diminuer la fluence nécessaire pour la vaporiser totalement. Dans tous les cas, cette élimination par vaporisation du métal s'accompagne d'une ablation superficielle de la silice.

5.6. Conclusion

Nous avons utilisé la simulation numérique avec le code monodimensionnel ESTHER pour compléter l'étude d'un substrat de silice dont la « face arrière » est polluée par une

particule d'aluminium d'1 μm d'épaisseur sous un rayonnement laser de longueur d'onde 1064 nm, et de durée d'impulsion 6,5 ns.

Nous avons montré que le comportement de la particule métallique est fortement dépendant :

- de l'épaisseur du substrat de silice : une variation inférieure au micromètre peut modifier la température du métal d'un facteur deux.
- des caractéristiques du métal : la conductivité thermique et la réflectivité influence fortement sur la fluence nécessaire pour observer un changement d'état.
- de la couche d'oxyde entre l'aluminium et la silice : la fluence nécessaire pour chauffer le métal est abaissée.
- de la fluence du rayonnement laser : une particule de 1 μm d'épaisseur irradiée à 1 J/cm^2 est légèrement dilatée mais reste solide. A 3 J/cm^2 , elle se liquéfie entraînant une augmentation de volume. A 5 J/cm^2 , elle est éjectée sous forme liquide. A des fluences supérieures ou égales à 10 J/cm^2 , elle est violemment vaporisée.
- de l'épaisseur de la particule: la vaporisation totale du métal a lieu à une fluence d'autant plus faible que la couche est mince.

Le comportement du substrat de silice est fortement dépendant de la fluence :

- $< 5 \text{ J}/\text{cm}^2$: tant que la particule n'est pas complètement éliminée, la silice est peu affectée.
- $\approx 5 \text{ J}/\text{cm}^2$: la silice est superficiellement chauffée et se refroidit.
- $\geq 10 \text{ J}/\text{cm}^2$: quelques centaines de nanomètres de silice sont ablatés et quelques dizaines de nanomètres fondus puis re solidifiés créant ainsi un nouvel état de surface.

L'utilisation du code ESTHER nous a permis d'interpréter le comportement de polluants métalliques au contact d'un substrat de silice sous rayonnement laser. La bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et les simulations valide l'utilisation du code pour ce type d'application.

6. Comparaison de l'effet d'irradiation sur des particules déposées par sédimentation et sur des particules «modèles»

Après irradiation des substrats de silice pollués dans la LIL, quelques modifications de surface ont été observées. Celles-ci apparaissent généralement sous forme de taches claires sur les clichés microscopiques (cf. figure III-19). Ces empreintes situées au niveau de la particule initiale sont souvent entourées d'une auréole plus ou moins observable. Dans cette partie, nous utilisons nos travaux réalisés sur des particules « modèles » pour comprendre la nature de cette modification de surface. L'évolution sous une succession d'irradiations de ce type d'endommagement potentiel est ensuite étudiée.

6.1. Modification du substrat à l'emplacement initial de la particule

Dans notre étude sur les particules d'aluminium « modèles » irradiées en « face arrière », nous avons observé expérimentalement que, pour une fluence supérieure ou égale à 5 J/cm^2 , la

particule est éliminée en laissant une marque sur le substrat de silice. Pour une fluence de 22 J/cm^2 , les clichés microscopiques présentés sur la figure III-54 font apparaître une forte ressemblance entre un polluant de la LIL et une particule « modèle ».

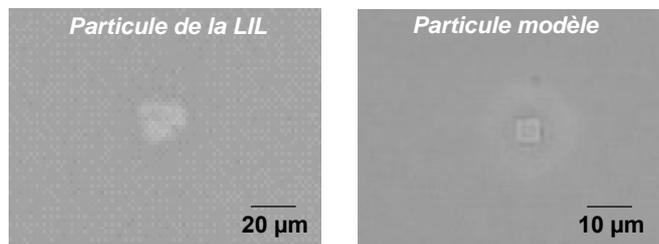


Figure III-54 : Observations des particules de la LIL et « modèle » irradiée à $\lambda=1064 \text{ nm}$ et $\tau=6,5 \text{ ns}$.

Grâce aux simulations numériques, nous avons montré qu'à ces fortes fluences, l'élimination de la particule s'effectuait par vaporisation en provoquant l'ablation de la silice. La profondeur de silice ablatée augmente avec la fluence. Nous concluons qu'une particule métallique déposée en « face arrière » sur un composant optique de la LIL peut laisser une empreinte par ablation de la surface de silice.

Une autre étude fait apparaître un comportement très différent de l'ensemble particule métallique et substrat⁸³. Il s'agit de particules de chrome de forme carrée, et de dimensions $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 0,1 \mu\text{m}$ créées par photolithographie sur un substrat de silice super polie. La face polluée est positionnée verticalement, sur le banc laser ELAN⁸⁴, en « face avant » par rapport au faisceau laser incident comme illustré sur la figure III-55.

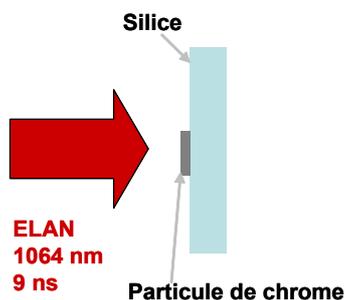


Figure III-55 : Schéma d'irradiation des particules de chrome.

Chaque particule est soumise à une impulsion laser avec une longueur d'onde de 1064 nm et une durée d'impulsion de 9 ns et une fluence déterminée. Une observation au microscope optique est réalisée avant et après les irradiations. Les clichés obtenus à $0,2$, 1 , 3 et 10 J/cm^2 sont représentés sur la figure III-56.

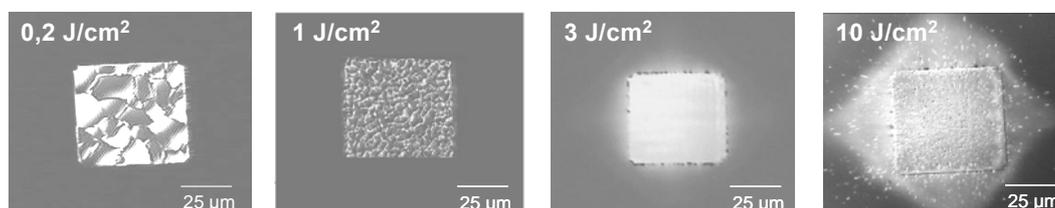


Figure III-56 : Particules de chrome irradiées ($\lambda=1064 \text{ nm}$ et $\tau=9 \text{ ns}$) et observées au microscope optique en mode Nomarski.

⁸³ S. Palmier, I. Tovena, R. Courchinoux, M. Josse, JL. Rullier, B. Bertussi, JY. Natoli, L. Servant, D. Talaga. Laser damage to optical components induced by surface chromium particles", Proc. of SPIE **5647**, 156 (2004).

⁸⁴ R. Courchinoux, G. Razé, C. Sudre, M. Josse, A. Boscheron, C. Lepage, E. Mazataud, E. Bordenave, L. Lamaignère, M. Loiseau, T. Donval, H. Bercegol. Laser-induced damage growth with small and large beams. Comparison between laboratory experiments and large-scale laser data, Proc. of SPIE **5273**, 99 (2003).

A $0,2 \text{ J/cm}^2$, la particule de chrome se craquelle. A 1 J/cm^2 , elle est fondue et prend l'aspect de gouttelettes agglomérées. A 3 J/cm^2 , le chrome semble avoir été éliminé. La silice est marquée de la forme carrée de la particule et d'un léger halo lumineux en forme de losange. Cet effet est encore plus visible à 10 J/cm^2 . La mesure AFM nous permet de préciser ces modifications de surface. Le cas à 3 J/cm^2 est présenté sur la figure III-57. Celle-ci est composée d'une topographie de la particule irradiée et d'un profil mesuré au niveau des pointillés blancs.

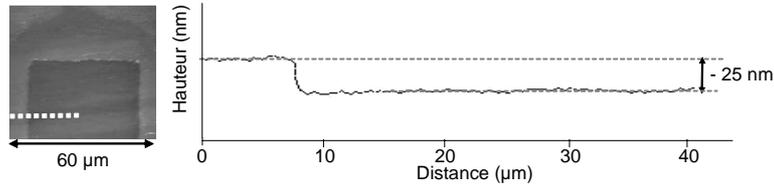


Figure III-57 : Topographie et profil d'une particule de chrome irradiée à 3 J/cm^2 ($\lambda=1064 \text{ nm}$ et $\tau=9 \text{ ns}$).

Cette mesure AFM montre d'une part, que le chrome a été évacué en totalité et, d'autre part, que l'empreinte correspond à une excavation de 25 nm à l'emplacement initial de la particule. Dans le cas à 10 J/cm^2 , une excavation de seulement 30 nm a été mesurée. Par contre, l'état de surface présente des piqûres à l'emplacement initial de la particule.

Contrairement à la plupart des métaux, le chrome possède une transition de phase fragile/ductile qui provoque l'apparition d'un écaillage, quand un certain niveau de contrainte est atteint^{85, 86}. Ceci est observé après une irradiation à $0,2 \text{ J/cm}^2$. Cet écaillage d'une particule de nature métallique, rappelle la fragmentation de particules également observée avec certains polluants de la LIL. Comme dans le cas des particules d'aluminium, nous avons utilisés le code ESTHER pour compléter notre interprétation des mesures expérimentales. La figure III-58 représente l'évolution temporelle d'un substrat de silice pollué par une couche de chrome de $0,1 \mu\text{m}$ et irradié selon les même paramètres que expérimentalement. La couche de chrome correspond aux mailles grises et les 500 nm premiers nanomètres de silice aux mailles noires. La forme temporelle de l'impulsion laser est également représentée sur le cas à $0,2 \text{ J/cm}^2$.

⁸⁵ J. Siegel, K. Ettrich, E. Welsch, E. Matthias. UV-laser of ductile and brittle metal films Appl. Phys. **64**, 213 (1997).

⁸⁶ S. K. Lee, W.S. Chang, S. J. Na. Numerical and experimental study on the thermal damage of thin Cr films induced by excimer laser irradiation, J. Appl. Phys. **86**, 4282 (1999).

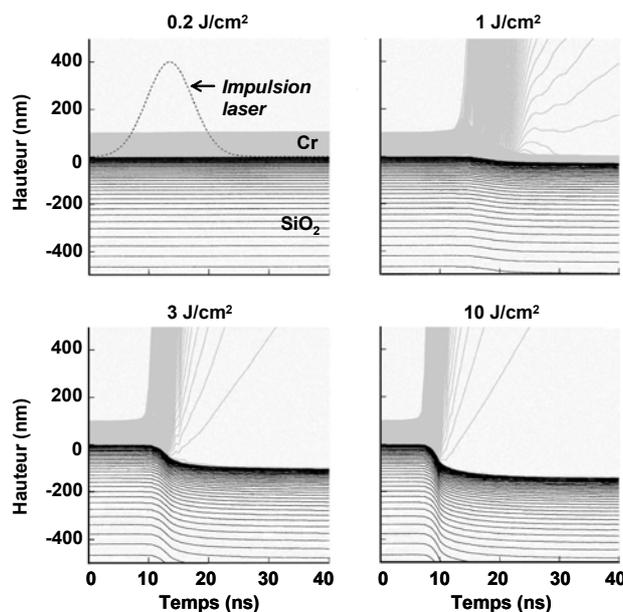


Figure III-58 : Evolution du chrome et de la silice dans le temps, pendant et après une irradiation laser ($\lambda=1064$ nm et $\tau=9$ ns).

A $0,2$ J/cm², aucun effet n'est observé sur le film de chrome dont la température atteinte n'excède pas sa température de fusion (environ 1907°C à 1 bar). A 1 J/cm², la partie externe de la couche est éjectée, alors que la partie interne ne l'est pas. L'irradiation en « face avant » chauffe d'abord la surface du chrome créant un gradient de température vers l'interface chrome/silice. Ce gradient explique la vaporisation des mailles externes et la simple liquéfaction des mailles internes. Le refroidissement de cette partie liquide génère des gouttelettes. A 3 J/cm², l'élimination du chrome est totale. Sa vaporisation rapide ne permet pas de chauffer suffisamment la silice pour la vaporiser. Par contre, l'éjection brutale de la couche métallique crée une onde de choc dans la silice. Au bout d'un temps plus long, la silice se relaxe. D'après l'excavation résiduelle observée, nous déduisons que la silice est légèrement densifiée. A 10 J/cm², la totalité du chrome est également vaporisée, mais à un temps plus court. Comme la silice ne chauffe pas suffisamment pour s'éliminer un effet similaire à 3 J/cm² est obtenu. Nous concluons qu'une particule métallique, collectée en « face avant » sur un composant optique de la LIL, peut laisser une empreinte par densification de la surface de silice.

Pour une fluence laser élevée, l'élimination d'un polluant collecté dans la LIL peut laisser une empreinte en surface du composant. Notre étude montre qu'une particule métallique « modèle » a un comportement semblable et que l'empreinte correspond à une excavation dont la forme et les dimensions latérales correspondent à la particule. Deux mécanismes semblent être possibles.

Lorsque la particule est sur la « face arrière » du composant et vaporisée par l'irradiation laser, cette excavation est formée par ablation de la silice.

Lorsque la particule est sur la « face avant » du composant et vaporisée, elle résulte d'une densification.

6.2. Modification du substrat autour de l'emplacement de la particule

L'étude des particules d'aluminium « modèles » irradiées en « face arrière », a montré que la silice présente une auréole autour de son emplacement initial. Nous avons observé qu'à une fluence proche de la vaporisation du métal, cette auréole correspond à une silice « boursouflée ». En effet, la vaporisation de l'aluminium chauffe la silice qui devient « molle » sur une surface supérieure à celle de la particule initiale et se dilate. Pour une fluence supérieure, une cuvette de forme circulaire centrée sur l'emplacement de la particule se forme. Celle-ci est formée par la vaporisation de la silice. Sa profondeur et son diamètre augmentent avec la fluence. Nous concluons qu'une particule métallique, collectée en « face arrière » sur un composant optique de la LIL, peut laisser une auréole autour de son emplacement soit par dilatation soit par ablation de la surface de silice.

Dans l'étude sur les particules de chromes ($50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 0,1 \mu\text{m}$) irradiées en « face avant » de la silice, nous observons également une auréole autour de la particule. A une fluence supérieure ou égale à 3 J/cm^2 , une forme en losange apparaît autour de la particule carrée (cf. figure III-56). Pour interpréter cette géométrie, des simulations numériques avec le code tridimensionnel HESIONE⁸⁷ ont été réalisées. Celui-ci permet de visualiser l'évolution géométrique de l'ensemble particule/substrat à différents pas de temps du calcul. A 10 J/cm^2 , le chrome est vaporisé. A 130 ns après le début de l'impulsion laser, un nuage de chrome est formé provoquant une empreinte dans la silice. La figure III-59 présente la topographie du chrome en (a) et de la silice en (b) à partir de la surface du substrat (plan $x, y, z=0$).

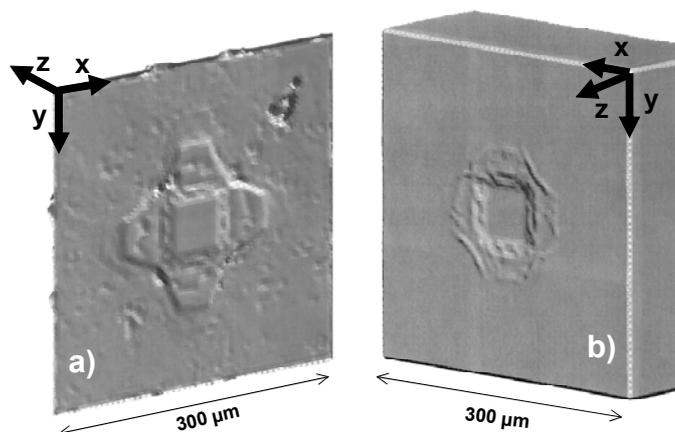


Figure III-59 : Représentations du chrome (a) et la silice (b) 130 ns après le début de l'impulsion laser ($\lambda=1064 \text{ nm}$, $F=10 \text{ J/cm}^2$ et $\tau=9 \text{ ns}$) obtenues par simulation numérique.

La partie (a) de la figure montre que l'expansion du chrome prend une forme en losange due à la forme carrée de la particule. En effet, une quantité plus importante de chrome va se détendre sur les côtés de la particule que sur ses angles. La comparaison des images (a) et (b) montre que la silice est modifiée sur une zone dont la forme et l'étendue correspondent au nuage de chrome. La silice est donc densifiée au centre par l'onde de choc générée par l'explosion de la particule de chrome et autour par ce qu'on appelle une brûlure plasma. Nous concluons qu'une particule métallique, collectée en « face avant » sur un composant optique de la LIL, peut laisser une auréole autour de son emplacement par brûlure plasma de la surface de silice.

⁸⁷ F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, B. Bertussi, M. Commandré, L. Gallais, J. Y. Natoli, I. Bertron, F. Malaise, J. T. Donohue. Numerical simulations for description of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica, Appl. Phys. B 78, 447 (2004).

Notre étude montre qu'une particule métallique « modèle » laisse une auréole après irradiation laser qui peut correspondre à différents états de la surface du substrat.

Lorsque la particule est sur la « face arrière » et vaporisée, la silice autour peut être « boursouflée » ou former une cuvette suivant la fluence d'irradiation.

Lorsque la particule est éliminée de la « face avant », l'empreinte autour de la particule semble correspondre à une brûlure plasma qui densifie légèrement la silice.

6.3. *Peu d'évolution de la modification de surface*

Les modifications de surface de la silice, observées après irradiation de particules récoltées dans la LIL sont irréversibles. Si elles croissent de façon exponentielle, il s'agit d'endommagements laser critiques. Dans le cadre de nos expériences, plusieurs irradiations successives sur ces modifications de surface, à la même fluence que le premier tir, n'ont provoqué aucune évolution. Aucun endommagement laser critique n'a donc été observé.

L'étude des particules d'aluminium irradiées en « face arrière » a montré peu d'évolution sous les irradiations successives aux mêmes fluences. Si la fluence est supérieure ou égale à 10 J/cm^2 , la particule est vaporisée après un tir laser. Quel que soit l'état de surface de la silice, aucun endommagement laser critique n'est observé après 1000 irradiations successives. A l'emplacement initial de la particule, la silice se liquéfie puis refroidit devient plus résistante au flux laser qu'une silice non polluée. La fusion de la silice est un principe utilisé dans la stabilisation de dommage par laser CO_2 ^{88,89}.

Dans le cadre de la deuxième étude utilisant des particules de chrome irradiées en « face avant », même à de fortes fluences, une évolution est visible mais reste faible. Le cas à 3 J/cm^2 est représenté sur la figure III-60.

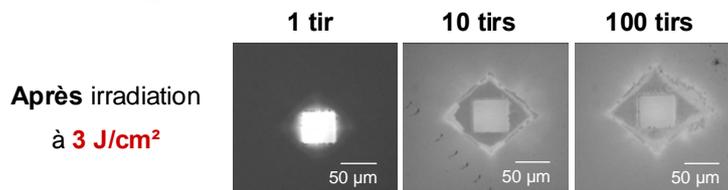


Figure III-60 : Particules de chrome irradiées à 3 J/cm^2 ($\lambda=1064 \text{ nm}$ et $\tau=9 \text{ ns}$) et observées au microscope optique en mode Nomarski.

Nous avons vu que dès la première irradiation, le chrome est vaporisé et la silice est densifiée. Une forme en losange imprimée dans la silice autour de la position initiale de la particule évolue sous une succession de 10 tirs puis cette évolution reste relativement stable même après 1000 tirs. La brûlure plasma peut légèrement évoluer mais cela reste très limité par rapport à un endommagement critique.

Même dans le cas où l'élimination d'un polluant collecté dans la LIL laisse une empreinte en surface du composant, la répétition des tirs ne provoque pas la formation d'endommagement laser critique. Notre étude montre que, quelle que soit les

⁸⁸ L.W. Hrubesh, M.A. Norton, W.A. Molander, E.E. Donohue, S.M. Maricle, B.M. Penetrante, R.M. Brusasco, W. Grundler, J.A. Butler, J.W. Carr, R.M. Hill, L.J. Summers, M.D. Feit, A. Rubenchik, M.H. Key, P.J. Wegner, A.K. Burnham, L.A. Hackel, M.R. Kozlowski. Methods for mitigating surface damage growth on NIF final optics, Proc.of SPIE **4679**, 23 (2002).

⁸⁹ A. During, P. Bouchut, J.G. Coutard, C. Leymarie, H. Bercegol. Mitigation of laser damage on fused silica surfaces with a variable profile CO_2 laser beam, Proc of SPIE **6403**, 640323 (2006).

conséquences de l'élimination de la particule métallique « modèle », l'empreinte laissée sur la silice ne provoque pas la formation d'endommagement laser critique après de nombreuses irradiations.

6.4. Conclusion

Pour une fluence laser élevée à 1064 nm, l'élimination d'un polluant collecté dans la LIL peut laisser une empreinte en surface du composant, mais la répétition des tirs ne provoque pas la formation d'endommagement laser critique.

Une première étude a été menée avec des particules d'aluminium « modèle » irradiées en « face arrière » d'un substrat de silice. Lorsqu'une particule est vaporisée, une excavation est formée par ablation de la silice. La silice environnante peut être « boursouflée » ou former une cuvette suivant la fluence d'irradiation. Dans tous les cas, l'empreinte laissée sur la silice ne provoque pas la formation d'endommagement laser critique après de nombreuses irradiations laser successives.

Une deuxième étude a été menée avec des particules de chrome « modèle » irradiées en « face avant » d'un substrat de silice. Lorsqu'une particule est vaporisée, une excavation est formée par densification de la silice. Dans ce cas, la silice environnante peut être légèrement modifiée par brûlure plasma. Après de nombreuses irradiations laser successives, bien que la brûlure plasma évolue, cela reste très limité par rapport à un endommagement critique.

Ces deux études réalisées sur des particules métalliques « modèles » montrent un comportement semblable à celui obtenu à partir des polluants de la LIL. Les particules récoltées dans la LIL qui marquent le substrat sous irradiation laser sont probablement de nature métallique.

7. Synthèse de l'étude de la pollution particulaire sous flux laser à 1064 nm

Dans ce chapitre, nous avons caractérisé la pollution particulaire présente dans différentes zones de la LIL où la longueur d'onde du laser est de 1053 nm. Chacune des particules recueillies a été analysée. Nous avons donc limité cette étude aux particules dont la taille est comprise entre 3 et 100 μm . Un taux de pollution général a été évalué à $0,3 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ dans les trois zones de la SA, et une quantité de particules légèrement plus élevée a été comptabilisée devant les réseaux 1ω . Du point de vue qualitatif, trois catégories de particules ont été détectées ; les organiques largement à base de carbone, les métalliques composés d'aluminium, de fer ou de cuivre, et les minérales principalement constituées de silicium. Nous avons observé que la nature de cette pollution varie dans le temps selon l'activité de la chaîne laser (période de tirs ou de maintenance).

Nous avons montré que cette pollution particulaire est éliminée d'une surface de silice traitée antireflet ou non traitée, par le passage d'un faisceau laser d'une longueur d'onde de 1064 nm, et d'une durée d'impulsion de 6,5 ns. A une fluence supérieure ou égale à 15 J/cm^2 , cette élimination peut laisser une empreinte visible sur la surface du substrat. Cette modification de surface n'évoluant pas sous une succession de tirs lasers, aucun n'endommagement laser critique n'est détecté.

Des particules d'aluminium « modèles », d'1 μm d'épaisseur, irradiées en « face arrière », à une longueur d'onde de 1064 nm, et une durée d'impulsion de 6,5 ns ont été analysées. L'élimination incomplète de la particule, sous forme liquide s'obtient autour de 3 J/cm². Pour des fluences supérieures à 5 J/cm², l'aluminium est totalement vaporisé. Dès que la particule est vaporisée, une modification de surface apparaît. Celle ci correspond à une excavation générée par l'ablation de la silice à l'emplacement initial de la particule. De part et d'autre de cette excavation, la silice peut présenter des renflements ou former une cuvette en fonction de la fluence du laser et de la taille de la particule. Quel que soit l'état de surface du substrat, aucun endommagement laser critique n'est observé même après 1000 irradiations successives à 20 J/cm².

Nous avons utilisé la simulation numérique avec le code monodimensionnel ESTHER pour compléter l'interprétation des résultats expérimentaux. Nous avons montré que le comportement d'une particule métallique est fortement dépendant : de l'épaisseur du substrat de silice, des caractéristiques du métal, de la couche d'oxyde entre l'aluminium et la silice, de la fluence du rayonnement laser et de l'épaisseur de la particule. Notamment, le calcul pour des fluences supérieures ou égales à 10 J/cm², montre que la couche métallique est violemment vaporisée (≈ 500 m/s), provoquant l'ablation de quelques centaines de nanomètres de silice. Un nouvel état de surface plus résistant au flux laser est obtenu par le refroidissement d'une fine couche de silice fondue. La bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et les simulations valide l'utilisation du code pour ce type d'applications.

Une deuxième étude a été menée avec des particules de chrome « modèles » irradiées en « face avant » d'un substrat de silice à une longueur d'onde de 1064 nm, et une durée d'impulsion de 9 ns. Lorsqu'une particule est vaporisée par l'irradiation laser, une excavation est formée par densification de la silice. Dans ce cas, la silice environnante peut être légèrement modifiée par brûlure plasma. Après de nombreuses irradiations successives, bien que la brûlure plasma évolue, cela reste très limité par rapport à un endommagement critique. L'ensemble des études réalisées sur des particules métalliques « modèles » montre un comportement semblable à celui obtenu à partir des polluants de la LIL. Les particules récoltées dans la LIL qui marquent le substrat sous irradiation laser sont probablement de nature métallique.

Après avoir étudié la pollution particulaire à des longueurs d'onde de 1053 et 1064 nm, dans le chapitre suivant, nous nous intéressons à la pollution particulaire présente dans la zone de la LIL où la longueur d'onde du laser est de 351 nm et à son interaction avec un rayonnement laser à 355 nm. Ce rayonnement plus énergétique pourrait être plus critique.

Chapitre IV : La pollution particulaire sous flux laser à 355 nm

Une partie de l'environnement du SCF a déjà été étudiée dans le chapitre III : la zone où la longueur d'onde du faisceau laser est de 1053 nm. Dans le chapitre IV, nous analysons la pollution issue de la partie du SCF où le faisceau laser se propage à 351 nm. Cette pollution peut se déposer sur des composants optiques en silice dont les propriétés sont sensiblement les mêmes à 351 et à 355 nm. Dans notre étude, nous utilisons un banc laser dont la longueur d'onde est de 355 nm.

La pollution émise dans le SCF a été prélevée au moyen de substrats collecteurs de particules et d'un compteur optique. Dans un premier temps, les particules collectées en surface sont caractérisées de manière à connaître leur nombre, leur taille et leur nature. Les particules en suspension dans l'air sont comptabilisées et classées par taille. Leur dépôt sur des composants optiques soumis au flux laser est simulé par l'utilisation de substrats de silice placés en tant que collecteurs de particules dans le SCF. Ensuite, les substrats sont irradiés par un faisceau laser aux caractéristiques similaires à celles de la LIL. L'observation des particules sur leur substrat après chaque étape permet de visualiser un éventuel impact en surface du substrat de silice. Cette étude est poursuivie sur un autre type de pollution constituée de particules « modèles » fabriquées sur un substrat de silice. L'objectif est alors de déterminer l'influence de certains paramètres intervenant dans l'interaction rayonnement laser/particule/substrat. Ces résultats expérimentaux sont complétés et précisés par des simulations numériques. L'ensemble des résultats obtenus est comparé à ceux présentés dans le chapitre III après irradiation à 1064 nm. Enfin, une synthèse est réalisée à partir de l'ensemble des données présentées.

1. Différents types de pollution étudiés

Dans le chapitre II, nous avons décrit les techniques de pollution des substrats de silice, dont certains sont traités antireflets. Dans cette partie, nous développons toutes les caractéristiques associées aux particules et les environnements dans lesquels elles ont été prélevées.

1.1. *Les particules collectées dans la LIL et les particules « modèles »*

Nous avons mis en œuvre deux types d'approche : l'une consacrée à l'étude in situ des particules recueillies dans la LIL et l'autre reposant sur des particules « modèles ». Dans les deux cas, nous analysons une pollution surfacique même si elle est obtenue par des méthodes très différentes. L'ensemble des caractéristiques des polluants et des substrats est regroupé dans le tableau IV-1.

Type de pollution		Type de substrat
Particules collectées dans la LIL		
Système de Conversion de fréquence et de Focalisation (2 zones)	Durée : 48 jours (nov. à déc. 2005 - 29 tirs)	<ul style="list-style-type: none"> • Pastille carbonée • Substrat de silice • Substrat de silice traité antireflet
Particules « modèles »		
Nature Forme Largeur (µm) Épaisseur (µm) Technique de dépôt	Aluminium  50 et 7 1 Photolithographie	<ul style="list-style-type: none"> • Substrat de silice

Tableau IV-1: Différents types de pollution étudiée et leur substrats associés.

Les particules issues de la LIL sont collectées soit par exposition de substrats collecteurs soit par aspiration de l'air au moyen d'un compteur de particules. Les substrats collecteurs de particules utilisés sont des pastilles carbonées, des substrats de silice et des substrats de silice traités antireflet. Les pastilles carbonées sont des disques 1,2 cm de diamètre et de 1,13 cm² de surface utile. Les substrats de silice sont polis par le même procédé que les composants de la LIL. Ce sont des disques de 2,26 cm² de surface utile. Certains sont traités antireflet par un procédé sol gel. Une pastille carbonée et deux substrats, dont un est traité antireflet, sont positionnés à proximité des composants optiques, dans deux zones différentes du SCF. Leur position horizontale permet de recueillir les particules déposées, par simple sédimentation. Ils ont été placés dans le SCF de novembre à décembre 2005, pendant 48 jours au cours desquels 29 tirs laser ont été réalisés. Le personnel intervient après chaque tir pour vérifier l'état des composants optiques et assurer le maintien de la propreté.

Les particules « modèles » sont en aluminium, de forme circulaire, de 50 ou 7 µm de diamètre et 1 µm d'épaisseur. Elles sont préparées par photolithographie sur un substrat de silice superpolie, identique à ceux positionnés dans la LIL, de 2,5 cm de diamètre et 0,3 cm d'épaisseur.

Pour s'intéresser à la pollution particulaire en suspension dans l'air de l'environnement du SCF, une étude complémentaire a été réalisée. Nous avons analysé la pollution aéroportée au moyen d'un compteur optique de particules, de type GRIMM série 1100, muni de dix canaux de 0,3 à 20 µm et de débit 1,2 L.min⁻¹. Son principe de fonctionnement est brièvement décrit en annexe. Il aspire toutes les heures les particules en suspension dans l'air pendant une minute et mesure à chaque fois la concentration volumique de particules et la granulométrie. Ces enregistrements ont été réalisés pendant 21 jours consécutifs dans la période où les substrats collecteurs étaient en place.

1.2. Les zones de prélèvement

L'environnement du SCF a été précédemment décrit dans la partie III.1.1. Nous rappelons ici les informations utiles pour notre étude. Le SCF est un ensemble opto-mécanique qui est constitué d'une structure métallique dans laquelle s'insèrent des réseaux dits 1ω qui diffractent le faisceau laser infrarouge, des cristaux convertisseurs de fréquence qui convertissent le rayonnement laser dans le visible puis dans l'ultraviolet (UV) et des réseaux 3ω qui focalisent le faisceau UV sur la cible. Un hublot sert de limite entre l'environnement du SCF et la chambre d'expérience qui est sous vide.

L'ensemble est localisé dans une salle propre ISO 7 (concentration maximale de 2930 particules de diamètre supérieur à $5 \mu\text{m}^3$ d'air). La température ambiante est de 21°C pour un taux d'hygrométrie de 50 %. La ventilation est assurée par un plafond soufflant qui donne au flux d'air une vitesse inférieure à $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Le personnel qui intervient dans cette zone est habillé d'une combinaison en polyester recouvrant la totalité du corps excepté les yeux. Les composants optiques du SCF, au moment de leur installation sur la LIL, respectent un niveau de propreté surfacique spécifié par la norme américaine STD CC 1246D désigné par niveau 100 (au maximum 1780 particules de taille supérieure ou égale à $5 \mu\text{m}$ par $0,1 \text{ m}^2$). Sur la figure IV-1, le SCF est représenté de façon schématisée à gauche, et sur une photographie de vue d'ensemble à droite. Trois étoiles désignent l'emplacement des collecteurs de particules. Un repère (x, y, z) permet de s'orienter. L'axe z est dans la direction de propagation du faisceau (horizontale), y dans la hauteur (verticale) et x dans la largeur de la chaîne laser.

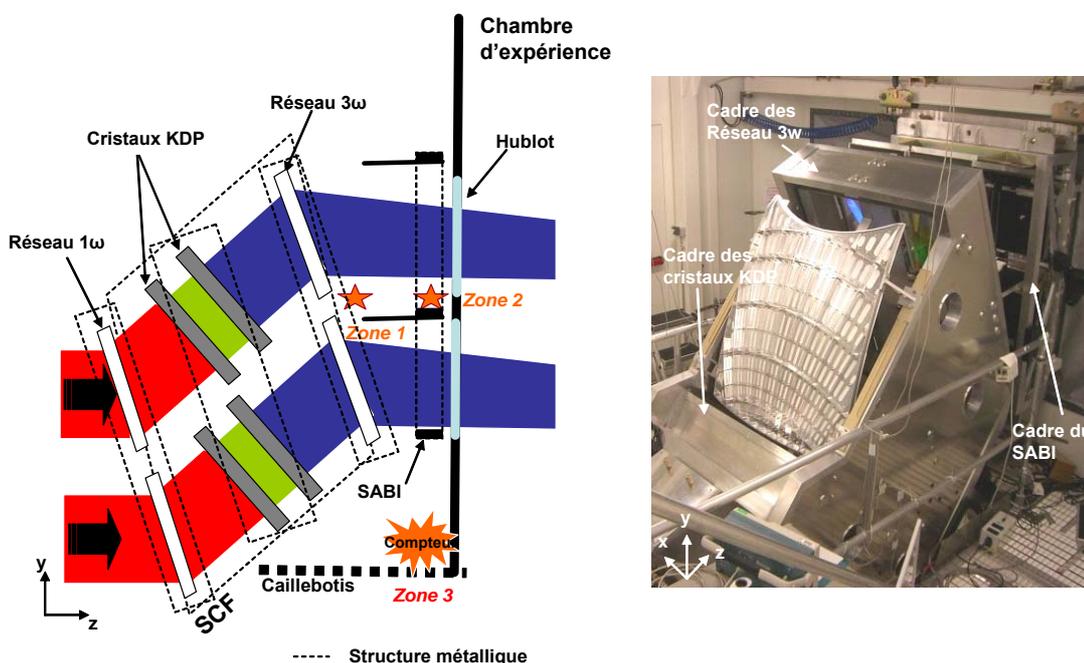


Figure IV- 1 : Schéma et photographie d'ensemble du SCF.

Les pastilles carbonées et les substrats de silice (traités antireflet ou non) sont placés au niveau des zones notées 1 et 2 où la longueur d'onde du faisceau est de 351 nm (3ω). Ils sont positionnés à l'intérieur de leur boîte de transport, lesquelles sont ouvertes et fixées à l'aide d'une bande adhésive sur la structure mécanique, à proximité des composants optiques et du faisceau laser. La figure IV-2 montre de façon plus précise les substrats collecteurs de particules dans leur zone de prélèvement.

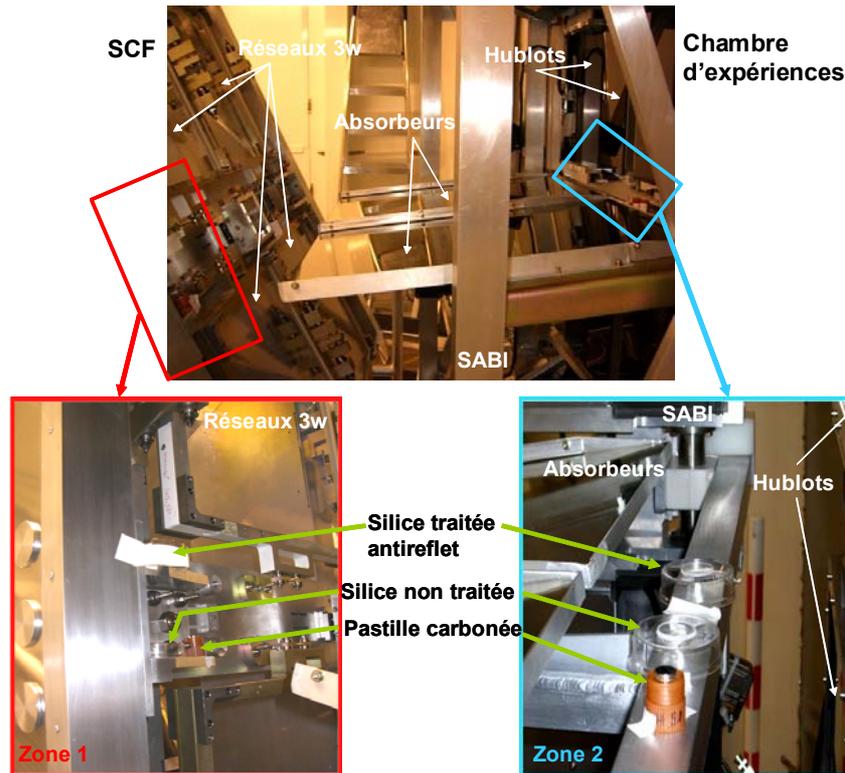


Figure IV- 2 : Photographies des substrats collecteurs positionnés dans le SCF.

Dans la zone 1, les substrats sont situés derrière des réseaux 3ω par rapport au sens de propagation du faisceau laser. De façon plus précise, ils sont au-dessous d'un des deux réseaux supérieurs, fixés sur la structure métallique. Les matériaux à proximité des collecteurs sont l'aluminium qui constitue la structure métallique, l'inox pour toutes les vis et la silice pour les composants optiques.

Dans la zone 2, les substrats ont été déposés sur la structure métallique du Système d'Absorbants et de Bolomètres Insérables (SABI), situé devant les hublots, au milieu des quatre faisceaux laser. Le SABI bloque l'énergie incidente non convertie en lumière UV et permet de mesurer l'énergie convertie. Les composants les plus proches de cette zone sont les hublots également constitués de silice et les absorbeurs en verre. Les autres matériaux situés autour des échantillons sont similaires à ceux précédemment cités pour la zone 1.

Au niveau des deux zones, le faisceau laser passe à environ 20 cm au dessus et au dessous des substrats collecteurs. Après une exposition de 48 jours dans les zones à tester, les substrats collecteurs sont retirés avec précaution, stockés dans leur boîte de transport puis analysés pour caractériser les particules déposées sur leur surface.

Dans le cadre de l'étude de la pollution particulaire aéroportée, une troisième zone de prélèvement a été utilisée. Comme le montre la figure IV-1, cette zone 3 se situe sur des caillebotis, au niveau du sol, excentré d'un mètre par rapport au passage du faisceau laser. Au bout des 21 jours d'acquisition, le compteur est retiré. Pour analyser les résultats, nous comparerons les concentrations de particules mesurées dans le temps avec les données concernant l'activité du laser (paramètres de tir) et du personnel.

2. Caractérisation des particules déposées par sédimentation

Une pastille carbonée est placée derrière les réseaux 3ω et une autre devant les hublots pendant 48 jours. Les particules collectées de taille supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$ sont caractérisées par la Microscopie Electronique à Balayage couplée à la spectrométrie X (MEB/EDS). A partir des observations réalisées au MEB, un comptage permet d'obtenir le nombre et les dimensions des particules. Ensuite par microanalyse X, nous déterminons la composition chimique élémentaire de chaque particule. L'objectif de ces analyses est de caractériser la pollution particulaire déposée à proximité des composants optiques.

2.1. Taux de pollution

Le comptage des particules de dimension supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$ a permis de déterminer les taux de pollution figurant dans le tableau IV-2. Les valeurs sont mesurées avec une précision de $0,07\ \text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$. Elles sont comparées au taux calculé d'après l'équation III-1, $N(d,t) = a.p.C^{0,773}.t$ qui prend en compte la concentration volumique de particules maximale tolérée dans l'environnement du SCF et spécifiée par la norme ISO 14644-1. La concentration surfacique de propreté surfacique des composants optiques, définie par le niveau 100, valable lors de leur installation est également indiquée.

	Taux de pollution mesuré (part.cm ⁻² .jour ⁻¹)	Taux de pollution calculé (part.cm ⁻² .jour ⁻¹)	Concentration surfacique de particules spécifiée (part.cm ⁻²)
Derrière les réseaux 3ω	2,86	0,5	3
Devant les hublots	0,56		

Tableau IV- 2 : Taux de pollution du SCF pendant un jour comparé au taux calculé et à la concentration surfacique spécifiée.

Le taux de pollution mesuré sur les substrats situés derrière le réseau 3ω est particulièrement élevé par rapport au taux de pollution calculé. Ce dernier est similaire au taux mesuré sur les substrats placés devant les hublots. D'après les mesures, la durée nécessaire pour dépasser la concentration surfacique spécifiée est légèrement supérieure à un jour pour les substrats placés derrière les réseaux 3ω , et égale à 8 jours pour une surface proche des hublots. Si on se réfère à ce seul critère, nous pourrions conclure que le niveau de propreté de l'environnement du SCF est catastrophique après seulement un mois de vie de l'installation.

Grâce aux nombreuses inspections visuelles réalisées, nous supposons que la pollution excessive mesurée derrière les réseaux 3ω est liée à la dégradation des composants optiques⁹⁰. En effet, le réseau 3ω situé au dessus de nos collecteurs est très endommagé comme le montre la figure IV-3.

⁹⁰ E. Journot. Communication privée (2006).

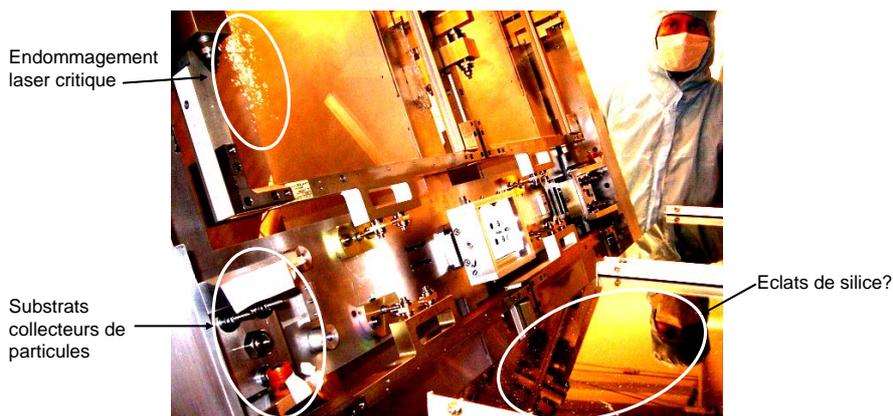


Figure IV- 3 : Photographie du réseau 3ω endommagé.

La photographie montre qu'un grand nombre de particules observables à l'œil nu a été projeté sur les absorbeurs du SABI. Seules les particules de taille supérieure ou égale à $30\ \mu\text{m}$ sont visibles, mais nous pouvons supposer qu'un grand nombre de petites particules est également émis. La pollution excessive collectée derrière les réseaux 3ω semble donc être due à des éclats de silice. Leur présence sur toute la surface de l'absorbeur le plus proche du réseau endommagé montre qu'ils ont été projetés relativement loin. Ils ont pu se déposer sur les substrats placés devant les hublots. Mais le taux de pollution obtenu devant les hublots reste très inférieur à celui obtenu derrière les réseaux 3ω . Cet écart peut s'expliquer d'une part, par l'absence d'endommagement visible sur la « face avant » du hublot et d'autre part, par la distance d'un mètre qui sépare les deux emplacements des substrats. Notons également la présence du SABI qui sert également d'écran aux particules émises par la dégradation des réseaux 3ω .

Les résultats présentés dans le chapitre III sur la pastille placée devant les réseaux 1ω ont montré que les particules déposées sont issues d'une part, d'une pollution « ambiante » ($\approx 0,3\ \text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$), et d'autre part, d'une pollution plus localisée ($\approx 0,25\ \text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$). La pollution collectée derrière les réseaux 3ω très supérieure à ce niveau de pollution « ambiante » indique que celle issue de l'endommagement laser des composants serait largement majoritaire. Le taux de pollution mesuré devant les hublots, bien que du même ordre de grandeur, est légèrement supérieur à cette pollution « ambiante ». Dans ce cas, le nombre de particules issues de l'endommagement laser des composants semble très diminué.

Pour vérifier nos hypothèses, une analyse des dimensions des particules collectées a été réalisée. Toutes les particules collectées de taille comprise entre 3 et $100\ \mu\text{m}$ ont été réparties en fonction de leur taille, en 4 catégories (taille comprise entre $3 - 10$, $10 - 20$, $20 - 50$, et $50 - 100\ \mu\text{m}$). Les taux de pollution, obtenus pour chaque classe, sont représentés sur la figure IV-4 pour les deux zones de prélèvement.

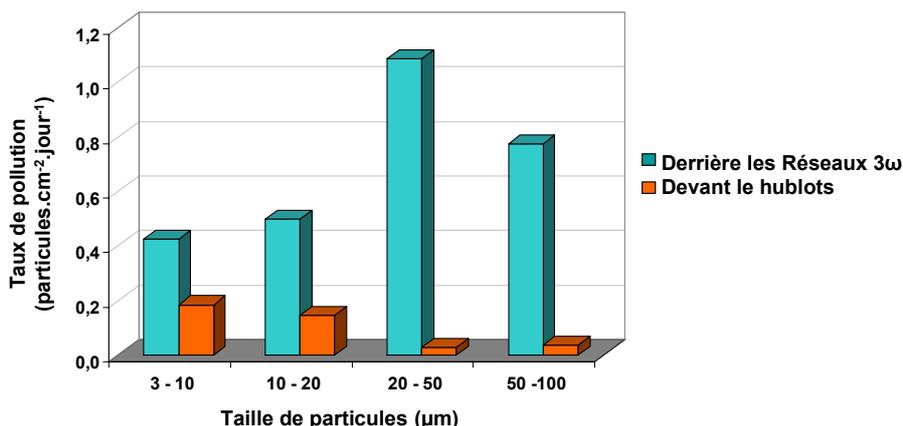


Figure IV- 4 : Répartition des particules en fonction de leur dimension et de la zone de prélèvement.

Devant les hublots, les particules collectées en plus grand nombre sont dans les gammes de taille 3-10 et 10-20 µm. Celles supérieures à 20 µm sont en très faible quantité. La répartition des particules recueillies derrière les réseaux 3ω est caractérisée par une quantité élevée de polluant dans toutes les classes et particulièrement dans les classes 20 - 50 µm et 50 - 100 µm. Ce nombre de particules de taille supérieure ou égale à 20 µm plus élevé qu'ailleurs semble confirmer l'hypothèse d'une pollution issue de la dégradation des réseaux 3ω. Nous supposons que les plus grosses particules tombent juste à l'arrière des réseaux 3ω, à l'endroit où sont placés les collecteurs.

La répartition mesurée sur les substrats placés devant les hublots (90 % des particules sont inférieures à 20 µm) est proche de celle rapportée dans le chapitre III pour des substrats placés devant les réseaux 1ω (80 % des particules sont inférieure à 20 µm). Ces répartitions en taille comparables sont en bon accord avec l'hypothèse d'une pollution « ambiante » dans tout l'environnement du SCF.

La répartition des particules en taille peut être analysée par une distribution cumulée et, de nouveau, comparée avec le taux calculé d'après l'équation III-1 ainsi que les spécifications établies par le niveau 100. La figure IV-5 montre la comparaison entre les deux zones de prélèvement et les spécifications.

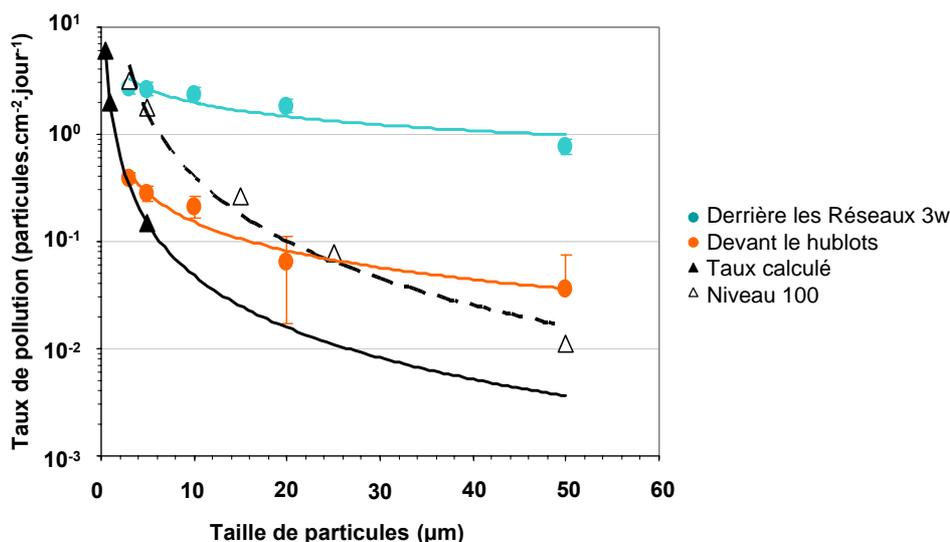


Figure IV- 5 : Distribution cumulée des particules collectées derrière les réseaux 3ω et les hublots, comparées aux spécifications.

La distribution cumulée caractéristique des deux zones suit la même tendance selon une loi en puissance de la taille des particules. Elle correspond à une distribution de particules mesurée dans l'atmosphère et traduit une quantité plus importante de petites que de grosses particules en suspension dans l'air^{91, 92}. Nos résultats montrent que cette distribution est également valable sur une surface.

Indépendamment des zones de prélèvement, les taux de pollution mesurés sont supérieurs à ceux calculés quelle que soit la taille des particules. Ils mettent en évidence une pollution qui dépasse rapidement le niveau 100.

Cette répartition en taille montre que malgré une croissance du nombre de polluants vers les petites tailles, les grosses particules sont moins favorables au respect des normes.

L'analyse des particules dont la dimension est comprise entre 3 et 100 µm montre que devant les hublots, la pollution est comparable à celle mesurée devant les réseaux 1ω. Par contre, elle est beaucoup plus élevée derrière les réseaux 3ω.

Malgré le nombre élevé de particules de petite taille, les grosses particules sont très peu favorables au respect des normes.

A ce stade de l'étude, nous supposons l'existence d'une pollution « ambiante » dans l'environnement du SCF à laquelle se superposent des pollutions localisées. Derrière les réseaux 3ω, il s'agirait de l'émission d'éclats de silice issus de l'endommagement laser des composants. De manière à vérifier cette hypothèse, nous analysons la composition chimique élémentaire de chaque particule.

2.2. Composition chimique élémentaire

D'après les résultats de microanalyse X, nous avons réparti les particules de dimension supérieure ou égale à 3 µm en trois catégories : organique, minérale, et métallique. La figure IV-6 représente cette répartition pour les particules collectées derrière les réseaux 3ω et devant les hublots. La précision sur ces taux de pollution est de 0,02 part.cm⁻².jour⁻¹.

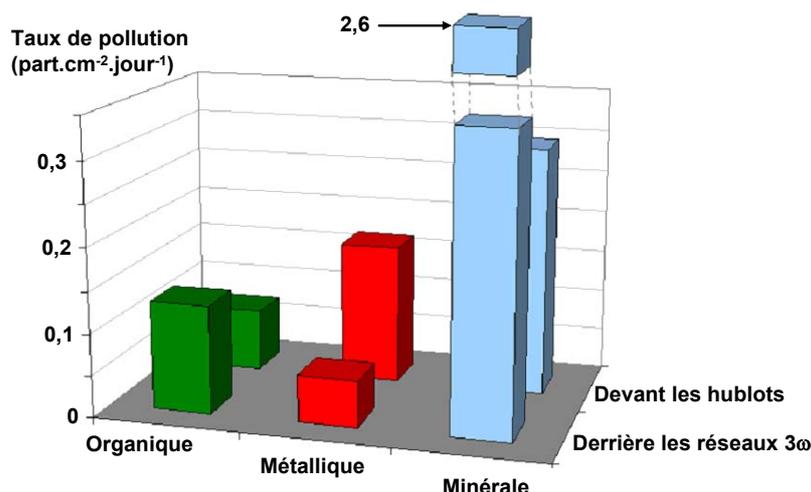


Figure IV- 6 : Répartition des particules collectées en fonction de leur nature et de leur zone de prélèvement.

⁹¹ CE. Junge. Air chemistry and radioactivity, Ed New York:Academic Press (1963).

⁹² K.T. Whitby. The physical characteristics of sulfur aerosols, Atmos. Envir. **12**, 135 (1978).

Les particules minérales représentent environ 50 % de la pollution collectée devant les hublots et plus de 90 % de celle prélevée derrière les réseaux 3 ω . Globalement, la somme des particules organiques et métalliques est du même ordre de grandeur dans les deux environnements. Les particules métalliques sont majoritaires par rapport aux particules organiques devant les hublots alors que cette tendance s'inverse derrière les réseaux 3 ω . Sur la figure IV-7, nous détaillons la composition chimique élémentaire des particules de chaque classe. La précision de mesure sur ces taux de pollution est de 0,007 part.cm⁻².jour⁻¹.

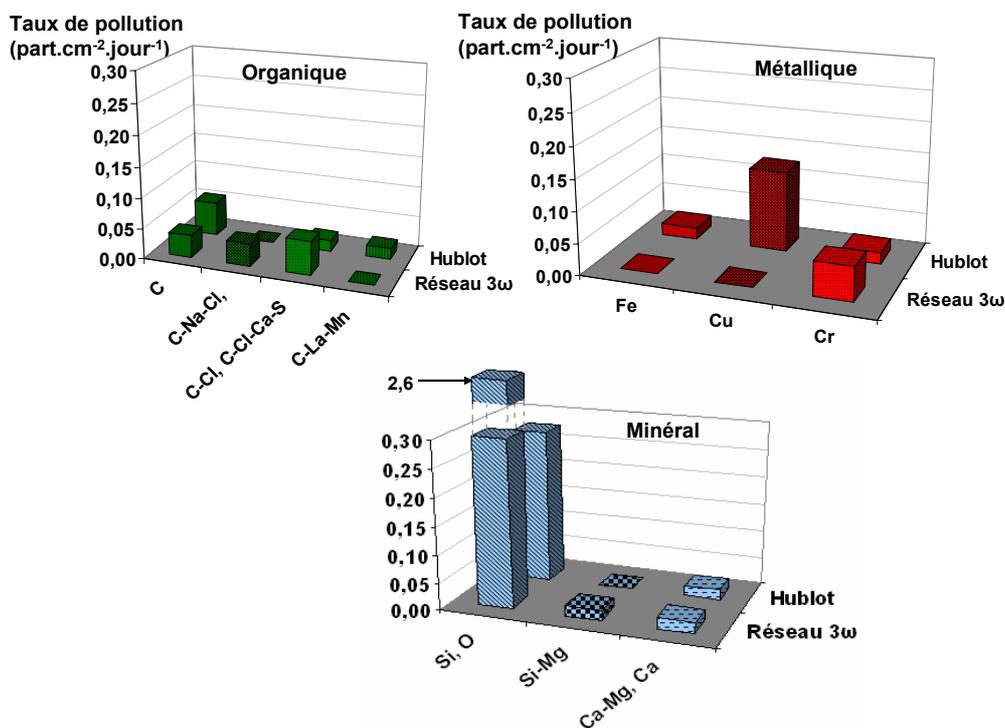


Figure IV- 7 : Répartition des particules collectées en fonction de leur composition chimique élémentaire et de leur zone de prélèvement.

Parmi les particules organiques, aucune espèce n'est prépondérante sur les autres. Dans les deux environnements, nous avons collecté des particules à base de carbone principalement et parfois associé au chlore. L'origine du carbone est difficile à déterminer. Il peut provenir d'une grande quantité de matériaux : la combinaison des intervenants, leurs gants, la peinture des murs, les joints de la structure opto-mécanique, le rideau en plastique séparant le SCF du hall d'expérience, également la pollution atmosphérique ou tout autre matériau sous le flux laser. Les éléments chlorés peuvent provenir d'une pollution atmosphérique comme les embruns marins dont les éléments caractéristiques ont été mis en évidence dans une étude sur la pollution moléculaire⁹³. Seules quelques particules collectées devant les hublots sont composées de C, La et Mn mais leur origine reste inconnue.

Les quelques particules métalliques collectées à proximité des réseaux 3 ω sont composées de chrome. Cet élément est un constituant du traitement de surface des structures en aluminium, l'alodine, destiné à éviter l'oxydation. Il a probablement été émis lors de réflexions parasites du faisceau laser sur les montures des composants optiques. Devant les hublots, une forte pollution de cuivre et quelques particules de fer sont comptabilisées. Nous supposons qu'elles proviennent de la structure métallique du SABI mobile et en particulier des paliers de rotation des capteurs d'énergie, en bronze, situés en hauteur par rapport aux substrats collecteurs.

⁹³ G. Guéhéneux, M. Veillerot, I. Toven. Evaluation of the airborne molecular contamination inside the LIL, Nucl. instrum. methods phys.res. **557**, 676 (2006).

Les particules minérales sont en très grande majorité composées de silicium et d'oxygène. Ces deux éléments sont la signature de la silice. Cette forte prédominance de particules de silice a pour origine la croissance des endommagements des réseaux 3ω lors du passage du flux laser. Quelques particules contenant du calcium et du magnésium ont aussi été détectées. Elles peuvent être émises par les absorbeurs en verre.

Grâce aux analyses chimiques, nous avons confirmé l'existence d'une pollution liée à la dégradation des composants optiques. Celle-ci est présente derrière les réseaux 3ω et en proportion plus faible devant les hublots. Le collecteur de particules placé devant les réseaux 1ω se situe en hauteur par rapport aux composants optiques, loin en amont des réseaux 3ω . Il ne reçoit donc pas la pollution issue de la dégradation des optiques. En comparant les analyses, en taille et en composition chimique, des polluants récoltés sur les différents collecteurs du SCF, nous en déduisons la proportion de particules minérales issues de la dégradation des réseaux 3ω . Il s'agit de 91 % de minéraux à base de silicium et oxygène dans la zone située derrière les réseaux 3ω et de 48 % de ces mêmes éléments devant les hublots. Après soustraction de cette pollution, nous comparons la répartition en taille des taux de pollution entre ces deux zones. Les distributions cumulées en taille de chacune d'entre elles sont représentées sur la figure IV-8.

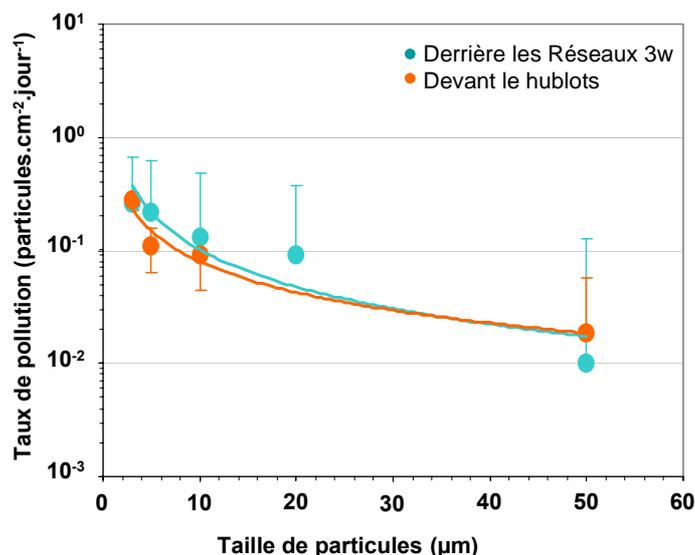


Figure IV- 8 : Répartition des particules en fonction de leur dimension et de leur zone de prélèvement.

Les particules sont réparties selon une loi en puissance similaire dans les deux environnements testés. Pour les particules de taille supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$, le taux de pollution est d'environ $0,24\ \text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ pour les deux zones. Par conséquent, quelle que soit la zone, la proportion de particules minérales autres que le silicium (issu de la dégradation des composants optiques) à laquelle sont ajoutés les métalliques et les organiques correspondrait au taux de pollution « ambiant » obtenu sans la dégradation des composants optiques. Avant de conclure sur l'homogénéité de cette pollution « ambiante », nous analysons la composition chimique de ces particules. De la même manière que précédemment, les particules sont réparties en trois catégories : organique, métallique et minérale. Le tableau IV-3 récapitule les proportions de chaque type de particules dans les deux zones étudiées.

	Organique	Métallique	Minéral
Derrière les réseaux 3 ω	45 %	30 %	25 %
Devant les hublots	30 %	55 %	15 %

Tableau IV- 3 : Répartition selon la composition chimique élémentaire des particules collectées derrière les réseaux 3 ω et devant les hublots constituant la pollution « ambiante ».

Dans les deux zones étudiées, les particules organiques sont environ deux fois plus nombreuses que les minérales. Les métalliques représentent le tiers des polluants près des réseaux 3 ω et la moitié devant les hublots. Cette différence s'explique par la quantité élevée de polluants de cuivre provenant des roulements des capteurs d'énergie du SABI, situés au dessus des collecteurs devant les hublots (cf. figure IV-7). Indépendamment de la quantité de particules dans chaque catégorie, nous les répartissons en trois classes de taille. Les résultats obtenus dans chacune des zones sont représentés sur la figure IV-9.

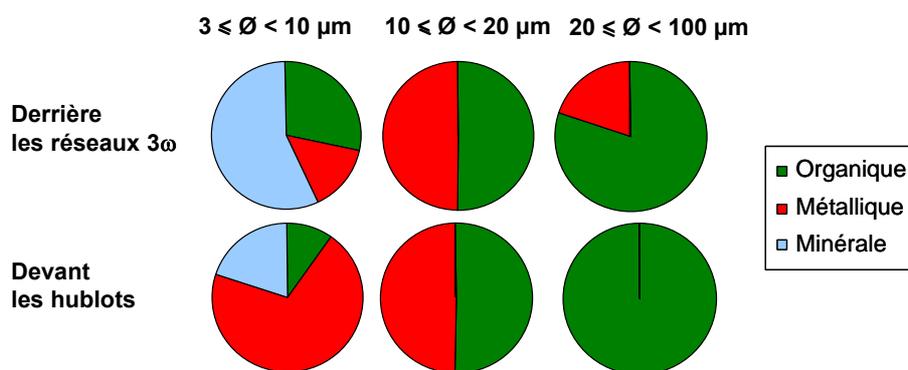


Figure IV- 9 : Répartition des particules collectées dans le SCF en fonction de leur composition chimique élémentaire, de leur taille et de leur zone de prélèvement.

Dans ces deux zones, les particules minérales collectées sont inférieures à 10 μm . Les particules organiques et métalliques sont de toute taille. La pollution du SCF sans la dégradation des composants optiques est donc constituée de fines particules minérales, et de particules organiques et métalliques de dimension aléatoire.

L'analyse de la composition chimique a montré que l'excès de pollution comptabilisé derrière les réseaux 3 ω provient de leur dégradation sous le flux laser. Un dixième de cette pollution est détecté devant les hublots.

Nous avons confirmé l'existence d'une pollution « ambiante » dans l'environnement du SCF. Son taux de dépôt sur les surfaces est estimé à 0,24 part.cm⁻².jour⁻¹. Cette pollution est composée de trois catégories de particules (organique, minérale et métallique) qui sont équivalentes en proportion. Les particules minérales sont toutes inférieures à 10 μm , alors que les métalliques et les organiques sont de taille plus aléatoire.

2.3. Comparaison entre deux sections où la longueur d'onde du laser est différente

Dans le chapitre III, nous avons étudié différentes zones dans la section de la LIL où la longueur d'onde du laser est de 1053 nm. Nous avons montré que les particules collectées et

analysées, de taille comprise entre 3 et 100 μm , sont en quantité relativement homogène et que leur répartition en nature varie dans le temps, selon l'activité de la chaîne laser. Dans ce chapitre, nous venons d'analyser, pour cette même gamme de taille de particules une zone de la LIL où la longueur d'onde du faisceau laser est 351 nm. La période de prélèvement de cette deuxième étude (48 jours de novembre à décembre 2005) est exactement la période de tir utilisée précédemment. Il est donc intéressant de comparer l'ensemble des zones. Pour chacune des six zones étudiées, le tableau IV-4 récapitule les taux de pollution « ambiante » et « localisée » mesurés, ainsi que leurs principaux constituants. La somme des taux de pollution « ambiante » et « localisée » correspondant au taux de pollution totale est également indiquée.

	Taux de pollution « ambiante » (part.cm ⁻² .jour ⁻¹)	Principaux constituants			Taux de pollution « localisée » (part.cm ⁻² .jour ⁻¹)	Principaux constituants	Taux de pollution totale (part.cm ⁻² .jour ⁻¹)
		Organique	Métallique	Minéral			
Injection basse	0,25	C	Al, Fe	Si, O			0,25
Fond de cavité	0,39	C	Al, Fe	Ca, Mg, Si, O			0,39
Amplificateur de transport	0,27	C	Al, Fe	Ca, Mg, Si, O			0,27
Réseaux 1ω	0,49	C	Al, Fe	Ca, Mg, Si, O	0,07	Cu	0,56
Réseaux 3ω	0,26	C	Cr	Ca, Mg, Si, O	2,64	Si, O	2,86
Hublots	0,22	C	Cr, Fe	Ca, Mg, Si, O	0,33	Cu, Si, O	0,55

Tableau IV- 4 : Taux de pollution « ambiante » et « localisée » mesurés, ainsi que leurs principaux constituants obtenus dans chaque zone étudiée.

Les taux de pollution « ambiante » mesurés dans l'ensemble des six zones étudiées sont du même ordre de grandeur. Seules les mesures effectuées devant les réseaux 1 ω montrent une pollution 60 % supérieure aux taux moyen qui est de 0,3 part.cm⁻².jour⁻¹. Nous attribuons ce surplus à la proximité d'une voie de passage en caillebotis.

Pour la pollution organique et minérale, les principaux constituants sont les mêmes dans les zones, où la longueur d'onde du laser est 1053 ou 351 nm. Par contre, les particules métalliques présentent une différence entre ces deux zones. Celle-ci s'explique par le traitement antioxydant (alodine) des structures métalliques du SCF.

La présence d'une pollution « localisée » n'a été détectée que dans l'environnement du SCF. Elle est de deux natures distinctes par chacune desquelles l'origine clairement définie : la dégradation des composants optiques pour la silice et divers éléments de la chaîne (câbles, rotateurs,...) pour le cuivre.

Pendant une période de tir, nous avons mesuré dans l'environnement de la SA et du SCF de la LIL une pollution moyenne d'environ 0,3 part.cm⁻².jour⁻¹ de taille supérieure ou égale à 3 μm . Cette valeur est très inférieure aux normes surfaciques définies par le niveau 100.

A l'exception de l'aluminium (détecté dans la zone à 1053 nm) et du chrome (zone à 351 nm), les principaux composants de cette pollution sont identiques. A celle-ci vient s'ajouter une pollution « localisée » de silice ou de cuivre, mais seulement dans l'environnement du SCF.

2.4. Conclusion

Pour collecter la pollution présente dans les zones du SCF où la longueur d'onde du laser est de 351 nm, nous avons exposé des pastilles carbonées pendant 48 jours. Chacune des

particules recueillies a été analysée. Nous avons limité cette étude aux particules dont la taille est comprise entre 3 et 100 μm .

Nous avons montré l'existence d'une pollution « ambiante » dans l'environnement du SCF. Cette pollution est composée de particules organiques, minérales et métalliques en proportion équivalente. A cette pollution « ambiante » se superpose une pollution « localisée ». Il s'agit de l'émission d'éclats de silice issus de l'endommagement laser des réseaux 3ω ainsi que de particules de cuivre provenant de pièces mécaniques du SABI.

La comparaison de ces résultats avec ceux obtenus dans la zone où la longueur du faisceau laser est 1053 nm (cf. chapitre III.2) révèle une pollution « ambiante » moyenne d'environ $0,3 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ pour l'ensemble des six zones étudiées. Pour les polluants de nature minérales et organiques, les principaux composants sont identiques. Par contre, pour les métaux, l'aluminium et le chrome sont respectivement détectés dans les zones à 1053 nm et à 351 nm. La pollution « localisée » de silice ou de cuivre qui s'ajoute à la pollution « ambiante » est présente seulement dans l'environnement du SCF.

3. Caractérisation de la pollution particulaire en suspension dans l'air

Dans cette partie, nous nous intéressons à la pollution particulaire en suspension dans l'air de l'environnement du SCF. La caractérisation de cette pollution aéroportée (aérosol) consiste à déterminer la concentration volumique et la distribution granulométrique au moyen du compteur de particules. Pendant trois semaines, une mesure a été réalisée toutes les heures ; soit plus de 500 mesures. A chaque fois, les particules de dimension supérieure à 0,3 μm sont détectées et classées par taille. Ces résultats sont comparés aux tirs laser effectués pendant cette période. L'émission de particules observée après un de ces tirs est analysée plus particulièrement.

3.1. Concentration volumique des particules pendant une campagne de tirs laser

Pendant les trois semaines, nous avons mesuré une concentration de particules généralement confondue avec le bruit de fond ($0,001 \text{ part.cm}^{-3}$). Seuls quelques pics de pollution relativement variables sont détectés. Ils apparaissent toujours après un tir laser. Pour interpréter correctement ces résultats, il est nécessaire de connaître l'énergie du laser dont la longueur d'onde est 351 nm en sortie des réseaux 3ω , mais aussi l'énergie résiduelle (E_R) constituée par les rayonnements aux longueurs d'onde de 526 nm et 1053 nm. Cette dernière peut être calculée à partir des mesures de l'énergie à 1053 nm effectuée en sortie du SA (E_{1053}) et à 351 nm en sortie des réseaux 3ω (E_{351}). Le trajet des faisceaux laser aux différentes longueurs d'onde entrant et sortant du SCF est schématisé sur la figure IV-10.

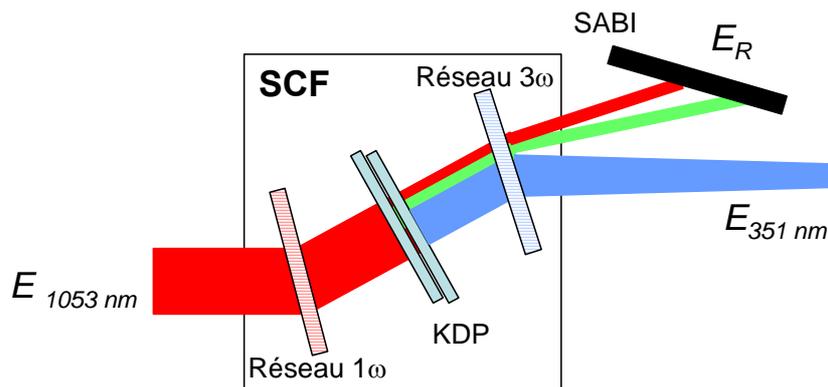


Figure IV- 10 : Schéma de propagation du faisceau laser dans le SCF

L'énergie $E_{1053\text{ nm}}$ est mesurée en fin de SA. Mais le rayonnement parvient au SCF après de multiples réflexions sur les miroirs de la zone de transport qui entraînent une perte d'énergie de 4,4 %. En traversant le réseau 1ω , le rayonnement est diffracté vers les cristaux de KDP et son énergie est réduite de 10 %. A la sortie des cristaux de KDP, le rayonnement est composé de plusieurs longueurs d'onde. Le rayonnement de longueur d'onde 351 nm est diffracté par le réseau 3ω et une perte d'énergie d'environ 10 % à nouveau s'opère. Son énergie $E_{351\text{ nm}}$ est mesurée en sortie de SCF et le rayonnement résiduel (à 526 et 1053 nm) est diffracté vers le SABI. Nous évaluons l'énergie E_R par la relation IV-1.

$$E_{1053\text{ nm}} \times 0,956 \times 0,9 = \frac{E_{351\text{ nm}}}{0,9} + E_R \quad \text{Eq. IV- 1}$$

L'heure à laquelle les tirs sont effectués est indépendante de l'heure à laquelle le compteur effectue une mesure. L'intervalle de temps entre le tir et la première mesure consécutive au tir est donc très variable. Pour résoudre cette difficulté, nous avons ajusté les mesures de la concentration d'aérosols sous un flux d'air suivant une décroissance exponentielle dans le temps⁹⁴. Par extrapolation, nous obtenons la concentration volumique de particules émises au moment du tir (C_{vol}). Les énergies $E_{351\text{ nm}}$ (mesurée) et E_R (calculée) listées dans le tableau IV-5 correspondent à la somme des quatre faisceaux laser de la LIL pour chacun des 16 tirs réalisés. Ces valeurs sont comparées aux concentrations volumiques mesurées C_{vol} pour des particules de taille supérieure ou égale à $0,3\text{ }\mu\text{m}$.

Numéro de tir	An_Mois_Jour_Heure	$E_{351\text{ nm}}$ (kJ)	E_R (kJ)	$C_{vol} \cdot 10^{-3}$ (particule.cm ⁻³)
1	2005_11_25_1907	0,7	1,8	0
2	2005_11_28_1940	0,0	0,4	0
3	2005_11_29_1253	4,5	5,6	35
4	2005_11_29_2121	4,2	5,1	5
5	2005_11_30_1940	4,1	5,5	2
6	2005_12_01_1927	8,0	10,2	160
7	2005_12_02_1930	4,1	15,7	250
8	2005_12_05_1234	5,2	8,5	45
9	2005_12_06_1602	8,6	12,2	15
10	2005_12_06_1929	6,0	6,6	75
11	2005_12_07_2130	2,9	5,6	0,1
12	2005_12_08_1828	9,5	12,2	500
13	2005_12_12_1238	4,3	32,2	10000
14	2005_12_12_1825	6,3	10,8	160
15	2005_12_13_1424	6,8	6,6	140
16	2005_12_14_1156	4,3	3,1	140

Tableau IV- 5 : Caractéristiques des tirs laser effectués pendant les mesures d'aérosols.

⁹⁴ F. Gensdarmes, G. Basso, I. Tovenà, S. Palmier. Caractérisation des aérosols polluants produits dans un amplificateur de laser de puissance, Congrès sur les Aérosols (2004).

Les deux premiers tirs (surlignés en bleu), qui sont les plus faibles en énergie ($E_{351\text{ nm}}$ ou E_R), n'ont pas permis de détecter un signal supérieur au bruit de fond de la mesure. Un niveau d'énergie suffisamment élevé est donc nécessaire pour que la mesure ne soit pas nulle.

Le tir 9 (surligné en jaune) montre une concentration volumique faible alors que l'énergie à 351 nm comme l'énergie résiduelle sont très élevées. Nous supposons que cette faible concentration est liée à l'intervention du personnel. En effet, une caméra située à proximité du compteur a été réparée après le tir, pendant l'aspiration des aérosols.

Le tir 13 (surligné en rose) génère un pic de particules de l'ordre de 10 part.cm^{-3} . Il s'agit de la seule valeur supérieure à 1 part.cm^{-3} qui correspond à la concentration volumique de particules de dimension supérieure à $0,3\text{ }\mu\text{m}$ spécifiée par la norme ISO 14644-1 dans un environnement classé ISO 7⁹⁵. Ce tir est caractérisé par une énergie résiduelle très supérieure à tous les autres tirs. Ce tir démontre qu'une mauvaise conversion à 351 nm de l'énergie incidente à 1053 nm a un rôle très néfaste pour la pollution particulaire.

Le tir 16 (surligné en vert) est également très intéressant car sur les quatre faisceaux laser de la LIL, seuls deux ont été activés. Ils ont permis d'obtenir en sortie du SCF une énergie de 7,4 kJ inférieure d'un facteur deux à celle obtenue au tir 15 par quatre faisceaux laser. Pourtant, le tir 15 a émis une pollution dont la concentration est équivalente. Nous savons que l'état des optiques est très différent entre les quatre chaînes laser. Les deux chaînes supplémentaires utilisées pour le tir 15 ne génèrent donc pas d'aérosols. Ce résultat qui indique une très forte disparité entre les quatre faisceaux de la LIL dans leur contribution à l'émission d'aérosol, montre que la dégradation des réseaux 3ω est l'effet prédominant sur l'émission de pollution particulaire.

Pour les 11 autres tirs, la totalité de l'énergie en sortie des réseaux 3ω ($E_{351\text{ nm}} + E_R$) semble directement corrélée à la concentration de particules émises. Pour le vérifier, nous avons reporté sur la figure IV-11 la concentration volumique en fonction de l'énergie totale en sortie du SCF. Le graphique (a) est une représentation en pleine échelle et (b) est un agrandissement réalisé pour les concentrations de particules inférieures à 1 part/cm^3 . A noter que la concentration de particules anormalement faible relevée après le tir 9 n'est pas représentée. Pour le tir 16 dont la faible énergie est due à l'activation de deux faisceaux laser au lieu de quatre, nous avons doublé la valeur d'énergie pour la rendre comparable avec les autres tirs.

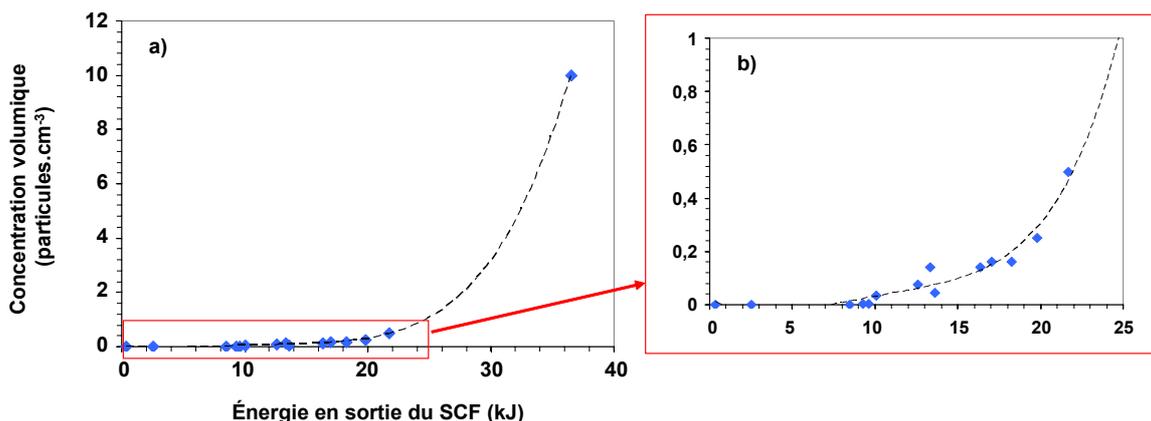


Figure IV- 11 : Concentration volumique de particules ($\geq 0,3\text{ }\mu\text{m}$) en fonction de l'énergie totale en sortie du SCF.

Les concentrations de particules mesurées à différentes énergies suivent clairement la même tendance : elle augmente avec l'énergie totale obtenue en sortie du SCF. Nous savons qu'une des origines principales de cette pollution est la dégradation par le rayonnement des

⁹⁵ I. Tovenà. Salles propres et zones à environnement contrôlé. Ed. AFNOR, 9 (2005).

composants optiques et notamment des réseaux 3ω . Le SABI collectent également sur sa surface (absorbteurs, structure métallique) cette même pollution ainsi que la pollution « ambiante » définie précédemment. Nous pouvons penser que cette pollution est mise en suspension lorsque les rayonnements à 1053 et à 526 nm sont stoppés par le SABI.

Par la mesure d'aérosols de taille supérieure ou égale à $0,3\ \mu\text{m}$ présents dans l'environnement du SCF, nous avons montré qu'il existe une corrélation entre la concentration volumique des polluants et l'énergie totale du laser en sortie des réseaux 3ω . Cette concentration est une fonction croissante de l'énergie totale du SCF.

Le tir 13 qui a généré une pollution particulaire dix fois supérieure aux normes va nous permettre d'analyser l'efficacité de la ventilation d'air.

3.2. Evolution de la concentration volumique émise lors d'un tir laser

Le tir 13 a provoqué une émission de particules particulièrement importante. Pendant les trois heures qui ont suivies le moment du tir, nous avons enregistré une concentration élevée. Pour chacune des trois mesures fournies par le compteur à 45, 105 et 165 min après le tir, nous analysons la répartition en taille des polluants. Des distributions cumulées des particules selon leur taille sont représentées sur la figure IV-12. L'extrapolation de la concentration de particules émise au moment du tir et la norme ISO 7 sont également tracés.

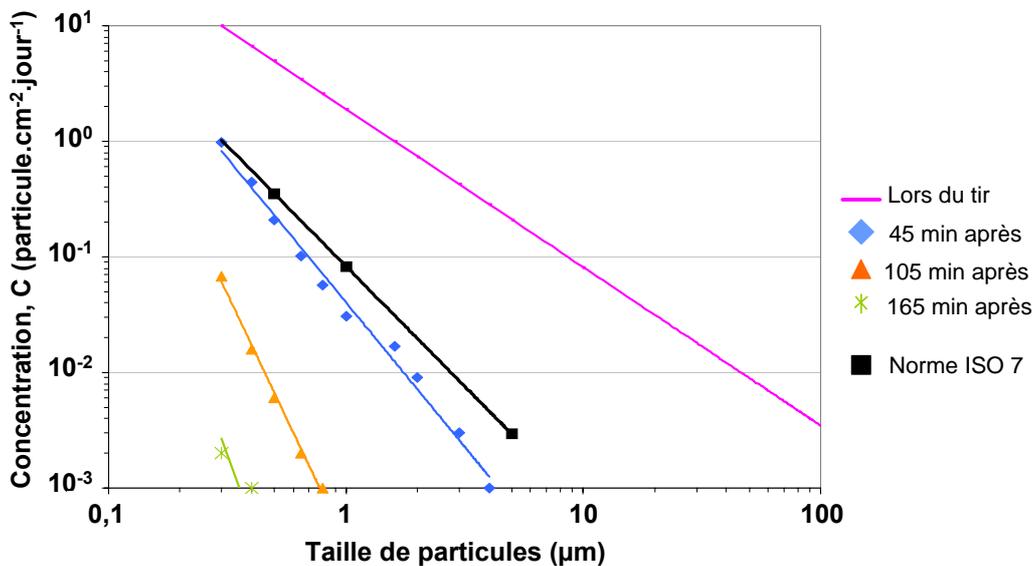


Figure IV- 12 : Distribution cumulée des particules émises lors du tir 12 selon leur taille.

Malgré la distribution cumulative, la forte pente obtenue au moment du tir met en évidence une émission de particules d'autant plus importante que la taille des particules est petite. A cet instant, indépendamment de la dimension des particules considérées, la concentration de particules émises est très supérieure à la norme. Elle diminue fortement avec le temps pour recouvrir un niveau toléré par la classe ISO 7, environ 45 min après le tir. Les pentes des courbes d'ajustement, tracées d'après les mesures, augmentent très vite entre 0 et 45, 105 ou 165 min, montrant ainsi que les particules les plus grosses sédimentent ou sont évacuées plus rapidement. Mais la concentration des plus petites particules diminue également dans le temps. Ces résultats obtenus pour des particules inférieure au micromètre

peu sujettes à la sédimentation montrent ainsi l'efficacité de la ventilation d'air qui permet l'évacuation de particules de toute taille.

Par la mesure granulométrique de l'évolution des aérosols émis par un tir laser de forte puissance, nous avons démontré la grande efficacité du système de ventilation autour du SCF.

3.3. Conclusion

Nous avons utilisé un compteur de particules pour comptabiliser les particules en suspension dans l'air de taille supérieure ou égale à $0,3 \mu\text{m}$ et déterminer leur dimension. Il a été exposé dans l'environnement du SCF pendant trois semaines.

Une pollution est émise au moment d'un tir laser. Nous avons montré que la concentration volumique des polluants est une fonction croissante de l'énergie totale du laser en sortie des réseaux 3ω (à 351, 526 et 1053 nm). Cette pollution est composée de particules d'autant plus nombreuses que leur diamètre est petit. Même si les concentrations de particules émises peuvent être très importantes et dépasser la concentration spécifiée pour l'environnement classé ISO 7, l'efficacité de la ventilation permet de rétablir dans l'heure suivant le tir un environnement toléré par les spécifications.

4. Irradiation à 355 nm de substrats de silice pollués

Les substrats de silice traités antireflet et non traités ont été placés dans les mêmes conditions que les pastilles carbonées derrière les réseaux 3ω et devant les hublots. Ils sont ensuite observés au microscope optique pour comptabiliser les particules déposées sur leur surface. Nous en déduisons un taux de pollution qui est comparé entre les trois types de collecteurs. Tous les substrats de silice pollués sont soumis à un rayonnement laser à 355 nm, puis à nouveau observés au microscope optique. Le comportement sous irradiation de chaque particule et l'effet potentiel sur la silice est déduit par observation des clichés avant et après irradiation.

4.1. Particules collectées sur les substrats de silice

Nous comparons, dans le tableau IV-6, les taux de pollution de particules de dimension supérieure ou égale à $3 \mu\text{m}$ obtenus sur chaque type de substrat. Les valeurs mesurées par observation au microscope optique des substrats de silice sont estimées avec une précision de $0,02 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ et celles mesurées par MEB sur les pastilles carbonées, de $0,07 \text{ part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$.

Taux de pollution ($\text{part.cm}^{-2}.\text{jour}^{-1}$)	Silice traitée antireflet	Silice non traitée	Pastille carbonée
Réseaux 3ω	3,82	3,81	2,86
Hublots	0,56	0,60	0,56

Tableau IV- 6 : Taux de pollution des différents substrats pollués dans deux environnements du SCF.

Sur les substrats de silice traitée et non traitée antireflet, la pollution a été collectée dans des proportions égales au niveau des deux zones de prélèvement. Derrière les réseaux 3ω , sur la pastille carbonée, 25 % de particules en moins par rapport aux substrats de silice ont été détectées. Etant située en dessous des substrats de silice (cf. figure IV-2), elle a certainement collecté moins d'éjectas de silice issus de l'endommagement des réseaux 3ω . Devant les hublots, les substrats étaient placés côte à côte dans le même plan et ont reçu une pollution similaire.

Les collecteurs de silice sont représentatifs des composants optiques (par leur nature et leur polissage), et leur pollution est proche de celle analysée précédemment (environnement du SCF). Ils nous permettent d'évaluer le comportement sous le rayonnement laser de l'ensemble pollution/composant optique.

4.2. Irradiation des particules

Les substrats de silice sont positionnés verticalement sur le banc de tenue au flux LUTIN. Chaque substrat traité antireflet ou non traité est irradié en mode « Raster scan » à la longueur d'onde λ de 355 nm, avec une durée d'impulsion τ de 2,5 ns et un diamètre de faisceau de 0,6 mm à 1/e. La fluence est fixée à 10 J/cm². Pour les substrats exposés derrière les réseaux 3ω , l'irradiation s'effectue en « face arrière », pour ceux placés devant les hublots, nous irradiions la « face avant ». Chaque particule observée avant irradiation est à nouveau observée après. Pour cela, un positionnement du substrat très précis sur la platine du microscope optique doit être réalisé pour identifier chacune des particules repérées avant irradiation et déterminer son comportement après irradiation. Que l'irradiation soit réalisée en « face avant » ou en « face arrière » et que le substrat soit en silice traité antireflet ou non traité, des comportements identiques sont observés. La figure IV-13 montre les différents comportements dans les cas où la particule est éliminée ou non.

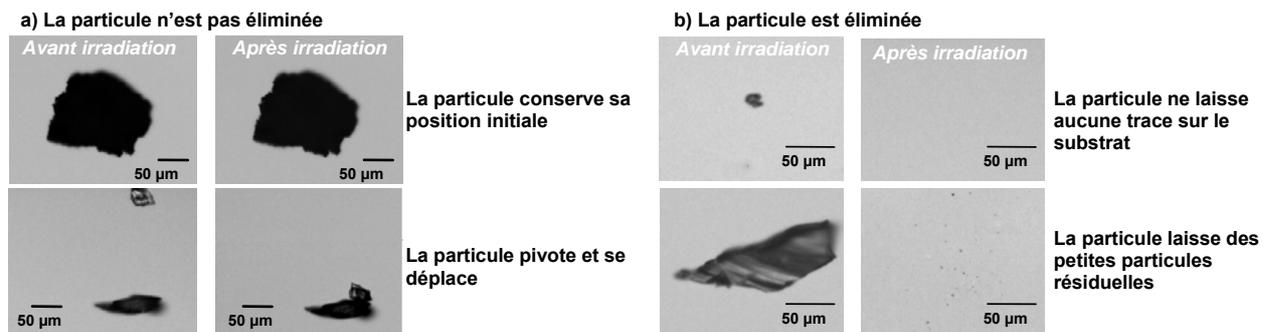


Figure IV- 13 : Observations de particules avant et après irradiation par microscopie optique ($\lambda= 355 \text{ nm}$, $\tau=2,5 \text{ ns}$ et $F=10 \text{ J/cm}^2$).

Seules 5 % des particules ne sont pas éliminées par l'irradiation. Certaines d'entre elles conservent leur position initiale alors que d'autres pivotent et/ou se déplacent. Sur les 95 % de particules éliminées, la grande majorité ne laisse aucune trace sur le substrat. Moins de 2 % laissent de petites particules résiduelles sur le substrat. Environ 4 % des particules éliminées laissent une trace sur le substrat traité antireflet. Une des traces observées est représentée sur la figure IV-14.

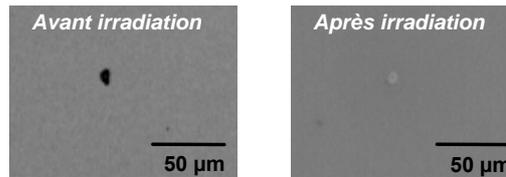


Figure IV- 14 : Observations de particules avant et après irradiation par microscopie optique ($\lambda = 355 \text{ nm}$, $\tau = 2,5 \text{ ns}$ et $F = 10 \text{ J/cm}^2$).

Cette modification se situe à l'emplacement même de la particule irradiée. Elle semble avoir les mêmes dimensions que la particule initiale. Sur les clichés, elle correspond à une trace claire trop petite et trop peu contrastée pour être étudiée en AFM. Qualitativement, les effets observés sont les mêmes que pour une irradiation à 1064 nm. Aucune évolution n'a été constatée après plusieurs irradiations à la fluence de 10 J/cm^2 contrairement à d'autres défauts non liés à la pollution. La figure IV-15 montre un exemple de défaut, une rayure avant et après irradiation.

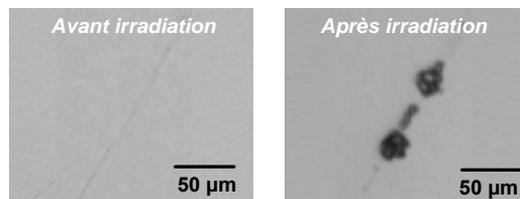


Figure IV- 15 : Observations par microscopie optique de défauts du revêtement antireflet avant et après irradiation ($\lambda = 355 \text{ nm}$, $\tau = 2,5 \text{ ns}$ et $F = 10 \text{ J/cm}^2$).

Une rayure dans le revêtement antireflet soumise à une irradiation à la longueur d'onde de 355 nm avec une durée d'impulsion de 2,5 ns et une fluence de 10 J/cm^2 , provoque la formation d'éclats tout au long de la rayure. La surface occupée par ces éclats augmente sous plusieurs irradiations. Il s'agit donc d'un endommagement laser critique.

Nous avons observé que 95 % des particules présentes sur un substrat de silice traité antireflet et non traité sont éliminées par irradiation laser à une longueur d'onde de 355 nm, une durée d'impulsion de 2,5 ns et une fluence de 10 J/cm^2 .

Lors de leur élimination du revêtement antireflet, moins de 4 % des particules provoquent une modification de surface locale et irréversible. Cette modification de surface n'évoluant pas sous plusieurs irradiations n'est pas assimilable à un endommagement critique.

4.3. *Irradiation des particules présentes dans le revêtement antireflet*

La procédure d'irradiation permet d'exposer toute la surface au flux laser. Même les défauts observés avant exposition des substrats dans la LIL sont irradiés. Par exemple, des défauts intrinsèques au revêtement antireflet sont représentés avant et après irradiation à une longueur d'onde de 355 nm, une durée d'impulsion de 2,5 ns et une fluence de 10 J/cm^2 sur la figure IV-16.

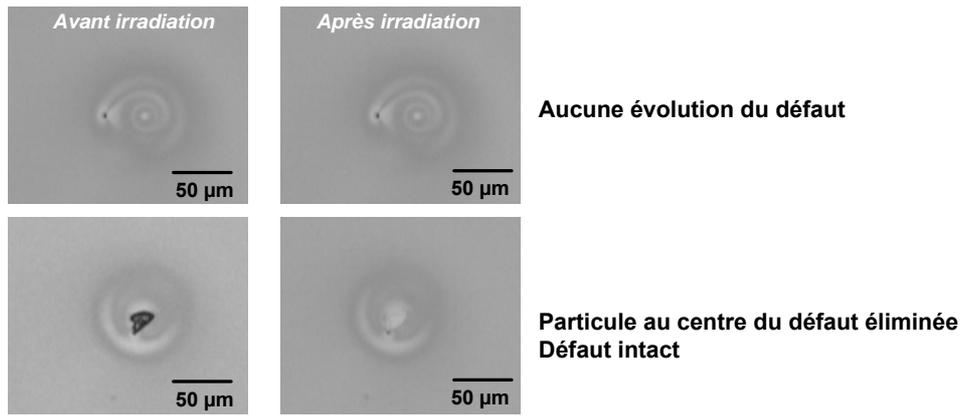


Figure IV- 16 : Observations de défauts du revêtement antireflet avant et après irradiation par microscopie optique ($\lambda = 355 \text{ nm}$, $\tau = 2,5 \text{ ns}$ et $F = 10 \text{ J/cm}^2$).

Les défauts représentés forment des cercles concentriques en surface du revêtement. Généralement, ces défauts n'évoluent pas sous irradiation à 355 nm. Lorsque ces défauts sont centrés autour d'une particule, celle-ci est éliminée par l'irradiation sans affecter l'allure générale du défaut. A l'emplacement de la particule, une trace claire est visible. Elle est similaire à celle observée après irradiation de particules collectées dans la LIL. Des tirs successifs sur ces défauts ne provoquent aucune évolution critique

Une particule intrinsèque au revêtement antireflet et une particule collectée dans la LIL provoquent une modification de surface semblable. Ces modifications n'évoluent pas sous plusieurs irradiations et ne sont donc pas assimilables à des endommagements critiques.

4.4. Conclusion

Nous avons utilisé des substrats de silice représentatifs des composants optiques pour évaluer le comportement sous le rayonnement laser de l'ensemble pollution/composant optique.

Une irradiation laser à une longueur d'onde de 355 nm, une durée d'impulsion de 2,5 ns et une fluence de 10 J/cm^2 provoque l'élimination de 95 % des particules présentes sur un substrat de silice traitée antireflet ou non traitée. Moins de 4 % des particules éliminées provoquent des modifications de surface et seulement en présence du revêtement antireflet. Cette modification de surface ne s'étend pas sous une succession de tirs lasers.

Cette étude démontre que les particules récoltées dans l'environnement de la LIL ne génèrent pas d'endommagement laser critique d'une surface de silice, de type LMJ, sous flux laser à 355 nm.

5. Irradiation des particules « modèles »

Pour compléter l'étude de l'interaction d'un rayonnement laser à 355 nm avec des particules en surface de composants optiques, nous avons étudié des particules « modèles ». Ces particules de nature, de forme et de taille déterminées sont créées par photolithographie

sur un substrat de silice. Dans le chapitre III, nous avons montré que la fluence du laser et la taille de la particule étaient prépondérants sur son comportement et celui du substrat. Ce sont donc ces paramètres que nous étudions à la longueur d'onde de 355 nm.

5.1. Effet de la fluence du laser

Des particules d'aluminium de forme circulaire, de diamètre 50 μm et d'épaisseur 1 μm ont été créées par photolithographie sur un substrat de silice super poli. La face polluée de l'échantillon est positionnée en « face arrière » sur le banc de tenue au flux LUTIN tel que représenté sur la figure IV-17. Chaque particule est soumise à une impulsion laser de longueur d'onde 355 nm, de durée d'impulsion 2,5 ns et à une fluence déterminée.

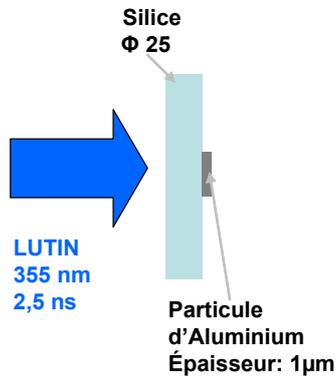


Figure IV- 17 : Schéma d'irradiation des échantillons.

Pour une fluence donnée, une particule est irradiée puis analysée par microscopie optique et par profilométrie. La figure IV-18 montre une comparaison de l'état de différentes particules d'aluminium irradiées à différentes fluences. Elle est composée de clichés des particules irradiées, obtenus dans les mêmes conditions d'éclairage en lumière blanche par microscopie optique. Sur chaque cliché, un trait en tiret indique où les profils, obtenus par profilométrie optique, ont été mesurés. Sur les profils, le trait épais noir et les lignes verticales en pointillés bleus représentent la dimension latérale de la particule avant irradiation : 50 μm . Notons que l'axe des distances est en micromètre alors que les hauteur/profondeur sont en nanomètres. Toutes les valeurs de hauteurs/profondeurs sont mesurées par rapport à la surface de la silice non irradiée.

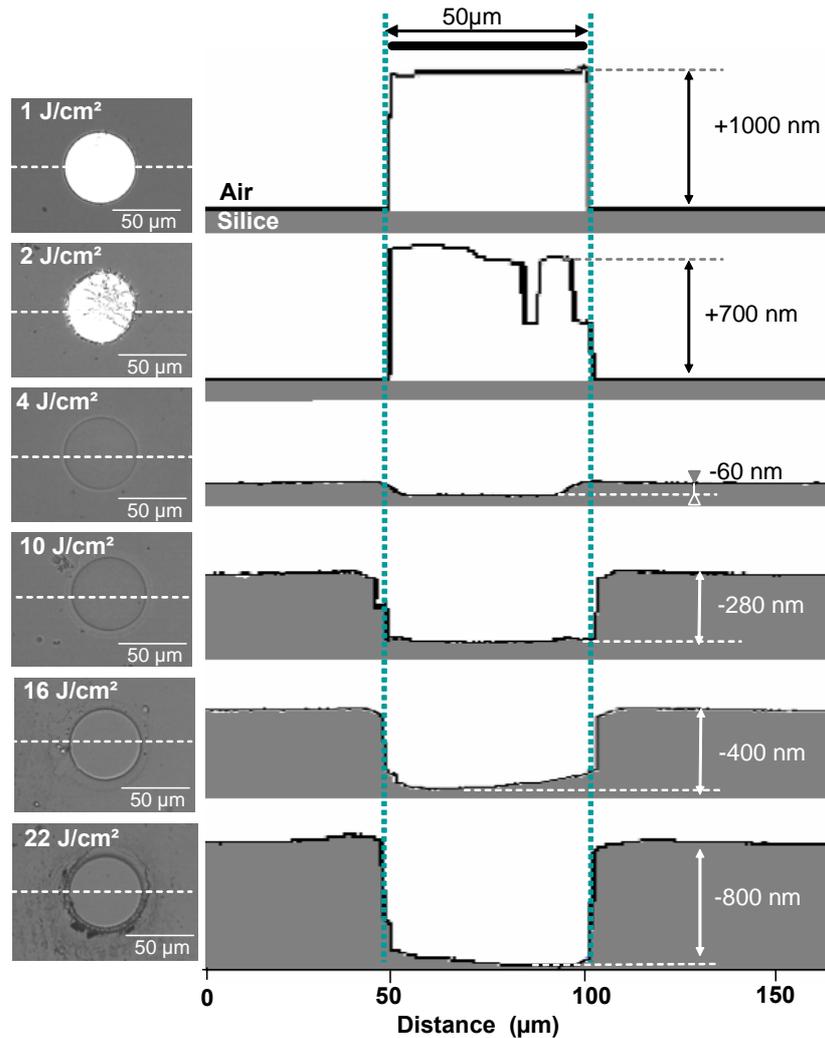


Figure IV- 18 : Particules d'aluminium irradiées à 355 nm, à différentes fluences, observées au microscope optique et au profilomètre.

Le cliché de la particule irradiée à 1 J/cm² est identique à une particule non irradiée. La surface de la particule reste homogène et ses contours bien définis. A 2 J/cm², la surface de la particule est diffusante. Des creux d'environ 350 nm de profondeur et plusieurs micromètres de largeur se sont formés. Leur aspect est faussé par la différence d'unité entre la distance en micromètres sur l'axe des abscisses et la hauteur en nanomètres. A 4 J/cm², sur le cliché, la particule est éliminée. La silice est marquée par les contours de la particule. La mesure au profilomètre montre que cette empreinte correspond à une excavation de 60 nm de profondeur uniforme sur toute la surface de la particule. A 10 J/cm², l'élimination de la particule a laissé une excavation dans la silice d'une surface correspondant à celle de la particule et d'une profondeur de 280 nm. Le diamètre correspond à celui de la particule. De part et d'autre, de très légers bourrelets sont visibles. A 16 J/cm², cette empreinte est plus marquée qu'à 10 J/cm². L'excavation atteint une profondeur de 400 nm. A 22 J/cm², la profondeur de l'excavation atteint 800 nm sur une surface équivalente à celle de la particule initiale. Des légers bourrelets sont encore visibles. Les contours sont marqués de façon plus importante qu'à 16 J/cm² et des points noirs ressemblent à des éclats caractéristiques de l'endommagement laser sont observables.

D'après ces résultats, il apparaît une fluence seuil à partir de laquelle l'aluminium est éliminé. Cette fluence se situe entre 2 et 4 J/cm², la particule d'aluminium est éliminée.

L'aspect de la particule irradiée à 2 J/cm² semble montrer un état liquide qui s'est re-solidifié. Ceci montrerait l'élimination de l'aluminium par un processus thermique. Plus la fluence du laser est élevée, plus l'aluminium est chauffé jusqu'à une température correspondant au changement d'état en phase vapeur. Pour vérifier cette hypothèse, une particule a été irradiée en centrant le tir à quelques micromètres de la particule. Le cliché est représenté sur la figure IV-19.

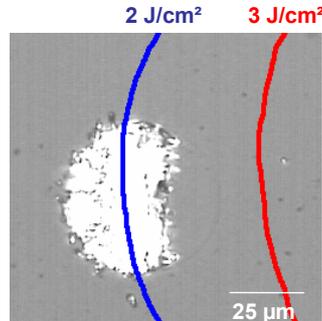


Figure IV- 19 : Particule d'aluminium irradiée à 355 nm, à 3 J/cm² observée au microscope optique.

La partie droite de la particule est éliminée. Elle a été irradiée à une fluence proche de 2,5 J/cm². La partie gauche, irradiée à une fluence inférieure est diffusante. La présence de gouttes brillantes sur les contours externes de la particule montre que l'aluminium a été fondu. La transition entre la zone fondue et vaporisée a l'aspect d'un liquide qui aurait coulé et se serait solidifié. La partie où l'aluminium est vaporisé a laissé une empreinte dans la silice délimitée par le contour du polluant. L'élimination de la particule est un processus thermique de fusion et de vaporisation du métal^{96, 97}.

La figure IV-20 résume les différents comportements observés sur une particule d'aluminium et un substrat de silice soumis à une irradiation laser dont la longueur d'onde du laser est de 355 nm et la durée d'impulsion de 2,5 ns.

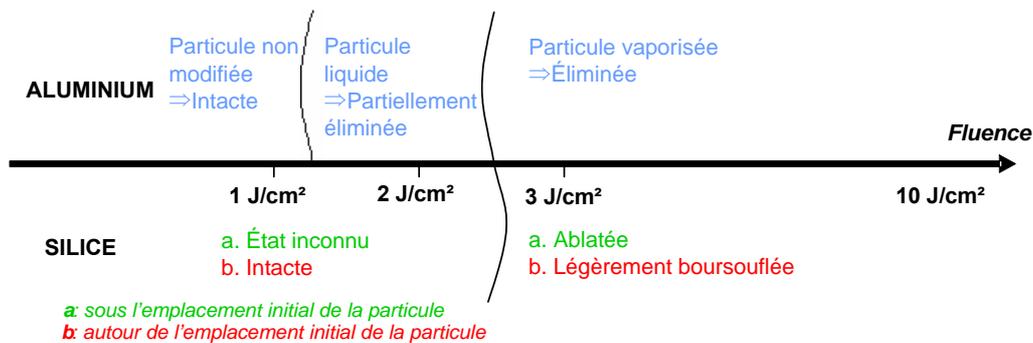


Figure IV- 20 : Schéma bilan de l'effet de la fluence.

A une fluence inférieure à 2 J/cm², la particule reste intacte. Jusqu'à 2,5 J/cm², elle est liquéfiée et donc partiellement éliminée. A une fluence supérieure à 2,5 J/cm², elle est éliminée par vaporisation.

Aucune modification du substrat de silice n'est détectée lorsque la particule n'est pas éliminée. Lorsque la particule est éliminée, la silice est marquée par une excavation dont la forme correspond à celle de la particule initiale et la profondeur croît avec la fluence

⁹⁶ E. Matthias, J. Siegel, S. Petzoldt, M. Reichling, H. Skurk, O. Kading, E. Neske. In-situ investigation of laser ablation of thin films, thin solid film **254**, 139 (1995).

⁹⁷ Y.Y. Tsui, R. Fedosejevs, C.E. Capjack. Vaporization of aluminium by 50ps laser pulses, J. Appl. Phys. **80**, 509 (1996).

d'irradiation. Indépendamment de la fluence, autour de cette excavation, de légers renflements sont souvent visibles.

Dans la suite de ce travail, des mesures expérimentales complémentaires ont été réalisées pour tester l'effet de la taille des particules.

5.2. *Influence de la taille de la particule*

Grâce aux résultats de caractérisation de la pollution émise dans le SCF, nous avons montré la présence de particules de dimension comprise entre 3 et 100 μm . En utilisant des particules d'aluminium « modèles » d'une forme circulaire de 50 μm de large et 1 μm d'épaisseur, l'effet du rayonnement laser sur une particule d'aluminium a été étudié. Nous cherchons à connaître l'influence de la taille de la particule dans cette interaction rayonnement laser/particule/substrat. Nous avons donc préparé des particules semblables mais de taille différente. Des particules d'aluminium, de forme circulaire, d'1 μm d'épaisseur et de 7 μm de diamètre ont été préparées par photolithographie sur un substrat de silice super poli. L'échantillon est utilisé dans les mêmes conditions que celles mise en place pour l'étude des particules de 50 μm de large. Il est observé au microscope optique puis placé sur le banc de tenue au flux LUTIN dont la durée d'impulsion est 2,5 ns. Les particules irradiées en « face arrière » tel que représenté sur la figure IV-17. Différentes fluences d'irradiation sont utilisées. Les particules sont ensuite caractérisées par microscopie optique et profilométrie, afin de les comparer avec les particules de 50 μm de large.

Les résultats obtenus après une irradiation à une fluence déterminée sont représentés sur la figure IV-21. Elle est composée d'un cliché obtenu dans les mêmes conditions d'éclairage pour chaque particule (a), d'une cartographie de hauteur/profondeur (b) et d'un profil (c). Sur chaque cartographie (b), un trait en tiret indique le choix du profil tracé (c). Sur ces derniers, la dimension latérale de la particule est représentée sur les profils par un trait épais noir et des pointillés bleus verticaux. Toutes les hauteurs (valeurs positives) et profondeurs (valeurs négatives) sont mesurées à partir de la surface de la silice.

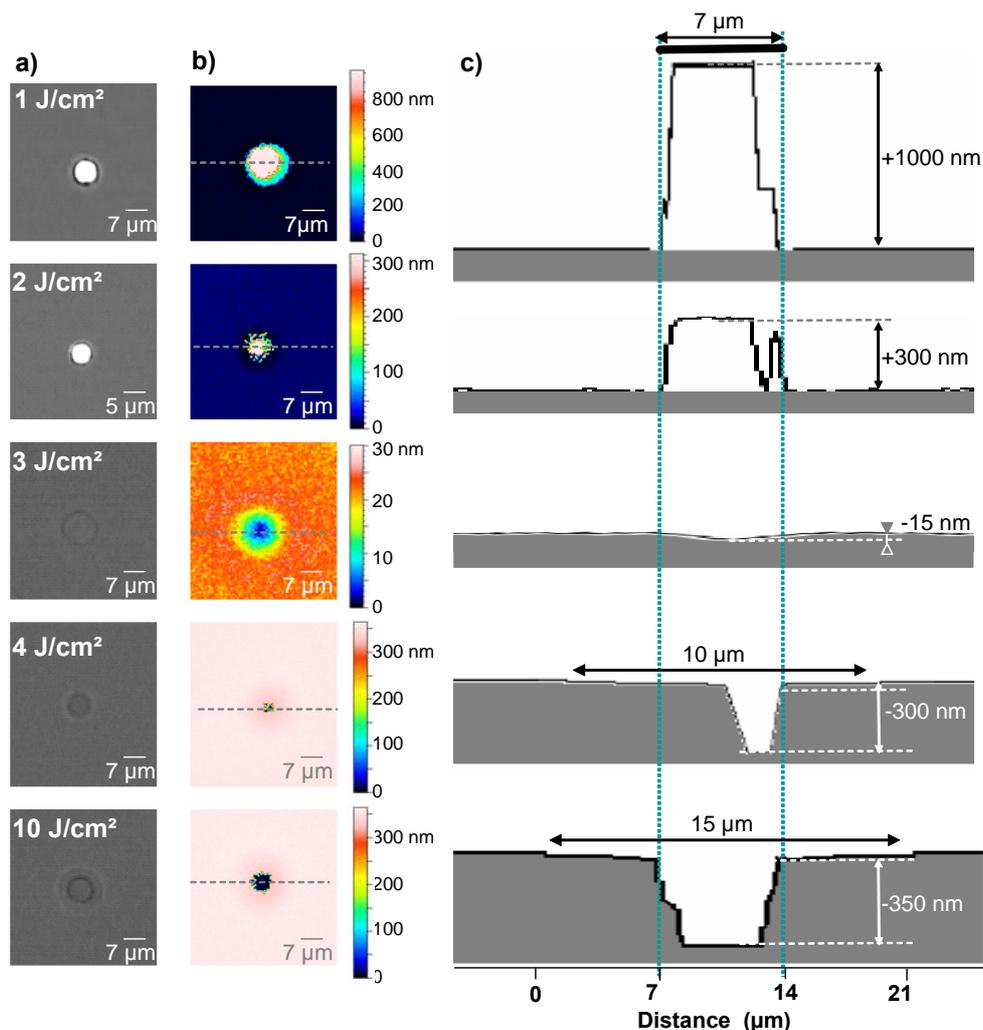


Figure IV- 21 : Particules d'aluminium irradiées à 355 nm, à différentes fluences, observées au microscope optique (a) et au profilomètre (b et c).

Une particule irradiée à 1 J/cm² est identique à une particule non irradiée. La cartographie de hauteur/profondeur et le profil montrent une particule de 7 µm de large à la base dont la hauteur est 1 µm. A 2 J/cm², la particule semble intacte sur le cliché. La cartographie et le profil révèlent une surface inhomogène dont la hauteur maximale est 300 nm. Une hauteur moins importante est mesurée très ponctuellement sur plusieurs zones très localisées autour de la particule en forme de gouttelettes. Cette diminution de la hauteur initiale de la particule et la présence de gouttelettes montre qu'à 2 J/cm², l'aluminium a été liquéfié et partiellement éliminé. A 3 J/cm², la particule est éliminée. Le cliché fait apparaître une marque sombre. Sur le profil, cette marque correspond à une excavation de 15 nm de profondeur. A 4 J/cm², la particule est également éliminée et une marque similaire à celle observée après une irradiation à 3 J/cm² est visible sur le cliché. Par contre, le profil montre une excavation d'environ un micromètre de large pour une profondeur de 300 nm à l'emplacement initial de la particule. Autour de cette excavation, une légère cuvette de 10 µm de large et d'une profondeur de 25 nm s'est formée. A 10 J/cm², la particule qui est éliminée laisse une auréole sur ses contours en plus de l'empreinte. Cette marque correspond à une excavation de la largeur de la particule et de 350 nm de profondeur. La cuvette qui l'entoure est légèrement plus large et plus profonde que celle observée à 4 J/cm².

À la vue des clichés, l'élimination par irradiation laser de la particule de 7 µm de large présente des similitudes avec celle de 50 µm de large. Cependant sur la silice, de nombreuses

différences sont observées. Par exemple, des renflements sont visibles autour de l'excavation créée sous l'emplacement de la particule de 50 μm de large alors qu' autour de l'emplacement de la particule de 7 μm de large, une cuvette apparaît. L'évolution de la profondeur et du diamètre de cette cuvette en fonction de la fluence est représentée sur la figure IV-22. Un trait rouge met en évidence l'absence de cuvette pour particules de 50 μm de large. La profondeur est exprimée en nanomètres et le diamètre en micromètres.

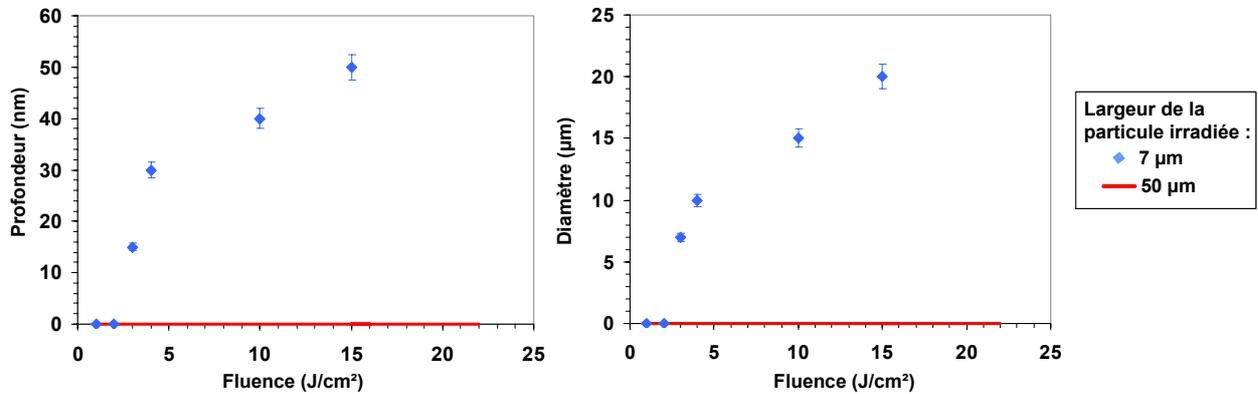


Figure IV- 22 : Evolution de la profondeur et du diamètre de la cuvette formée après irradiation de particules de 7 et 50 μm de côté, en fonction de la fluence.

Pour les particules de 7 μm de diamètre, la profondeur de la cuvette augmente avec la fluence. Elle est de l'ordre de 15 nm après une irradiation à 3 J/cm^2 et de 50 nm après une irradiation à 15 J/cm^2 . Le diamètre évolue comme la profondeur : il augmente avec la fluence. La cuvette peut s'étendre jusqu'à 20 μm autour de l'emplacement de la particule après une irradiation à 15 J/cm^2 . Après irradiation aux différentes fluences des deux tailles de particules, une évolution très différente est observée.

De nouveau, pour les deux tailles de particules, la comparaison de l'excavation initiée par l'irradiation des particules ne montre pas un comportement semblable. Une autre différence est observée. Sur la figure IV-23, nous comparons les valeurs d'excavation maximale obtenues entre une particule de 7 μm de large et une de 50 μm , à différentes fluences d'irradiation.

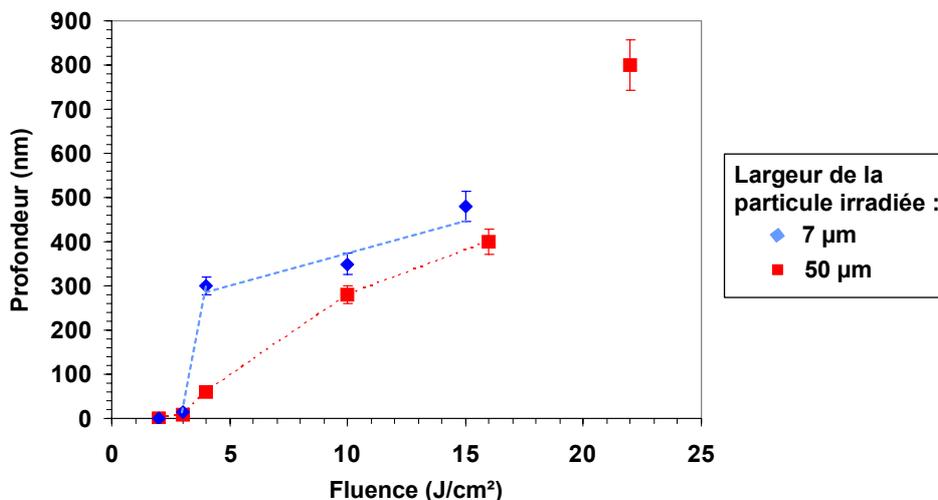


Figure IV- 23 : Profondeur maximale de la silice après irradiation à différentes fluences des particules déposées.

A une fluence de 3 J/cm², l'irradiation laser de la particule provoque une très faible excavation du même ordre de grandeur pour les deux tailles de particules. Pour une fluence d'irradiation supérieure à 3 J/cm², l'aluminium est vaporisé provoquant une excavation dans la silice. Pour les particules de 50 µm de large, la profondeur maximale atteinte augmente progressivement avec la fluence. Pour les particule de 7 µm de large, une très forte augmentation est mesurée entre 3 et 4 J/cm² puis semble augmenter plus faiblement de façon linéaire (cf. figure III.35). Cette différence de comportement a déjà été observée dans le chapitre III avec une longueur d'onde de 1064 nm.

Une des hypothèses, précédemment avancée dans la partie III.4.3, est un échauffement différent de la silice entre les particules de 7 µm et de 50 µm de large. Lors de l'irradiation d'une grande particule, l'aluminium absorbe l'énergie et chauffe la silice de façon homogène. L'énergie laser peut être diffusée sur une surface relativement étendue de la particule. Lors de l'irradiation d'une petite particule, la silice est chauffée localement sur une surface moindre. Cette chaleur intense et ponctuelle peut créer une zone de fragilisation. La silice chauffée et fragilisée peut se fracturer et/ou s'ablater localement et de façon inhomogène.

Pour confirmer cette hypothèse, nous comparons les fluences nécessaires pour créer un endommagement laser critique à partir des particules de 7 et 50 µm de large. Après une irradiation à 22 J/cm², nous avons vu quelques éclats se former autour de la grosse particule. Sur une particule semblable irradiée à 25 J/cm² et représentée sur la figure IV-24a, le seuil d'endommagement de la silice est clairement atteint. Un endommagement laser critique s'étend sur tout le contour de la particule. Pour la petite particule représentée sur la figure IV-24b, l'endommagement critique de la silice apparaît à une fluence moins élevée de 17 J/cm². Il englobe toute la surface couverte par la particule.

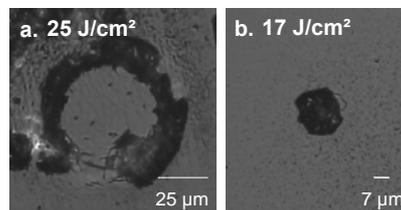


Figure IV- 24 : Particules d'aluminium de 50 µm de large irradiée à 25 J/cm² (a) et de 7 µm de large irradiée à 17 J/cm² (b) ($\lambda=355$ nm, $\tau=2,5$ ns).

Une particule d'aluminium de 7 µm placée sur la « face arrière » d'un substrat de silice sous un rayonnement laser d'une longueur d'onde de 355 nm avec une durée d'impulsion de 2,5 ns provoque un endommagement laser critique à une fluence moins élevée qu'une particule semblable de 50 µm de large.

Pour les deux dimensions de polluants étudiées (50 µm × 50 µm × 1 µm et 7 µm × 7 µm × 1 µm), un comportement similaire des particules est observé. Elles sont éliminées à une fluence légèrement inférieure à 3 J/cm² pour un faisceau laser d'une longueur d'onde de 355 nm avec une durée d'impulsion de 2,5 ns.

Lorsque la particule est vaporisée, une excavation apparaît dans la silice. Des états de surface différents sont obtenus entre les deux tailles de polluant. La petite particule génère, sous irradiation laser, une excavation dans le substrat de silice plus profonde autour de laquelle se forme un creux en forme de cuvette de profondeur moindre. La grande particule fait apparaître un renflement autour de l'excavation.

Cette différence de comportement est confortée par un abaissement de 30 % du seuil d'endommagement laser critique initié par une particule de 7 μm de large par rapport à une particule de 50 μm .

5.3. Conclusion

Nous avons utilisé des substrats de silice représentatifs des composants optiques, pollués par des particules d'aluminium obtenues par photolithographie. Ces particules « modèles » dont l'épaisseur est de 1 μm ont été irradiées en « face arrière », à une longueur d'onde de 355 nm, et une durée d'impulsion de 2,5 ns.

L'analyse des particules irradiées a montré l'effet de la fluence sur le comportement de la particule et celui du substrat. À une fluence inférieure à 2 J/cm², la particule reste intacte. Entre 2 et 3 J/cm², elle est liquéfiée et donc partiellement éliminée. A une fluence supérieure à 3 J/cm², elle est vaporisée et donc éliminée. Lorsque la particule est éliminée, une excavation apparaît dans la silice. Ses dimensions latérales correspondent à celles de la particule initiale et la profondeur croît avec la fluence d'irradiation. Indépendamment de la fluence, autour de cette excavation, de légers renflements sont souvent visibles.

Nous avons montré que la taille des particules avait également une influence sur la morphologie de la silice. La petite particule génère sous irradiation laser une excavation dans le substrat de silice plus profonde autour de laquelle se forme un creux en forme de cuvette de profondeur moindre. La grande particule fait apparaître un renflement autour de l'excavation. Dans les deux cas, aucun endommagement laser critique n'est observé à une fluence inférieure à 15 J/cm².

Pour compléter notre étude sur les particules « modèles », nous nous aidons de la simulation numérique.

6. Simulations numériques de l'interaction rayonnement laser/particule/substrat

De manière à compléter et à mieux interpréter notre étude expérimentale à partir des défauts « modèles », nous utilisons le code ESTHER. Il permet d'évaluer le comportement de la particule d'aluminium et du substrat de silice sous un rayonnement laser. Pour cela, nous considérons, comme nous l'avons défini au chapitre III.5, un substrat de silice sur lequel une couche de 8 nm d'oxyde d'aluminium sert d'interface avec une couche de 992 nm d'aluminium. Chaque matériau est défini par des grandeurs géométriques, telles que l'épaisseur du matériau et le nombre de mailles, ainsi que des grandeurs physiques telles que l'équation d'état, la conductivité thermique, les indices optiques... Le faisceau laser est caractérisé par une impulsion gaussienne, de longueur d'onde, de durée d'impulsion, de polarisation, et d'angle d'incidence déterminés. Pour toutes les simulations présentées dans cette partie, la longueur d'onde est de 355 nm, la durée d'impulsion de 2,5 ns, la polarisation S et l'irradiation s'effectue selon un angle d'incidence de 90°, « en face arrière ». La lame de silice est donc orientée de façon à être irradiée directement par la face qui n'est pas en contact avec la particule. Des simulations sont réalisées pour tester l'effet de la fluence du laser sur le comportement de l'aluminium et de la silice. Ces résultats sont comparés aux observations

expérimentales. Dans la deuxième partie, nous évaluons par ces mêmes comparaisons l'influence de la durée d'impulsion du laser.

6.1. Effet de la fluence

Les simulations sont réalisées à des fluences de 1 à 22 J/cm². Pour chacune d'entre elle, nous analysons l'évolution de la température, de la masse volumique et de la position des mailles. L'évolution de la température permet de connaître l'état thermique des matériaux (solide/liquide/vapeur). Celle de la masse volumique traduit un effet de densification et/ou de dilatation des matériaux. Enfin, la position des mailles permet de visualiser le comportement de l'aluminium et de la silice.

La figure IV-25 est composée de trois graphiques représentant la température (a), la masse volumique (b) et la position des mailles (c) après une irradiation à 1 J/cm². Afin de les rendre lisibles, seulement trois mailles sont représentées dans l'aluminium (en rouge) et trois dans la silice (en bleu). Pour l'aluminium, il s'agit de la maille la plus proche de l'interface avec la silice (8 nm ; tirets), la maille centrale de la couche (500 nm ; pointillés) et la maille de l'interface avec l'air (1000 nm ; trait plein). Dans le cas de la silice, la maille de l'interface avec l'oxyde d'aluminium (0 nm ; tirets) ainsi que les symétriques de l'aluminium (-500 nm ; pointillés et -1000 nm ; trait plein) sont représentées. Enfin l'impulsion laser est également indiquée sur le graphique (a).

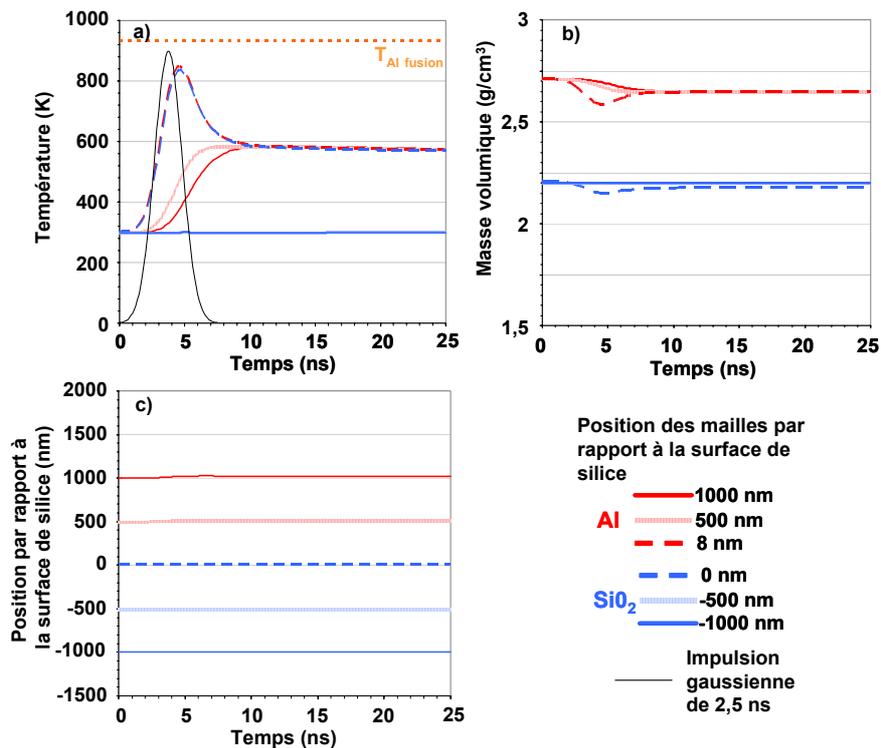


Figure IV- 25 : Evolution de la température (a), de la masse volumique (b), et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice (c) pendant une irradiation laser à 1 J/cm² ($\lambda=355$ nm, $\tau=2,5$ ns).

Le graphique (a) montre que les deux mailles proches de la surface de référence (0 nm) ont la même évolution. Elles atteignent la température maximale de 850 K. Dès que l'impulsion laser est terminée, la température devient homogène dans la couche métallique autour de 600 K. Dans la silice, pour les mailles plus éloignées de la surface de référence, aucune augmentation de température n'est observée.

Le graphique (b) montre que la masse volumique de l'aluminium et de la silice varie peu ; elle suit les variations de température. Une très faible dilatation du métal est observable sur le graphique (c).

A 1 J/cm^2 , la température atteinte dans l'aluminium n'est pas assez élevée pour provoquer sa fusion et une très faible dilatation s'opère. La silice n'est quasiment pas affectée.

Les résultats obtenus à une fluence de 2 J/cm^2 sont représentés sur la figure IV-26. Chacun des graphiques représente les paramètres identiques à ceux définis pour 1 J/cm^2 (Cf. figure IV-25).

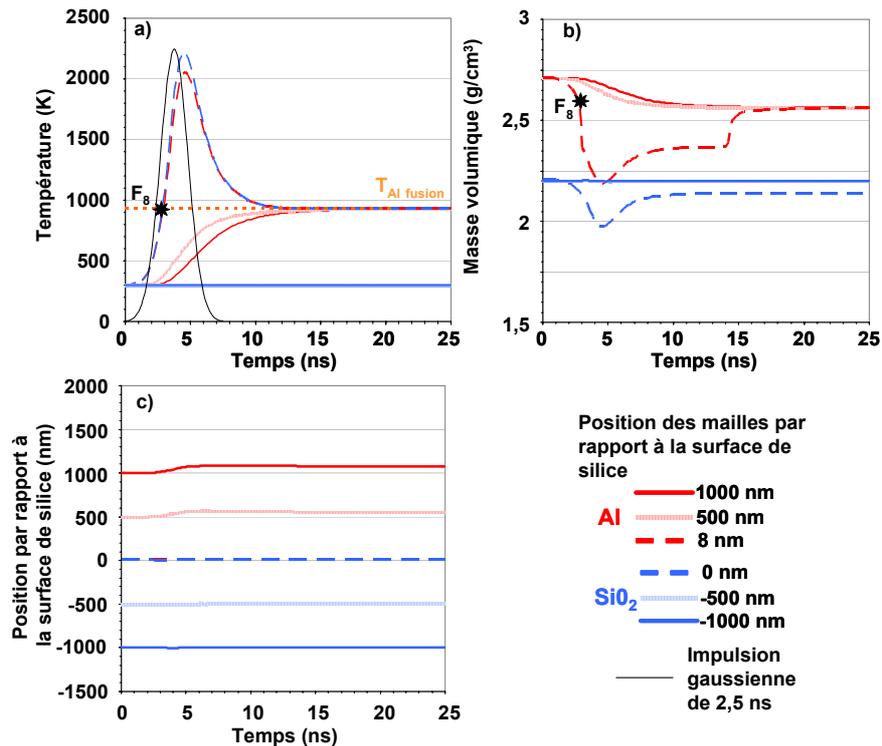


Figure IV- 26 : Evolution de la température (a), de la masse volumique (b), et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice (c) pendant une irradiation laser à 2 J/cm^2 ($\lambda=355 \text{ nm}$, $\tau=2,5 \text{ ns}$).

Le graphique (a) montre que les mailles proches de la surface de référence dans l'aluminium comme dans la silice ont une évolution semblable et atteignent une température maximale autour de 2000-2200 K. Seulement quelques nanosecondes après la fin de l'impulsion laser, la température devient homogène dans la couche d'aluminium. Elle est voisine de la température de fusion de l'aluminium. Malgré une température supérieure à 2000 K en surface, la silice ne présente aucune augmentation de température à une profondeur de 500 nm. L'annotation F_8 indique la transition entre l'état solide et l'état liquide de l'aluminium pour la maille à 8 nm. Elle correspond sur le graphique (b) à une diminution brutale de la masse volumique du métal. Les mailles à 500 nm et à 1000 nm, plus éloignées du point chaud qui est situé près de l'interface avec la silice, ne subissent pas cette variation rapide. Ceci signifie que la couche d'aluminium n'est pas liquéfiée dans sa totalité.

Cette liquéfaction de l'aluminium même partielle provoque une augmentation de volume de la couche d'environ 150 nm comme le montre la maille externe sur le graphique (c). Dans la silice, malgré une diminution de près de 10 % de la masse volumique au niveau de la maille de surface (graphique b), aucune dilatation sensible n'est observée (graphique c).

A 2 J/cm², la température atteinte dans l'aluminium provoque sa liquéfaction et une augmentation de volume. La silice n'est que faiblement affectée.

A une fluence plus importante de 4 J/cm², les résultats obtenus sont représentés sur la figure IV-27. Chacun des graphiques représente les paramètres identiques à ceux définis à 1 J/cm² (Cf. figure IV-25).

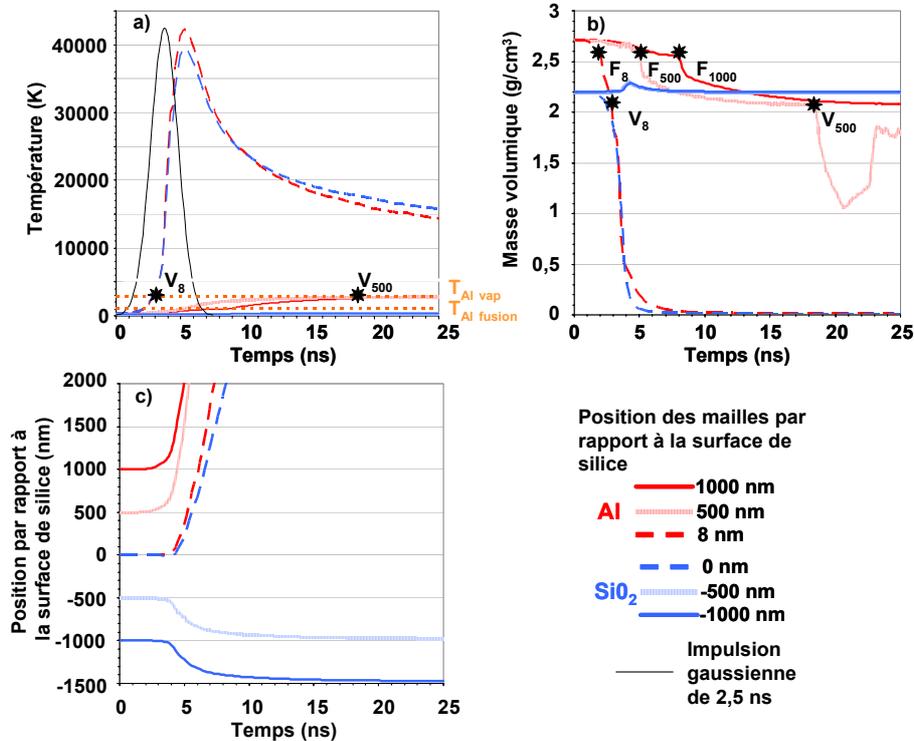


Figure IV- 27 : Evolution de la température (a), de la masse volumique (b), et de la position d'une couche d'aluminium sur un substrat de silice (c) pendant une irradiation laser à 4 J/cm² ($\lambda=355$ nm, $\tau=2,5$ ns).

Le graphique (a) montre que les mailles proches de la surface de référence, dans l'aluminium et dans la silice, atteignent une température de 40000 K à la fin de l'impulsion laser. Avant d'atteindre cette température, la maille d'aluminium subit très rapidement deux changements d'état (seul celui correspondant à la transition liquide/vapeur est représenté et noté V₈). La température de la couche d'aluminium tend à devenir homogène dans la couche d'aluminium mais, à la fin du calcul (25 ns), l'écart entre la température dans les mailles à 500 nm et à 1000 nm de la surface de silice et celle de la maille à 8 nm est toujours important. Malgré ce fort gradient de température, la couche métallique semble entièrement vaporisée.

Le graphique (b) montre que les mailles de l'aluminium à 8 nm et 500 nm de la surface subissent, à des instants différents, deux diminutions très importantes de leur masse volumique correspondant à la transition solide/liquide et liquide/vapeur. Seulement 1 ns après la vaporisation des mailles de silice et l'aluminium proche de l'interface, les mailles de silice situées aux profondeurs de -500 et -1000 nm sont légèrement densifiées puis recouvrent leur état initial. Ceci traduit le passage d'une onde de choc créée par l'éjection brutale de l'aluminium.

Le graphique (c) montre, la vaporisation de la totalité de la couche métallique avec une vitesse d'environ 650 m/s et un déplacement de la silice non ablatée de 550 nm induit par l'onde de choc. Celle-ci retrouve son état initial lors de la détente du substrat (un calcul beaucoup plus long serait nécessaire).

Pour mesurer la profondeur de silice ablatée, il est nécessaire de tracer plusieurs mailles intermédiaires entre la surface qui est vaporisée et la profondeur de 500 nm qui est faiblement chauffée. La figure IV-28(a) représente l'évolution dans le temps de la position des mailles de silice, uniquement. De façon à l'observer plus précisément, un nombre plus important de mailles est tracé. Chacune correspond à une profondeur déterminée à l'instant 0 par rapport à la surface de la silice. Les mailles vaporisées sont en pointillés. Une représentation similaire pour une irradiation à 10 J/cm² est donnée sur la figure IV-28(b).

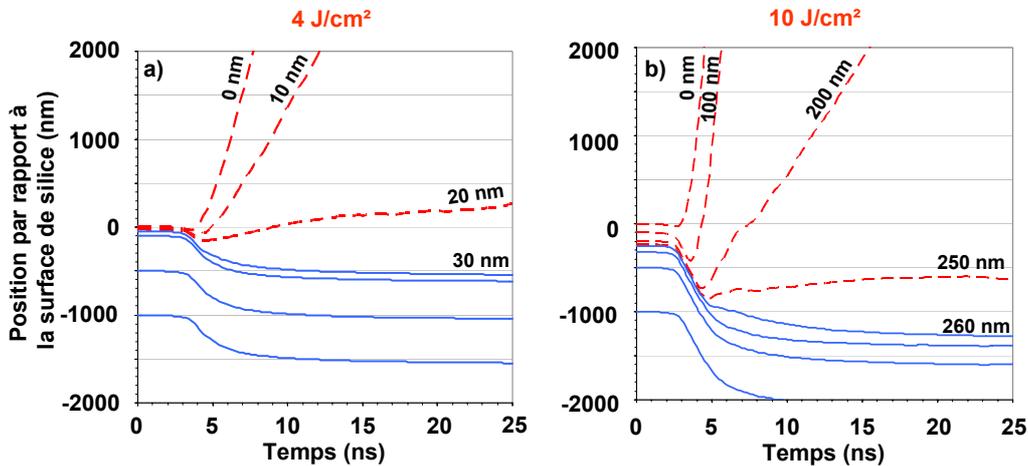


Figure IV- 28 : Evolution de la position de la silice pendant une irradiation laser à 4 et 10 J/cm² ($\lambda=355$ nm et $\tau=2,5$ ns).

Le cas à 4 J/cm² (IV-28.a) montre qu'une épaisseur de 20 nm de silice est vaporisée. Les couches suivantes sont liquéfiées et restent en surface. En se refroidissant, elles forment un nouvel état de surface. A 10 J/cm² (IV-28.b), les mêmes phénomènes se déroulent. L'énergie étant plus importante, la profondeur de silice ablatée est également plus importante : 250 nm.

A partir d'une fluence de 4 J/cm², la couche d'aluminium est violemment vaporisée. Une épaisseur de quelques dizaines de nanomètres de silice est également vaporisée. Cette profondeur ablatée croît avec la fluence du rayonnement laser.

Nous avons évalué par simulation numérique le comportement de l'aluminium et celui de la silice sous un rayonnement laser de longueur d'onde 355 nm et une durée d'impulsion de 2,5 ns. Pour des fluences d'irradiation supérieures ou égales à 4 J/cm², nous avons observé l'élimination de la particule métallique et la vaporisation des couches superficielles de la silice. Nous comparons les profondeurs calculées de cette silice ablatée avec celles mesurées expérimentalement (cf. figure. IV-18). Dans la figure IV-29, nous avons relevé ces profondeurs pour chacune des fluences utilisées.

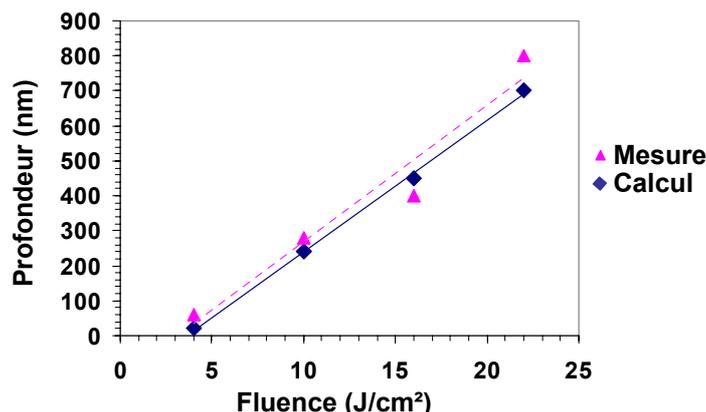


Figure IV- 29 : Comparaison entre les profondeurs de silice ablatée mesurées expérimentalement et calculées après irradiation ($\lambda=355$ nm, $\tau=2,5$ ns).

Les profondeurs mesurées expérimentalement sont proches de celles calculées. Les résultats obtenus par la simulation comme par l'expérience montrent une croissance quasi linéaire de la profondeur de silice ablatée en fonction de la fluence d'irradiation. Les courbes d'ajustement sont parallèles. Ceci confirme un bon accord entre la théorie et l'expérience.

La simulation numérique avec le code monodimensionnel ESTHER a permis de préciser l'interaction du rayonnement laser à une longueur d'onde 355 nm, une durée d'impulsion de 2,5 ns avec une particule d'aluminium déposée en face arrière d'un substrat de silice. Le rayonnement provoque un échauffement de l'aluminium en contact avec la silice. Cette chaleur diffuse dans l'épaisseur de la particule. A 2 J/cm², l'aluminium se liquéfie entraînant une augmentation de volume. Jusqu'à cette fluence, la silice est très peu affectée. A des fluences supérieures ou égales à 4 J/cm², l'aluminium est violemment vaporisé et une profondeur de silice de quelques dizaines de nanomètres est ablatée. A l'emplacement de la particule initiale, une épaisseur de silice de quelques dizaines de nanomètres est fondue puis re-solidifiée.

La bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et les calculs valide l'utilisation du code ESTHER dans le cadre des études de polluants métalliques au contact d'un substrat de silice sous un rayonnement laser à 355 nm.

6.2. Effet de la durée d'impulsion

Dans le chapitre III, nous avons étudié l'irradiation de polluant à la longueur d'onde de 1064 nm. La plupart des résultats présentés ont été obtenus après irradiation laser sur le banc BLANCO qui délivre des impulsions de 6,5 ns. Par contre, le banc laser LUTIN utilisé pour les irradiations à 355 nm fournit des impulsions laser de 2,5 ns. Quel que soit le banc laser utilisé, sa durée d'impulsion diffère de celle du faisceau laser LIL qui est de l'ordre de 3 ns. Cette durée d'impulsion est invariable. Pour extrapoler nos résultats obtenus à différentes durées d'impulsions, il existe une relation empirique valable pour des durées d'impulsion τ dans le régime nanoseconde qui montre que la fluence seuil d'endommagement de la silice F est proportionnelle à $\tau^{0,5}$ ⁹⁸. Or nos résultats montrent l'ablation d'une silice polluée qui diffère de l'endommagement créé après irradiation sur une silice non polluée. Il convient donc de

⁹⁸ B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, M.D. Perry. Laser induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses, Phys. Rev. Let. **74**, 2248 (1995).

s'assurer que cette relation est applicable dans le cas d'une modification de surface de la silice générée par la présence de polluant et pour des fluences inférieures au seuil d'endommagement laser intrinsèque.

Pour cela, nous utilisons les résultats expérimentaux obtenus avec une durée d'impulsion de 6,5 ns à 1064 nm (cf. chapitre III.4.2) et les simulations effectuées au moyen du code ESTHER avec la même longueur d'onde et une durée d'impulsion de 2,5 ns. Dans le cas expérimental, nous appliquons la relation en $\tau^{0,5}$ pour déterminer les fluences correspondantes à 2,5 ns pour obtenir la même ablation que celle observée à 6,5 ns. La figure IV-30 représente les profondeurs de silice ablatées mesurées (triangles roses), recalées (triangles oranges) et calculées (losanges bleus).

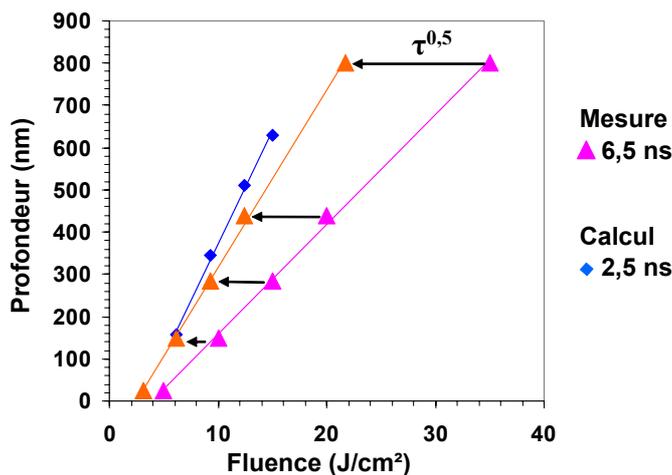


Figure IV- 30 : Profondeurs de silice ablatée mesurées à $\lambda=1064$ nm et 6,5 ns et calculées à 2,5 ns.

L'amplitude de l'ablation qui augmente avec la fluence est fortement liée à la durée d'impulsion du laser. Les profondeurs expérimentales initialement obtenues à 6,5 ns qui sont recalées à une fluence équivalente à 2,5 ns sont comparables avec celles calculées à 2,5 ns. Nous montrons ainsi que la relation en $\tau^{0,5}$ peut s'appliquer au cas d'une silice polluée irradiée à 1064 nm.

Dans le cas à 355 nm, nous effectuons la même démarche. Comme précédemment, nous représentons les profondeurs de silice ablatées mesurées (triangles roses), recalées (triangles oranges) et calculées (losanges bleus) sur la figure IV-31.

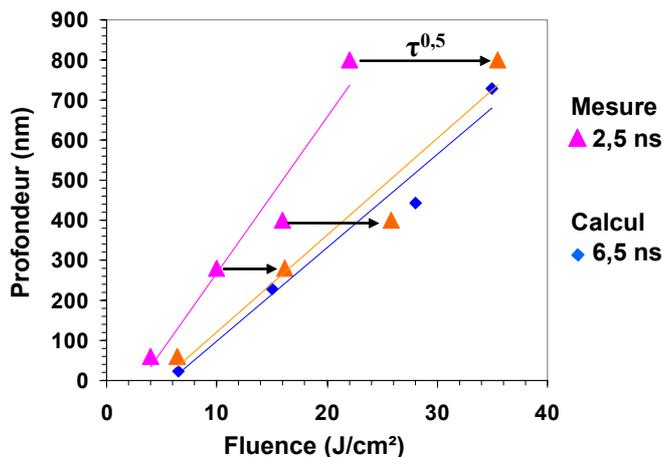


Figure IV- 31 : Profondeurs de silice ablatée mesurées à $\lambda=351$ nm et 2,5 ns et calculées à 6,5 ns.

De nouveau, les résultats de simulations à 6,5 ns sont très différents des mesures expérimentales à 2,5 ns. Après recalage de l'expérience à 6,5 ns, un très bon accord est

observé entre la mesure et le calcul. Nous montrons ainsi que la relation en $\tau^{0,5}$ peut s'appliquer au cas d'une silice polluée irradiée à 355 nm.

La relation en $\tau^{0,5}$ qui établit une proportionnalité entre la durée d'impulsion et la fluence dans le domaine des nanosecondes s'applique également dans le cas d'une silice polluée.

6.3. Conclusion

Nous avons utilisé la simulation numérique avec le code monodimensionnel ESTHER pour compléter l'étude d'un substrat de silice dont la « face arrière » est polluée par une particule d'aluminium d'1 μm d'épaisseur sous un rayonnement laser de longueur d'onde 355 nm, et de durée d'impulsion 2,5 ns.

Nous avons montré que le comportement de la particule était très lié à la fluence d'irradiation. A 1 J/cm^2 , la température atteinte dans l'aluminium n'est pas assez élevée pour provoquer sa fusion et une faible dilatation s'opère. La silice n'est quasiment pas affectée. A 2 J/cm^2 , l'aluminium est liquéfié et se dilate. La silice n'est que faiblement affectée. A partir d'une fluence de 4 J/cm^2 , la couche d'aluminium est violemment vaporisée. Une épaisseur de quelques dizaines de nanomètres de silice est également vaporisée. Cette profondeur ablatée croît avec la fluence du rayonnement laser.

La bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et les calculs valide l'utilisation du code ESTHER pour les études de polluants métalliques au contact d'un substrat de silice sous rayonnement laser de longueur d'onde de 355 nm.

Nous avons démontré que, dans le cas d'une silice polluée, une ablation du substrat de même profondeur apparaît pour toute fluence proportionnelle à $\tau^{0,5}$ dans le domaine des nanosecondes même si l'endommagement critique n'est pas atteint.

7. Comparaison entre les résultats obtenus après irradiation à 355 nm et à 1064 nm

Tout au long de ce chapitre, nous avons observé de nombreuses similitudes entre les résultats obtenus après irradiation à 355 nm et ceux à 1064 nm. Dans cette partie, nous les comparons afin de mettre en évidence les particularités observées sur la particule ou sur le substrat de silice après irradiation laser à chacune des longueurs d'onde.

7.1. Effet de la longueur d'onde sur le comportement de la particule

Nous avons étudié des particules d'aluminium « modèles » d'1 μm d'épaisseur, de 50 μm de large en « face arrière » d'un substrat de silice sous un faisceau laser de longueur d'onde 1064 ou 355 nm et de durée d'impulsion de 6,5 ou 2,5 ns respectivement. Dans les deux cas, selon la fluence d'irradiation, nous avons observé l'aluminium solide, liquéfié ou vaporisé. Ces changements de phase ont été simulés au moyen du code ESTHER. Une illustration des

résultats est représentée sur la figure IV-32. Elle est composée de six graphiques qui montrent l'évolution de la position des mailles et la température associée. A 1064 nm, nous avons représenté les cas réalisés aux fluences de 3, 5 et 10 J/cm² et à 355 nm, 2, 4 et 10 J/cm². Sur chacun des graphiques, la couche d'aluminium pendant la première nanoseconde est schématisée par un rectangle gris.

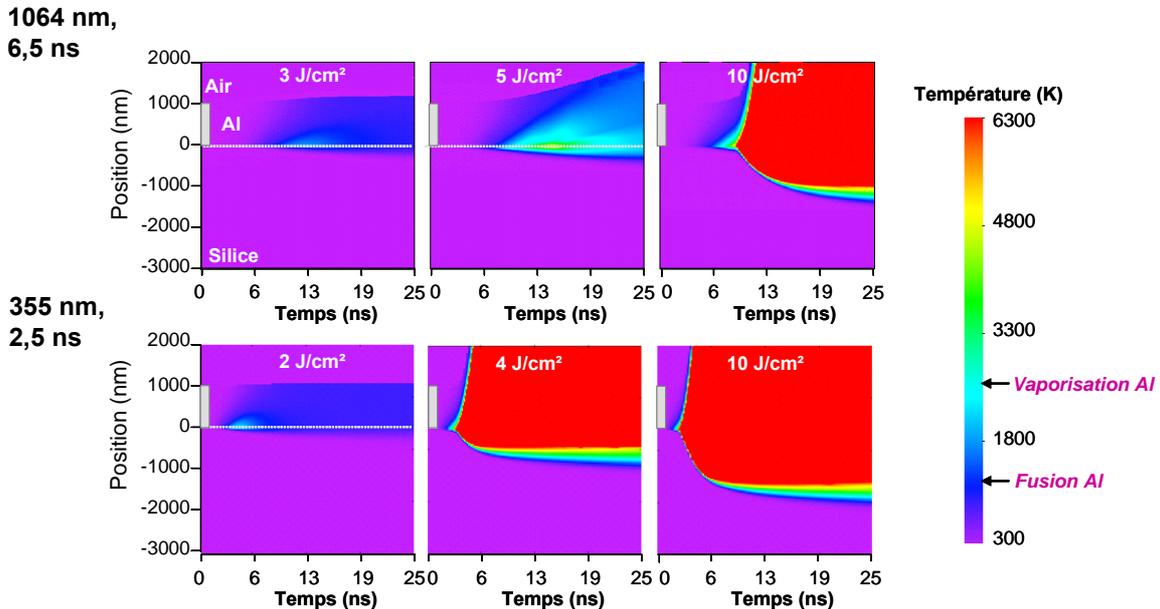


Figure IV- 32 : Récapitulatif des résultats d'ESTHER.

Dans le cas d'une irradiation à 1064 nm, 6,5ns et à 3 J/cm² l'aluminium est simplement dilaté, à 5 J/cm² il se liquéfie et s'élimine partiellement et, pour une fluence de 10 J/cm², il est vaporisé et totalement éliminé.

Dans le cas d'une irradiation à 355 nm, 2,5ns, à 2 J/cm² l'aluminium est simplement dilaté, par contre dès 4 J/cm², il est vaporisé et totalement éliminé. A 10 J/cm², la vaporisation est plus violente.

Un récapitulatif de l'évolution de l'aluminium en fonction de la fluence est schématisé sur la figure IV-33. La partie (a) compare les deux longueurs d'onde 355 nm et 1064 nm avec des durées d'impulsion respective de 2,5 et 6,5 ns. Pour s'affranchir des différences durées d'impulsion, dans la partie (b) nous ramenons les fluences à 2,5 ns en appliquant la loi en $\tau^{0,5}$.

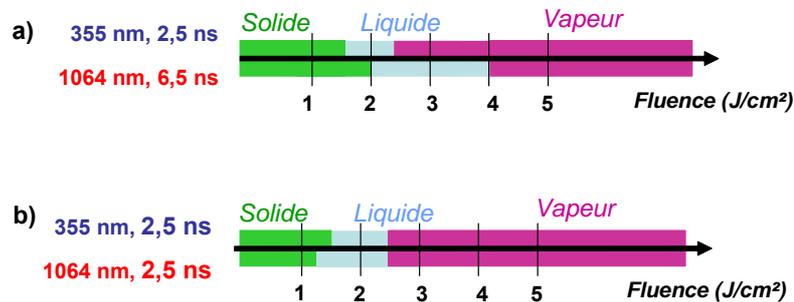


Figure IV- 33 : Etat de l'aluminium en fonction de la fluence d'irradiation et de la longueur d'onde pour une même durée d'impulsion de 2,5 ns.

La partie (b) de la figure montre que grâce au recalage temporel, les changements de phase sont effectifs à des fluences équivalentes quelle que soit la longueur d'onde.

Malgré un coefficient de réflexion de l'aluminium légèrement plus élevé à 1064 nm (0,95) qu'à 355 nm (0,92) et, par conséquent, un coefficient d'absorption plus élevé à

355 nm qu'à 1064 nm, le comportement de la particule d'aluminium à la même durée d'impulsion est identique pour les deux longueurs d'onde.

7.2. Effet de la longueur d'onde sur l'état de surface de la silice

Pour comparer l'effet de la longueur d'onde sur l'ablation du substrat de silice, nous utilisons les résultats expérimentaux concernant les particules d'aluminium « modèles » (cf. chapitres III.4.2 et IV.5.1). La figure IV-34 représente la profondeur totale de silice mesurée à l'emplacement initial de la particule pour les deux études. Le cas à 1064 nm et 6,5 ns est représenté par des losanges foncés et celui à 355 nm par des carrés roses. Dans le cas à 1064 nm et 6,5 ns, nous appliquons la relation en $\tau^{0,5}$ pour déterminer les fluences équivalentes à 2,5 ns (losanges bleus clairs).

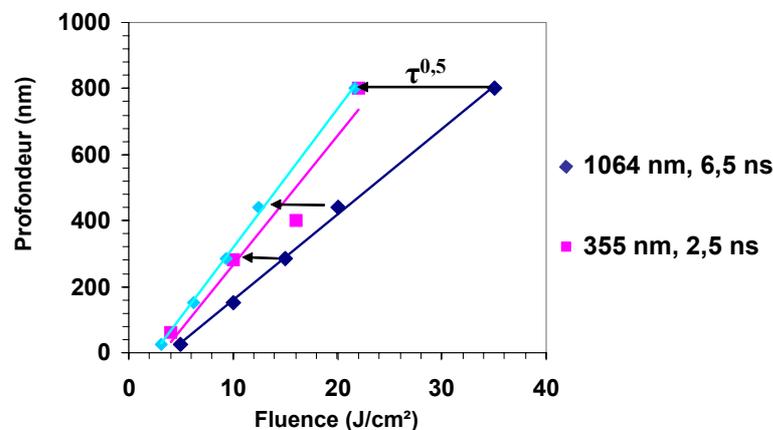


Figure IV- 34 : Profondeurs de silice ablatée mesurées après irradiation.

La courbe d'ajustement des points expérimentaux à 1064 nm, 6,5 ns est différente de celle à 355 nm, 2,5 ns. Par contre, celle correspondant à une irradiation à 1064 nm, 2,5 ns obtenu par recalage des fluences est comparable à celle obtenue à la même durée d'impulsion à 355 nm. Ces résultats expérimentaux montrent que la profondeur de silice ablatée à l'emplacement initial de la particule dépend principalement de la durée d'impulsion du laser et très peu de la longueur d'onde (1064 ou 355 nm).

Si on s'intéresse au comportement de la silice au voisinage de la particule initiale, des différences très importantes sont observées entre les deux longueurs d'onde. Pour illustrer ceci, nous comparons deux particules irradiées à chacune des longueurs d'onde sur la figure IV-35. La partie (a) montre le profil de la surface de silice après irradiation à 355 nm, 2,5 ns et la partie (b) à 1064 nm et 6,5 ns.

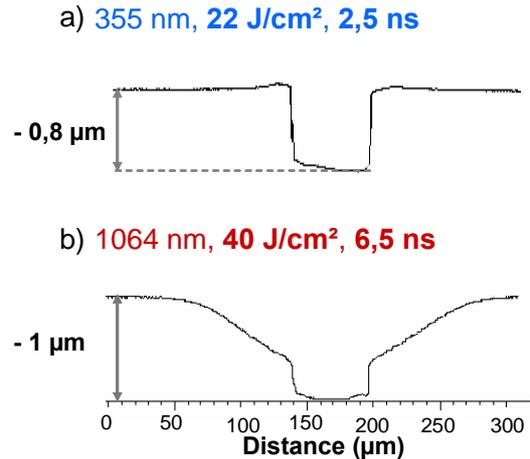


Figure IV- 35 : Profils de deux particules d'aluminium irradiées à 355 nm (a) et à 1064 nm (b).

L'irradiation à 355 nm ablate la silice en laissant les contours de la particule irradiée légèrement bombés. Une profondeur de 800 nm de silice est ablatée. Cette profondeur est comparable avec celle obtenue à 1064 nm. Mais l'irradiation à 1064 nm ablate la silice en formant une cuvette tout autour de l'emplacement initial de la particule sur 200 μm de diamètre.

En utilisant la loi en $\tau^{0,5}$, la fluence d'irradiation à 1064 nm, 6,5 ns devient 25 J/cm² à 2,5 ns très proche des 22 J/cm² à 355 nm. De plus, la présence d'une « cuvette » après irradiation à 1064 nm, 6,5 ns a été observée pour une large gamme de fluences. Ces deux observations indiquent que le comportement de la silice est fortement dépendant de la longueur d'onde.

À l'emplacement initial de la particule, la profondeur de silice ablatée est peu dépendante de la longueur d'onde mais varie principalement avec la durée d'impulsion. Par contre, au voisinage de la particule, un comportement du substrat de silice très différent est observé pour les deux longueurs d'onde.

7.3. Résultats d'irradiation de particules collectées dans la LIL

Dans le chapitre III, des substrats de silice traités antireflet pollués dans la zone de la LIL où la longueur d'onde du laser est 1053 nm ont été étudiés. L'irradiation à 1064 nm, 6,5 ns, 22 J/cm² de ces substrats montre l'élimination de nombreuses particules ($\approx 70\%$). Cette élimination provoque parfois une modification du revêtement antireflet.

De même dans le chapitre IV, des particules ont été collectées dans la zone de la LIL où la longueur d'onde de faisceau laser est de 351 nm. L'irradiation à 355 nm, 2,5 ns et 10 J/cm² de ces substrats pollués montre l'élimination de 95 % des particules collectées. Dans moins de 5 % des cas, des modifications de la surface du substrat sont également observées.

La figure IV-31 montre deux exemples de modifications de surface issues de ces deux études. Le cliché (a) montre le substrat traité antireflet après irradiation en « face arrière » à 1064 nm, 6,5 ns et une fluence de 22 J/cm², et le cliché (b) concerne un substrat également traité antireflet et irradié en « face arrière » à 355 nm, 2,5 ns et 10 J/cm².

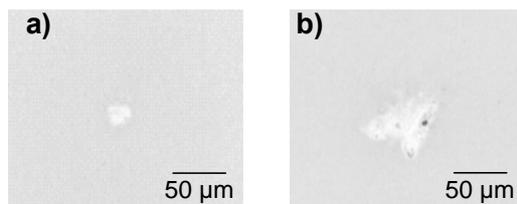


Figure IV- 36 : Modifications de surface observées après irradiation de particules collectées dans la LIL sur un substrat de silice traité antireflet à 1064 nm, 6,5 ns et 22 J/cm² (a), et 355 nm, 2,5 ns, et 10 J/cm² (b).

Sur les deux clichés, la particule initialement présente sur la zone observée (non représentée sur la figure IV-36) a laissé une empreinte blanche après irradiation. Dans les deux cas, les taches claires observées ont un aspect semblable. Ces observations révèlent une évolution du substrat indépendante de la longueur d'onde du substrat. D'après l'étude effectuée sur des particules d'aluminium « modèles », ces marques correspondraient à une ablation du substrat quelle que soit la longueur d'onde.

L'irradiation des particules collectées dans la LIL irradiées à 1064 nm à 6,5 ns et une fluence supérieure à 15 J/cm² ou à 355 nm, à 2,5 ns, et à une fluence de 10 J/cm², provoque une modification de surface du revêtement antireflet similaire.

7.4. Conclusion

A partir d'échantillon « modèle », nous avons étudié l'effet de la longueur d'onde d'irradiation sur la particule et sur son substrat. Afin de comparer les évolutions observées à 1064 et 355 nm, une loi en $\tau^{0,5}$ a été utilisée pour recalculer les fluences à une même durée d'impulsion.

Pour une même durée d'impulsion, le comportement de la particule d'aluminium sous irradiation est identique pour les deux longueurs d'onde. De la même manière, à l'emplacement initial de la particule, la profondeur de silice ablatée varie peu en fonction de la longueur d'onde. Par contre, au voisinage de la particule, un comportement du substrat de silice très différent est observé entre 1064 et 355 nm.

La durée d'impulsion semble avoir un rôle plus important dans la modification de la silice que la longueur d'onde du laser.

8. Synthèse de l'étude de la pollution particulaire sous flux laser à 355 nm

Dans ce chapitre, nous avons caractérisé la pollution particulaire présente dans les zones de la LIL où la longueur d'onde du laser est de 351 nm. Chacune des particules recueillies de taille supérieure ou égale à 3 µm a été analysée. Nous avons montré l'existence d'une pollution « ambiante » dans l'environnement du SCF. Cette pollution est composée de particules organiques, minérales et métalliques en proportion équivalente. A cette pollution « ambiante » se superpose une pollution « localisée ». Elle est constituée d'éclats de silice issus de l'endommagement laser des réseaux 3 ω et de cuivre. La comparaison de ces résultats avec ceux obtenus dans la zone où la longueur du faisceau laser est 1053 nm (cf. chapitre

III.2.4) révèle une pollution « ambiante » moyenne d'environ $0,3 \text{ part.cm}^{-2}\text{.jour}^{-1}$ dans l'ensemble de la LIL. A l'exception de l'aluminium (zone à 1053 nm) et du chrome (zone à 351 nm), les principaux composants de cette pollution sont identiques. La pollution « localisée » est uniquement détectée dans l'environnement du SCF.

La pollution aéroportée dans l'environnement du SCF a également été étudiée. Elle est émise au moment d'un tir laser. Sa concentration en particules augmente avec l'énergie totale du laser en sortie des réseaux 3w (à 351, 526 et 1053 nm). Même si les concentrations de particules émises peuvent être très importantes et dépasser la concentration spécifiée pour environnement classé ISO 7, l'efficacité de la ventilation permet de rétablir un environnement toléré par les spécifications, en moins d'une heure.

Le passage d'un faisceau laser d'une longueur d'onde de 355 nm, d'une durée d'impulsion de 2,5 ns et à une fluence de 10 J/cm^2 permet une élimination de la pollution particulaire déposée sur les surfaces de silice traitée antireflet ou non traitée. Sur les totalités des particules éliminées, moins de 4 % laissent une empreinte visible sur la surface du substrat. Cette modification de surface n'évoluant pas sous une succession de tirs lasers, aucun n'endommagement laser critique n'est détecté.

Des particules d'aluminium « modèles » de $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur, irradiées en « face arrière », à une longueur d'onde de 355 nm, et une durée d'impulsion de 2,5 ns ont été analysées. À une fluence inférieure à 2 J/cm^2 , la particule reste intacte. Entre 2 et 3 J/cm^2 , elle est liquéfiée et partiellement éliminée. A une fluence supérieure à 3 J/cm^2 , elle est vaporisée et éliminée. Au-delà de cette fluence, l'élimination de la particule crée une excavation apparaît dans la silice. Ses dimensions latérales correspondent à celle de la particule initiale et la profondeur croît avec la fluence d'irradiation. Autour de cette excavation, de légers renflements sont visibles indépendamment de la fluence. Nous avons observé que la taille des particules avait également une influence importante sur la morphologie de cette modification de la surface de la silice. Finalement, le résultat important de cette étude est que quel que soit la marque laissé sur le substrat, aucun endommagement laser critique n'est observé à une fluence inférieure à 15 J/cm^2 .

La simulation numérique avec le code monodimensionnel ESTHER a permis de compléter l'interprétation des résultats expérimentaux. Nous avons montré que de la même manière qu'après une irradiation à 1064 nm, lorsque la particule est éliminée, la silice est ablatée. La comparaison entre des profondeurs de silice ablatée calculées à différentes fluences, et la mesure montre un très bon accord. Nous avons également évalué les différences générées par deux durées d'impulsion différentes. Nous avons montré que dans le cas d'une silice polluée, la relation de proportionnalité entre la fluence et la racine carrée de la durée d'impulsion dans le domaine des nanosecondes est applicable même si l'endommagement critique n'est pas atteint.

Chapitre V : Elimination des particules sous flux laser

Dans les chapitres III et IV, nous avons montré que, dans les conditions de la LIL, l'irradiation laser de surfaces de silice polluées peut provoquer l'élimination de particules. Cet enlèvement des particules s'accompagne parfois des modifications locales et irréversibles en surface du revêtement antireflet. Celles-ci n'évoluent pas sous des irradiations successives. Nous avons ainsi montré que, dans le contexte du Laser MégaJoule, la présence de particules en surface des composants optiques en silice n'initie pas d'endommagement laser critique.

Dans ce chapitre, nous nous intéressons au nombre de particules éliminées en fonction de différents paramètres. Le phénomène d'enlèvement des particules des surfaces est quantifié par une comparaison d'observations réalisées au microscope optique avant et après une irradiation. Pour cela, nous utilisons les substrats de silice pollués dans la LIL, présentés dans les chapitres III.3 et IV.4. Après avoir évalué les pertes de particules et les différences entre les substrats de silice traités antireflet et ceux non traités, nous étudions l'influence de trois paramètres : le positionnement des particules (en « face avant » ou « face arrière »), la longueur d'onde (355 ou 1064 nm) et la fluence. Enfin, nous émettrons quelques recommandations pour améliorer l'enlèvement des particules des surfaces dans le cadre d'une chaîne laser de puissance.

1. Les mécanismes d'enlèvement de particules sous un rayonnement laser

Avant d'aborder les résultats obtenus, nous présentons rapidement les techniques et les mécanismes d'enlèvement des particules qui ont été étudiés, développés et mis au point essentiellement pour les besoins de l'industrie microélectronique. Dans les années 80, cette industrie est confrontée aux problèmes liés à la pollution particulaire en surface des plaquettes de silicium qui constituent les supports des circuits intégrés⁹⁹. Lors de la fabrication de ces circuits intégrés, le dépôt de particules peut générer des courts circuits entraînant une baisse de rendement. Un programme de recherche est alors initié chez IBM pour enlever ces particules¹⁰⁰. Une des voies explorées est l'élimination des particules par irradiation laser. Les premiers tests ont montré que le silicium était stable sous l'irradiation d'un laser UV pulsé et qu'il était possible d'éliminer le revêtement d'or d'une trentaine de nanomètres d'épaisseur déposé en surface. Les tests suivants ont révélé l'élimination de particules de dimensions inférieures à 5 µm (silicium, SiO₂, Al₂O₃ et polystyrène) avec un laser KrF ($\lambda=248$ nm) de durée d'impulsion de 20 ns et une fluence de quelques centaines de mJ/cm². Cet enlèvement de particules par une simple impulsion laser est qualifié de « nettoyage laser ». Plus récemment, les études se sont orientées vers de nouveaux substrats autres que le silicium (polymères, quartz...). Malgré une avancée remarquable dans la compréhension du « nettoyage laser », les mécanismes de l'enlèvement de particules restent discutés. Dans cette partie, nous rappelons la notion d'adhésion d'une particule sur une surface et présentons les techniques et les phénomènes physiques à l'origine de l'élimination des particules, au moyen

⁹⁹ J. Bardina. Particles on Surfaces, edited by K. L. Mittal, Plenum, 329 (1988).

¹⁰⁰ W. Zapka. The road to steam laser cleaning, Laser cleaning, Ed. B.S. Luk'Yanchuk, 24 (2002).

de lasers pulsés, connus aujourd'hui. Ces informations sont utiles pour discuter les résultats présentés par la suite.

1.1. Adhésion d'une particule sur une surface

Nous développons la notion d'adhésion présentée brièvement dans le chapitre I.3.4. La force d'adhésion permet de maintenir les particules à la surface du substrat. Elle correspond à la somme des forces de Van der Waals, de capillarité et électrostatique principalement dont les équations au point de contact sont les suivantes¹⁰¹ :

$$F_{\text{Adhésion}} \approx F_{\text{VDW}} + F_{\text{Capillaire}} + F_{\text{Electrostatique}} \quad \text{Eq. V- 1}$$

$$F_{\text{VDW}} = \frac{H_{ab}d}{12\pi.z_0^2} \text{ avec } H_{ab} = \sqrt{H_{aa}.H_{bb}} \quad \text{Eq. V- 2}$$

$$F_{\text{Capillaire}} \cong 4\pi.\gamma.d.\cos\theta \quad \text{Eq. V- 3}$$

$$F_{\text{Electr.}} \cong \pi\varepsilon_0 V^2 \frac{d}{2z_0} \quad \text{Eq. V- 4}$$

Où H_{ab} représente la constante d'Hamaker entre les deux matériaux a et b mis en contact,
 d , le diamètre de la particule,
 z_0 , la distance de Lennard Jones c'est à dire l'écart minimum entre la particule et la surface ($z_0 \sim 4 \text{ \AA}$),
 γ , la tension superficielle, celle de l'eau souvent présente est 73 mN.m^{-1} ,
 θ , l'angle de contact,
 V , la différence de potentiel entre la particule et la surface,
 ε_0 , la permittivité du vide.

Notons que ces trois composantes de la force d'adhésion sont proportionnelles au diamètre de la particule. Pour déterminer un ordre de grandeur des différentes forces, nous considérons une particule sphérique de $10 \text{ }\mu\text{m}$ de diamètre. Dans notre cas, les surfaces sont en silice.

La force de Van der Waals prend en compte la nature des matériaux mis en contact. Nous considérons donc trois particules de type organique, minéral et métallique : le polyester, la silice et le cuivre. Leur constante d'Hamaker (H_{aa}) est de $0,3.10^{-19} \text{ J}$ pour le polyester¹⁰², $0,6.10^{-19} \text{ J}$ pour la silice¹⁰³ et 4.10^{-19} J pour le cuivre¹⁰⁴. Pour ces trois particules déposées sur la silice, la force d'adhésion de Van der Waals est plus importante pour le cuivre, la silice puis pour les polymères : $2,6 \cdot 10^{-7}$, $1,1 \cdot 10^{-7}$ et $0,6 \cdot 10^{-7} \text{ N}$ mais reste de l'ordre de 1.10^{-7} N .

La force capillaire dépend surtout de la surface. Dans le cas où l'angle de contact formé par une goutte d'eau sur une surface de silice très propre est proche de 0° , la force capillaire est égale à 9.10^{-6} N . Si la silice est sale (recouverte d'un corps organique par exemple), la tension superficielle à considérer est inférieure à 73 mN.m^{-1} et l'angle de contact varie. De manière générale, elle est inférieure ou égale à 9.10^{-6} N .

¹⁰¹ B. Capella, G. Dietler. Force-distance curves by atomic force microscopy, Surf. Sci. Rep. **34**, 1 (1999).

¹⁰² R.A. Bowling ; A theoretical Review of particle adhesion, Ed. K.L. Mittal, 129 (1988).

¹⁰³ S. Pleasant, B.S. Luk'Yanchuk, D.M. Kane. Modelling laser cleaning of low absorbing substrates: the effect of near field focussing, Appl. Phys. A **79**, 1595 (2004).

¹⁰⁴ D. Grojo, P. Delaporte, A. Cros. Enlèvement de particules par laser impulsif, J. Phys IV, **127**, 145 (2005).

La différence de potentiel entre la particule, indépendamment de sa nature, et la surface est comprise entre 0 et $0,5 V^{105}$. La force électrostatique est donc inférieure ou égale à $9.10^{-8} N$.

Comme toutes les composantes sont proportionnelles à la taille de la particule, nous pouvons conclure que quel que soit le diamètre, la force d'adhésion capillaire, si elle est présente, est plus importante que les forces de Van der Waals et électrostatiques.

Pour enlever une particule déposée sur une surface verticale, des forces supérieures à la force d'adhésion et exercées dans un sens opposé doivent être appliquées. Une des forces qui peut intervenir est la force d'attraction gravitationnelle. En considérant des particules de forme sphérique de diamètre d , la force d'attraction gravitationnelle est établie selon l'équation V-5 :

$$F_{Gravitationnelle} = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{d}{2} \right)^3 \rho \cdot g \quad \text{Eq. V- 5}$$

Où ρ représente la masse volumique de la particule et g l'accélération gravitationnelle.

La force d'attraction gravitationnelle augmente avec la masse volumique et le cube de la taille des particules. Nous considérons les trois particules de $10 \mu m$ de diamètre, de polyéthylène, de silice et de cuivre, et de masse volumique de $1,4 g/cm^3$, $2,2 g/cm^3$ et $8,5 g/cm^3$ respectivement. Indépendamment de la nature des particules, la force de gravité exercée sur ces particules est de l'ordre de $10^{-13} N$ ($0,7.10^{-13} N$ pour le polyéthylène, $1,13.10^{-13} N$ pour la silice et $4,4.10^{-13} N$ pour le cuivre). A l'état statique, la force d'attraction gravitationnelle semble négligeable par rapport aux forces d'adhésions. Pour que cette force soit comparable à la force capillaire, la taille d'une particule de cuivre devrait être proche de $3 mm$.

Sur une surface de silice, la force d'adhésion capillaire est plus importante que les forces de Van der Waals et électrostatique. Lorsque le substrat est en position verticale, la force d'attraction gravitationnelle exercée sur les particules de taille inférieure au millimètre est négligeable devant les forces d'adhésion.

1.2. Les techniques d'élimination de particules par irradiation laser

Il existe principalement trois techniques d'élimination de particules par irradiation laser :

- par voie « humide »,
- par onde de choc,
- par voie « sèche ».

Le « nettoyage par voie humide » requiert la présence d'une fine couche liquide en surface du matériau pollué. Ce liquide, qui peut être de l'eau ou de l'alcool, est déposé préalablement sur le matériau par jet de vapeur ou sous atmosphère humide. L'irradiation de cette surface humide provoque une évaporation brutale dite explosive du liquide. Le film liquide qui est éjecté entraîne les particules avec lui^{106, 107}. De très bons résultats ont été obtenus avec de

¹⁰⁵ M. Hua, X. Shi, E. Cheung, W. Yuan. Limit analysis for laser removal of micron contaminant colloidal silicon dioxide particles from supersmooth optical glass substrate by pulse Nd:YAG laser, Opt.& Laser Tech. **37**, 9 (2004).

¹⁰⁶ K. Imen. Laser-assisted micron scale particle removal, Appl. Phys. Lett. **58**, 203 (1991).

¹⁰⁷ A.C. Tam, H.K. Park, C.P. Grigoropoulos. Laser cleaning of surface contaminants, Appl. Surf. Sci. **127**, 721 (1998).

faibles fluences (élimination de particules $< 0,2 \mu\text{m}$ avec $F < 0,5 \text{ J/cm}^2$, $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 22 \text{ ns}$)¹⁰⁸. L'inconvénient de cette technique est la nécessité d'appliquer un liquide.

Le « nettoyage par onde de choc » consiste à générer une onde de choc par la focalisation d'un faisceau laser intense¹⁰⁹. La focalisation du faisceau dans le gaz ambiant à une faible distance de la surface polluée provoque une ionisation. Cette ionisation est suivie de l'expansion d'un plasma et de la formation d'une onde de choc dans le substrat qui peut alors « souffler » les particules présentes en surface.

Pour le « nettoyage par voie sèche », l'irradiation de la surface met en œuvre un ou plusieurs mécanismes qui peuvent être d'origine mécanique, ablative, électrostatique ou autre^{110, 111}. Cette technique permet l'élimination des très petites particules : jusqu'à $0,3 \mu\text{m}$ sur le verre¹¹².

Dans la LIL, le seul processus en jeu est assimilable au « nettoyage par voie sèche ». Pour cette technique, nous approfondissons les mécanismes physiques à l'origine de l'enlèvement des particules dans le paragraphe suivant.

1.3. Les mécanismes physiques à l'origine du « nettoyage par voie sèche »

L'irradiation laser d'une surface « sèche » polluée peut initier différents mécanismes à l'origine de l'enlèvement de la particule. Ces mécanismes ont été largement étudiés¹¹³. Les principaux d'entre eux sont représentés sur la figure V-1.

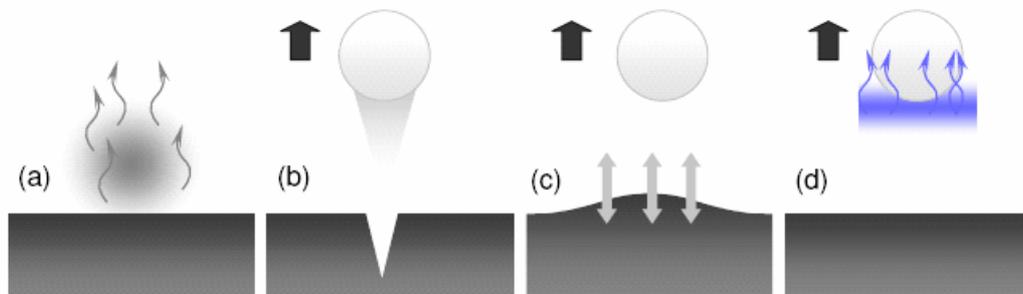


Figure V-1 : Schéma d'enlèvement d'une particule sous irradiation laser par ablation de la particule (a), du substrat (b), par expansion thermique des matériaux (c) et par ablation de l'humidité piégée au voisinage de la particule (d)¹¹¹.

Le premier mécanisme (a) consiste en l'ablation de la particule. Cette méthode dépend des matériaux utilisés car les caractéristiques du laser doivent être adaptées pour ablater sélectivement la particule et non le substrat.

¹⁰⁸ M. Meunier, X. Wu, F. Beaudoin, E. Sacher, M. Simard Normandin. Excimer laser cleaning for microelectronics : Modeling, applications and challenges, Proc of SPIE **3618**, 290 (1999).

¹⁰⁹ C. Cetinkaya, M.D.M. Peri. Non-contact nanoparticle removal with laser induced plasma pulses, Nanotechnology **15**, 435 (2004).

¹¹⁰ G. Vereecke, E. Rohr, and M. M. Heyns. Laser-assisted removal of particles on silicon wafers, J. Appl. Phys. **85**, 3837 (1999).

¹¹¹ N. Arnold, G. Screms, D. Bauerle. Ablative threshold in laser cleaning of substrates from particulates, Appl. Phys. A, **79**, 729 (2004).

¹¹² D.R. Halfpenny, D.M. Kane. A quantitative analysis of single pulse ultraviolet dry laser cleaning J. Appl. Phys. **86**, 6641 (1999).

¹¹³ D. Grojo. Thèse de l'Université d'Aix-Marseille II (2006).

Le deuxième mécanisme (b) est surtout observé sur des surfaces réfléchissantes. La particule focalise le rayonnement et peut provoquer une exaltation de l'intensité entre la particule et la surface. Cette exaltation d'intensité conduit parfois à l'ablation locale du substrat et à la formation d'un plasma. La particule est alors éjectée par transfert de quantité de mouvement des espèces ablatées.

Le troisième mécanisme (c) correspond à l'expansion thermique des matériaux absorbants à la longueur d'onde du laser (particule ou substrat). Pour de faibles fluences, la température atteinte par la surface et/ou les particules déposées n'est pas suffisante pour provoquer la vaporisation du matériau. Mais l'absorption de l'énergie induit une augmentation rapide de leur température. Ceci provoque une expansion brusque des volumes chauffés. Si le produit de l'accélération, qui est alors transmise aux particules présentes en surface, et de leur masse est supérieure à la force d'adhésion, elles peuvent être éjectées.

Le quatrième mécanisme (d) consiste en l'ablation d'une humidité piégée au voisinage de la particule qui constitue un milieu tampon entraînant l'éjection des particules. Ce principe est identique à celui utilisé dans le nettoyage laser «par la voie humide» mais, ici aucun liquide n'est ajouté.

Dans notre cas, les surfaces sont en silice. Leur coefficient d'absorption aux longueurs d'onde d'intérêt (1064 et 355 nm) et leur coefficient de dilatation (10^{-6} K^{-1}) sont très faibles. Ceci exclut l'enlèvement des particules par dilatation du substrat. Par contre, ce mécanisme peut intervenir au niveau de la particule qui peut alors être enlevée par sa propre expansion thermique. Les autres mécanismes qui peuvent intervenir sont la vaporisation de la particule ou de l'humidité présente sur le substrat. Dans certains cas, l'endommagement du substrat par ablation peut également permettre d'enlèvement des polluants.

Les mécanismes mis en jeu pour enlever les particules des composants optiques de silice semblent être principalement la vaporisation ou l'expansion thermique du polluant et la vaporisation de l'humidité présente en surface.

2. Comparaison entre une surface traitée antireflet et une autre non traitée

La plupart des composants optiques en silice de la LIL étant traités antireflet, nous étudions l'influence de la présence de ce revêtement sur l'enlèvement de particules par irradiation laser. Dans cette partie, nous distinguons, pour les deux types de substrats, l'effet de l'irradiation laser des autres effets liés à notre protocole de mesure.

Pour cela, nous utilisons deux substrats en silice, de diamètre 2,5 cm dont un est traité antireflet. Ils ont été placés derrière les réseaux 3ω pendant 48 jours de novembre à décembre 2005 en tant que collecteurs de particules (cf. chapitre IV.I.2). Les deux substrats sont ensuite observés au microscope optique puis placés verticalement sur un banc laser. Ils sont placés sur le banc laser de façon que les particules soient sur leur « face arrière » par rapport au faisceau laser. La longueur d'onde du faisceau est 355 nm avec une durée d'impulsion de 2,5 ns et une fluence de 10 J/cm^2 . Seule la moitié inférieure de chacun des substrats est irradiée par « Raster scan ». Le schéma de la figure V-2 représente la zone irradiée et celle non irradiée.

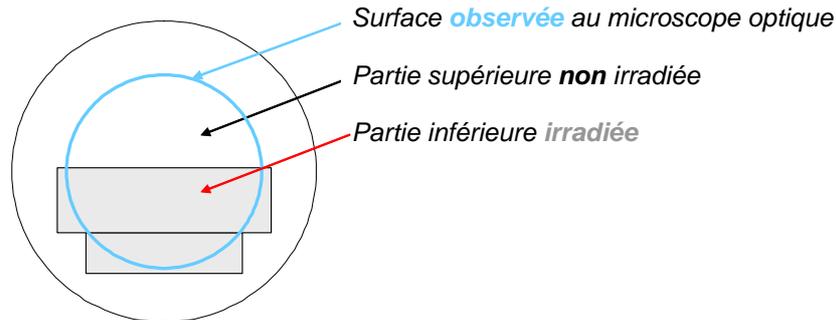


Figure V- 2 : Schéma d'irradiation des substrats de silice traités antireflet ou non traités pollués.

Après irradiation, une nouvelle observation au microscope optique est réalisée. La comparaison des clichés avant et après irradiation permet de déterminer le nombre et la taille de particules restantes en surface ou éliminées. Ces nombres résultent de l'effet des manipulations (transport, mise à la verticale, accélération subie lors de l'irradiation en mode Raster scan), sur la partie supérieure, et de l'effet cumulé des manipulations et l'irradiation, sur la partie inférieure.

Nous confrontons les résultats obtenus sur un substrat traité antireflet ou non traité sous forme de distribution cumulée. La figure V-3 représente la répartition en taille des particules observées ($\geq 3 \mu\text{m}$) en surface des substrats, avant et après irradiation de la partie inférieure et seulement la manipulation de la partie supérieure. Chaque point représente la proportion de particules d'une dimension supérieure ou égale à la taille indiquée en abscisses. Pour chaque substrat, trois courbes d'ajustement sont représentées (rouge pour le substrat traité antireflet et bleu pour le substrat non traité). La première (en trait plein) représente la distribution des particules collectées. Afin de rendre comparable les différentes mesures, nous avons normalisé les résultats en les divisant par le nombre total de particules présentes au début de l'expérience, d'où le chiffre 1 pour les particules d'une taille supérieure ou égale à $3 \mu\text{m}$. La répartition en taille des particules étant uniforme sur les deux parties du même substrat, seule une répartition est représentée pour chacun des substrats (triangle rouge pour le substrat traité antireflet et carré bleu pour celui non traité). La deuxième courbe (en tirets) représente la distribution en taille de particules observées sur la partie supérieure non irradiée après manipulation sur le banc laser (triangles roses pour le substrat traité antireflet et carrés bleus clairs pour celui non traité). La dernière courbe (en pointillés) correspond aux particules détectées sur la partie inférieure après irradiation laser.

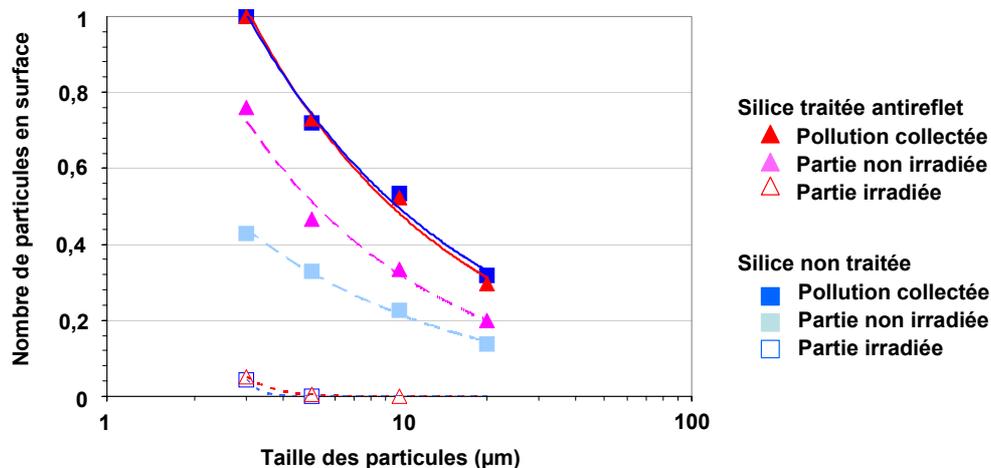


Figure V- 3 : Distribution cumulée selon la taille des particules à différentes étapes avant, après mise à la verticale, et après irradiation d'un substrat de silice non traité et un autre traité antireflet.

Sur les deux types de substrat, la répartition en taille des particules collectées montre qu'environ 50 % des particules sont de taille comprise entre 10 et 100 μm et donc 50 % sont comprises entre 3 et 10 μm . Il s'agit d'une pollution composée de particules relativement petites et équivalente sur les deux substrats.

Sur la partie supérieure du substrat de silice non traité et non irradié, le nombre total de particules comptabilisées correspond à 43 % du nombre initial. Parmi les particules restantes, environ la moitié sont supérieures ou égale à 10 μm . Le nombre total de particules en surface de la silice traitée antireflet non irradiée représente le double de celui sur le substrat non traité. En considérant les particules de taille plus élevée c'est-à-dire supérieure à 5, 10 ou 20 μm , cet écart diminue. La manipulation des substrats provoque un enlèvement partiel des particules de taille comprise entre 3 et 100 μm plus important sur le substrat de silice non traité que sur celui traité antireflet. Malgré cet enlèvement, la répartition en taille des particules restantes semble équivalente à celle obtenue initialement.

Sur la partie irradiée des substrats (traité antireflet ou non traité), la quasi-totalité des particules est éliminée. Seules quelques unes comprises entre 3 et 5 μm restent en surface.

La différence de particules restantes sur la partie non irradiée des deux substrats pourrait provenir d'une force d'adhésion plus élevée entre la particule et la silice colloïdale, constituant le revêtement antireflet, que dans le cas d'une silice « massive » polie. Une des différences entre les deux types de silice est la porosité. Une porosité importante signifie une bonne capacité à capter l'eau. Une surface plus hydrophile a un angle de contact élevé et, par conséquent, induit une force d'adhésion capillaire plus importante. Les particules sont moins facilement enlevées par de simples manipulations du revêtement antireflet que d'une surface de silice non traitée.

L'irradiation laser élimine la grande majorité des particules sur les deux types de substrats (96 % des particules initialement sur la surface). Pour déterminer l'effet de l'irradiation laser, nous évaluons l'efficacité de l'irradiation non pas à partir du nombre de particules collectées mais de celui auquel nous enlevons les proportions de particules susceptibles d'être ôtées de la surface par les manipulations. L'efficacité de l'irradiation reste proche de 100 % montrant ainsi que bien qu'une proportion importante de particules soit enlevée par le déplacement ou des vibrations du substrat de silice, l'irradiation reste plus efficace pour enlever des particules.

Le nombre de particules présentes en surface même après diverses manipulations est plus élevé sur le substrat traité antireflet que sur le substrat non traité avant irradiation (courbe rose et bleu clair). Le nombre de particules en surface des deux substrats étant identiques après irradiation, l'irradiation semble provoquer une élimination de particules plus importante sur le substrat traité antireflet que sur celui non traité. Pour interpréter cette différence, nous revenons sur l'affinité des deux substrats avec l'eau. De par la porosité du revêtement antireflet, nous supposons la présence d'une couche d'eau en surface des substrats. Cette couche beaucoup plus importante sur la silice traitée antireflet peut favoriser l'enlèvement des particules déposées en sa surface par sa vaporisation explosive sous le rayonnement laser.

La force d'adhésion entre une particule et le revêtement antireflet est plus importante qu'avec un substrat de silice non traité. Par contre, l'irradiation laser en « face arrière » à une longueur d'onde de 355 nm, et une durée d'impulsion 2,5 ns élimine les particules en proportion légèrement plus grande sur le substrat traité antireflet.

3. Comparaison du positionnement des particules en « face avant » ou en « face arrière »

Dans la LIL, la pollution peut se déposer sur la face qui est directement irradiée, la « face avant », comme sur la face opposée, la « face arrière ». Dans cette partie, nous comparons l'enlèvement des particules induit par l'irradiation laser des particules en « face avant » ou « face arrière ».

3.1. Enlèvement de particules collectées dans la LIL

Dans cette partie, nous utilisons des substrats de silice traités antireflet de 2,5 cm de diamètre. Ils ont été placés dans le SCF, respectivement derrière les réseaux 3ω et devant les hublots (à 1 m d'écart) pendant 48 jours (cf. chapitre IV.1). Ils ont ainsi collecté la pollution caractérisée dans la partie IV-2. Ils sont observés au microscope de manière à comptabiliser les particules de taille supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$ et à relever leur diamètre. Les substrats pollués positionnés verticalement sont irradiés à une longueur d'onde de 355 nm, une durée d'impulsion de 2,5 ns, et une fluence de $10\ \text{J}/\text{cm}^2$ en « face avant » pour le substrat pollué devant les hublots et en « face arrière » pour le substrat pollué derrière les réseaux 3ω . Pour comparer les effets observés sur les deux faces irradiées, nous représentons une répartition en taille des particules sous forme de distribution cumulée sur la figure V-4 de la même manière que définie pour la figure V-3.

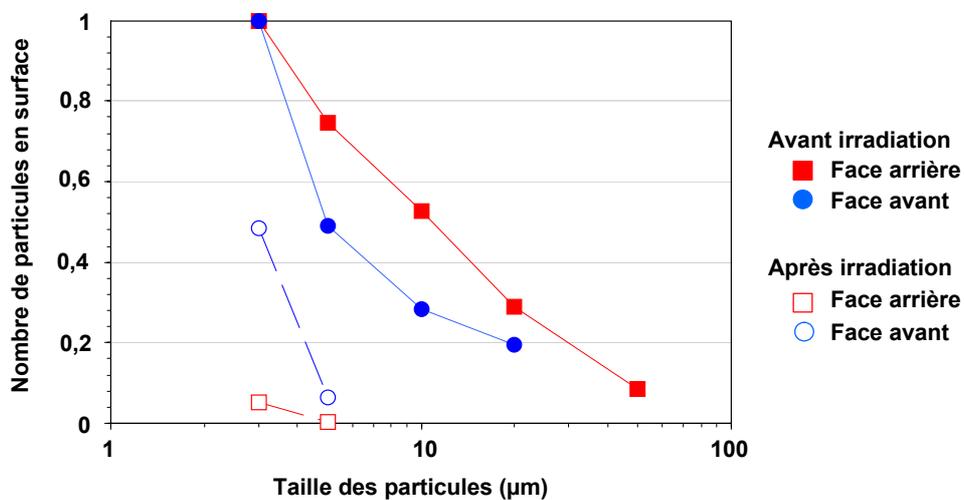


Figure V- 4 : Distribution cumulée selon la taille des particules déposées sur un substrat de silice traité antireflet avant et après irradiation en « face avant » et en « face arrière ».

Avant irradiation, la répartition en taille de la pollution présente sur la « face avant » (points bleus) montrent une pollution constituée à 50 % de particules d'une dimension comprise entre 3 et $5\ \mu\text{m}$. Après irradiation laser (cercles bleus), le nombre total de particules de taille supérieure ou égale à $3\ \mu\text{m}$ diminue de 50 %. La proportion des particules de taille supérieure ou égale à $5\ \mu\text{m}$ passe de 50 à 10 % et les particules de diamètre supérieur à $10\ \mu\text{m}$ sont complètement enlevées.

Avant irradiation, la répartition en taille de la pollution présente sur la « face arrière » (carrés rouges) montre une pollution plus grossière. Après irradiation, le nombre total de

particules présentes en surface représente moins de 10 % du nombre de départ. La proportion des particules de taille supérieure à 5 µm est inférieure à 1 % de ce nombre.

L'enlèvement par irradiation laser des polluants collectés dans la LIL est plus efficace lorsque les particules sont sur la « face arrière » par rapport à la « face avant. » Il est également plus efficace pour les grosses particules que pour les petites.

3.2. Enlèvement de particules métalliques « modèles »

Des particules d'aluminium de taille comprise entre 5 et 90 µm sont réparties sur un substrat de silice traité antireflet par enduction centrifuge (cf. chapitre II.3.1). La surface du substrat est observée au microscope optique. Le substrat est ensuite positionné verticalement sur le banc de tenue au flux. Dans un premier temps, la face polluée est en « face avant ». Une partie du substrat est irradiée à 355 nm avec une durée d'impulsion de 2,5 ns. Trois zones différentes sont irradiées respectivement à 3 fluences différentes : 0,2, 0,5 et 2,5 J/cm². Dans un deuxième temps, le substrat est retourné pour que la face polluée soit en « face arrière » et l'échantillon est à nouveau irradié. Sur chaque zone, nous avons relevé le nombre de particules présentes avant irradiation et éliminées après irradiation. Le rapport du nombre de particules éliminées sur celui des particules présentes correspond à l'efficacité de nettoyage. La figure V-5 représente l'efficacité du nettoyage en fonction de la fluence et de la face polluée.

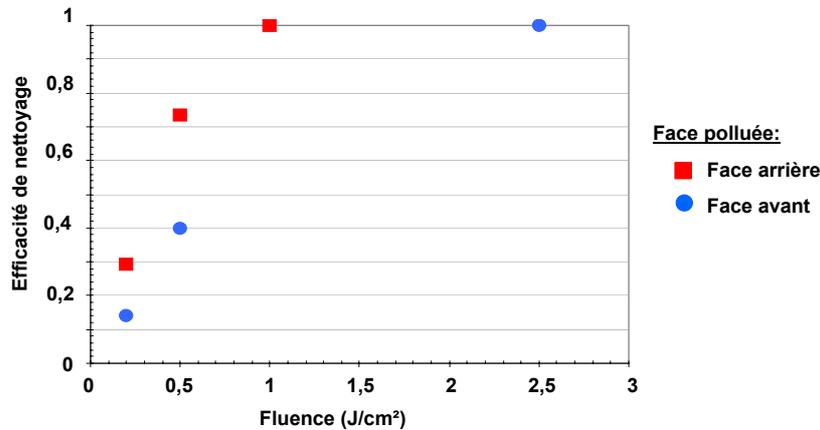


Figure V- 5 : Efficacité d'enlèvement des particules d'aluminium déposées sur un substrat de silice traité antireflet en fonction de la fluence.

L'efficacité de l'enlèvement des particules de taille supérieure ou égale à 3 µm augmente avec la fluence. A 0,5 J/cm², l'efficacité s'élève à 0,4 lorsque les particules sont sur la « face avant » du substrat et environ 0,75 lorsqu'elles sont en « face arrière ».

Cette efficacité d'enlèvement plus importante en « face arrière » par rapport à la « face avant » pourrait provenir d'un échauffement différent des particules d'aluminium qui sont absorbantes à la longueur d'onde de 355 nm. Lorsqu'elles sont placées en « face avant », l'énergie absorbée provoque un échauffement de la surface de la particule en contact avec l'air qui peut, selon la température atteinte, se liquéfier ou simplement se dilater. Dans le cas où la particule est en « face arrière », c'est l'interface silice aluminium qui commence à se chauffer. Cet échauffement peut également provoquer une expansion thermique de la particule qui provoque un enlèvement des particules plus important car la zone de contact entre la particule et la silice est directement affectée. Ce phénomène est schématisé sur la figure V-6.

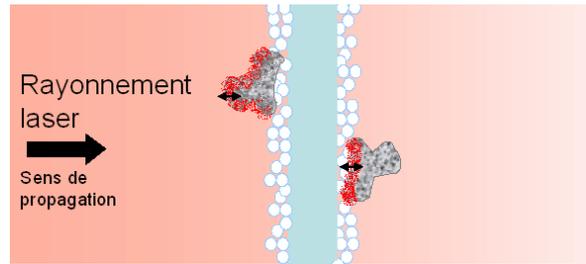


Figure V- 6 : Schéma d'irradiation d'une particule l'une en « face avant » et la seconde en « face arrière ».

Ces résultats sont en accord avec l'étude réalisée par Lu et al. sur l'enlèvement de particules d'aluminium déposées sur une lame de quartz par impulsion laser à 248 nm¹¹⁴. Leur calcul des températures atteintes à l'interface particule/surface pendant l'irradiation laser à une fluence donnée indique une température quatre fois plus élevée lorsque la particule est sur la « face arrière ». Les contraintes créées dans la particule par cet échauffement permettent son détachement de la surface. Ce détachement est donc favorisé lorsque la pollution est placée sur la « face arrière » du composant optique.

Une autre explication serait un champ électrique plus intense en « face arrière » qu'en « face avant »¹¹⁵. Ce champ électrique impose donc un échauffement et une dilatation plus importante qui provoque une élimination d'un plus grand nombre de particules.

L'enlèvement des particules métalliques « modèles » est favorisé lorsqu'il s'agit de particules de grandes dimensions et que l'irradiation s'effectue en « face arrière ».

4. Comparaison entre deux longueurs d'onde d'irradiation

Dans notre étude, nous utilisons deux bancs laser : l'un d'une longueur d'onde 1064 nm et l'autre de 355 nm. Dans cette partie, nous comparons l'effet de ces deux longueurs d'onde sur l'enlèvement des particules.

Nous utilisons des substrats de silice traités antireflet de 2,5 cm de diamètre. Ils ont été exposés dans le SCF, respectivement devant les réseaux 1 ω (cf. chapitre III.1) et devant les hublots (cf. chapitre IV.1) pendant 48 jours. Après avoir été observés au microscope, les substrats pollués sont ensuite positionnés verticalement sur le banc laser, la face polluée en « face avant ». Le substrat pollué devant les réseaux 1 ω est irradié à une longueur d'onde de 1064 nm avec une durée d'impulsion de 6,5 ns et une fluence de 22 J/cm² et celui pollué devant les hublots à 355 nm, à 2,5 ns, et 10 J/cm². Nous comparons les effets observés sur les deux substrats. Pour cela, nous représentons, sur la figure V-7, une répartition en taille des particules sous forme de distribution cumulée telle que présentée pour la figure V-3.

¹¹⁴ Y.F. Lu, W.D. Song, T.S. Low. Laser cleaning of micro-particles from a solid surface – theory and applications, Mat. Chem. Phys. **54**, 181 (1998).

¹¹⁵ M.D. Crips. Some aspects of surface damage that can be explained with linear optic, Proc of SPIE **387** (1973).

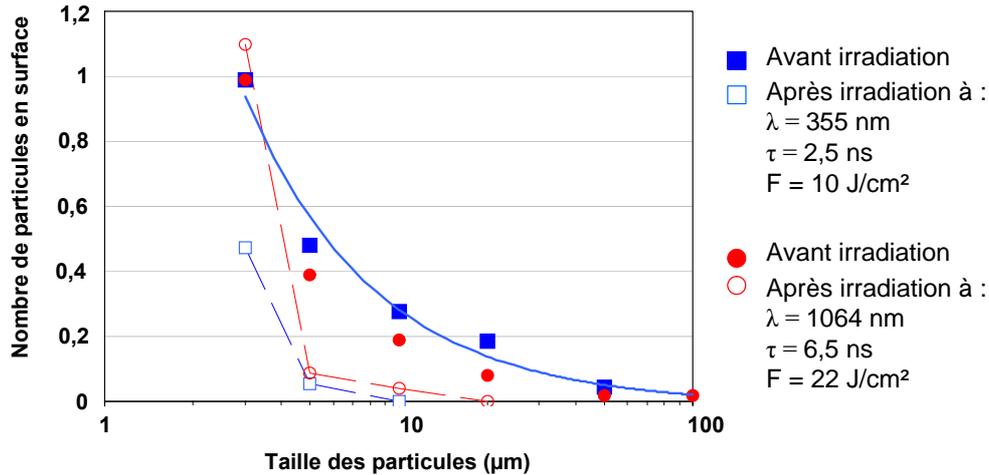


Figure V- 7 : Distribution cumulée selon la taille des particules déposées sur un substrat de silice traité antireflet avant et après irradiation à 1064 nm et à 355 nm.

Avant irradiation, sur les deux substrats, la répartition en taille des particules est équivalente. La pollution collectée est composée essentiellement de particules de taille comprise entre 3 et 10 µm, celles supérieures ou égale à 10 µm représentant de 20 à 30 % du total.

Après irradiation à 1064 nm, toutes les particules d'une taille supérieure ou égale à 20 µm sont éliminées. Les particules d'une taille supérieure ou égale à 5 µm (et <20 µm) représentent moins de 10 % de la pollution collectée alors que celles d'une taille supérieure ou égale à 3 µm sont en nombre plus élevé que celui obtenu avant irradiation. Ceci signifie que des particules de taille comprise entre 3 et 5 µm sont apparues sur la surface observée. La majorité des particules ont été enlevées de la surface observée mais certaines ont laissé des résidus de petite taille qui sont toujours observables en surface (cf. figure V-8). Ces derniers sont comptabilisés comme des petites particules.

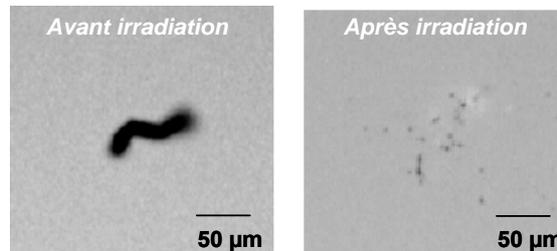


Figure V- 8 : Cliché d'une particule qui, après irradiation, laisse des résidus en surface du revêtement antireflet ($\lambda=1064$, $\tau=6,5$ ns, $F= 22$ J/cm²).

Après une irradiation à 355 nm, toutes les particules d'une taille supérieure ou égale à 10 µm sont éliminées. Les particules d'une taille supérieure ou égale à 3 µm (et <10 µm) représentent moins de 50 % de la pollution collectée. Même si la totalité des particules ne sont pas éliminés, ces résultats montrent que l'enlèvement des particules est plus efficace avec un faisceau laser de longueur d'onde 355 nm que celui utilisant un laser à 1064 nm.

Cependant les deux lasers utilisés ont une durée d'impulsion différente. Pour s'affranchir de cette différence, nous utilisons la relation en $\tau^{0,5}$ qui, d'après nos résultats est applicable dans le cadre de l'étude de l'irradiation d'un substrat de silice pollué (cf. chapitre IV.6.2). Elle établit pour les mêmes effets d'endommagement observés un rapport de proportionnalité entre la fluence et la durée d'impulsion dans le régime nanoseconde. Ainsi la fluence de 22 J/cm² obtenue avec une durée d'impulsion de 6,5 ns correspond à 15 J/cm² à 2,5 ns. A même durée

d'impulsion (2,5 ns), une irradiation à 1064 nm de fluence 15 J/cm² provoque un enlèvement de particules moins important qu'une irradiation à 10 J/cm² à 355 nm. Cet enlèvement de particules plus efficace avec un laser UV qu'un laser IR est en accord avec les études précédemment réalisées sur d'autres substrats de type silicium¹¹⁶. Cette différence pourrait provenir d'une variation de température différente des particules absorbantes.

A une durée d'impulsion et à une fluence équivalente, la proportion de particules enlevées en « face avant » est plus importante après une irradiation laser à longueur d'onde 355 nm qu'à une longueur d'onde à 1064 nm. Quelle que soit la longueur d'onde, une fluence élevée n'induit pas un enlèvement total des particules.

5. Effet de la fluence

Nous avons montré qu'un faisceau laser de longueur d'onde de 1064 nm avec une durée d'impulsion 6,5 ns permet l'élimination des particules de taille supérieure à 10 µm à une fluence de 22 J/cm². Pour cette gamme de taille de particules, nous comparons l'effet de la fluence.

La plupart des substrats de silice traités antireflet, utilisés dans cette partie, sont ceux présentés dans le chapitre III-2. Deux substrats de 1 cm² de surface ont été introduits dans trois zones de la Section Amplificatrice notées 1, 2 et 3 et deux autres de diamètre 2,5 cm dans le Système de Conversion de fréquence et de Focalisation devant les réseaux 1ω la zone 4 et au dessus du SABI, zone 5. Les substrats placés dans les zones 1, 2, 3, 4 et 5 sont respectivement irradiés à une fluence de 2, 7, 15, 22 et 22 J/cm² à la même longueur d'onde de 1064 nm et une durée d'impulsion de 6,5 ns. Toutes les particules de taille supérieure à 10 µm en surface de ces substrats sont comptabilisées avant et après irradiation au moyen d'un microscope optique. Nous comparons l'efficacité de l'irradiation laser à différentes fluences sur l'élimination des particules. Elle est représentée sur la figure V-9. Chaque point représente la moyenne de l'efficacité de nettoyage obtenue sur l'ensemble des deux substrats irradiés à une même fluence.

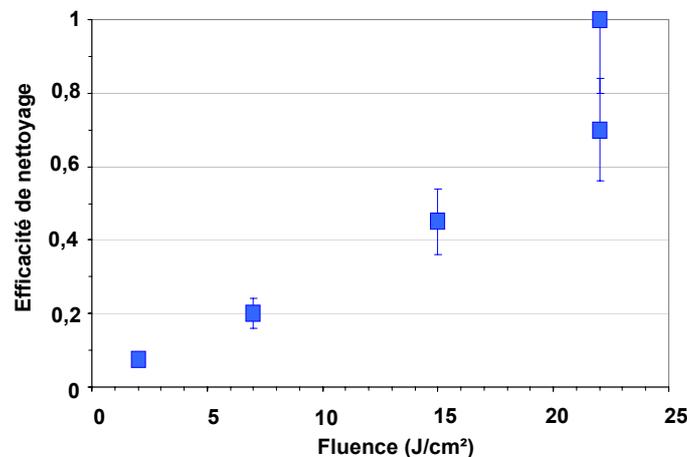


Figure V- 9 : Efficacité d'enlèvement des particules sur un substrat de silice en fonction de la fluence.

¹¹⁶ J.M. Lee, C. Curran, K.G. Watkins. Laser removal of copper particles from silicon wafers using UV, visible and IR irradiation, Appl. Phys. A **73**, 219 (2001).

L'efficacité du nettoyage augmente avec la fluence. Les particules enlevées représentent 10 % à 2 J/cm², environ 50 % à 15 J/cm² et près de 90 % à 22 J/cm². Ces mesures montrent qu'une fluence supérieure à 15 J/cm² est nécessaire pour enlever plus de 50 % des particules de taille supérieure à 10 µm.

Une étude a montré que l'élimination par irradiation laser de particules de cuivre déposées d'un substrat, le quartz, peu absorbant à 1064 nm est obtenue avec des fluences de l'ordre d'une centaine de millijoules^{117, 118}. Ce niveau est très faible par rapport à celles que nous avons utilisées. Cette différence peut provenir, d'une part, de la longueur d'onde et de la durée d'impulsion de notre laser (1064 nm et 6,5 ns) et d'autre part, de la nature du substrat (la silice utilisée a une absorption à 1064 nm inférieure à 10⁻⁵).

Nous avons montré que les substrats ont collectés une pollution équivalente. Elle est constituée de 30 % de particules organiques, 30 % de métalliques et 40 % de minérales (cf. chapitre III.2). Des études utilisant plusieurs paramètres (types de substrat, longueur d'onde, durée d'impulsion) ont montré que, pour éliminer différents nature de particule, différentes fluences sont nécessaires^{119, 120}. Elles permettent de classer les polluants en fonction de la fluence nécessaire pour les éliminer. Les organiques étant les plus faciles à éliminer et les minéraux les plus difficiles, l'augmentation du nombre de particules éliminées en fonction de la fluence pourrait correspondre à l'éjection successive des différentes classes de polluants. Pour vérifier cette hypothèse, des irradiations à des fluences intermédiaires sont nécessaires.

Une autre interprétation serait de considérer les différents mécanismes d'enlèvement des particules qui dépendent de la fluence, de la nature des particules et de leur contact avec la surface. A faible fluence, l'énergie apportée par le faisceau laser ne semble pas suffisante pour vaporiser les particules. Par contre, elle peut générer une expansion thermique de la particule et provoquer son enlèvement de la surface. A une fluence plus élevée, l'enlèvement des particules peut être lié à la présence d'humidité sous la particule qui est vaporisée sous le flux laser. Dans un autre cas, c'est la particule qui est simplement ablatée. Il est légitime de penser que l'enlèvement des particules d'une surface ne se résume pas à un seul des mécanismes présentés.

L'efficacité d'enlèvement des particules d'une surface de silice traitée antireflet par une irradiation laser de longueur d'onde 1064 nm et de durée d'impulsion 6,5 ns croît avec la fluence. Une fluence supérieure à 15 J/cm² (équivalent à 10 J/cm² pour une durée d'impulsion de 3 ns) est nécessaire pour enlever 50 % des particules de taille supérieure ou égale à 10 µm.

¹¹⁷ Y.F. Lu, W.D. Song, Y. Zhang, M.H. Hong, T.C. Chong. Laser removal of particles from solid surfaces, *Riken review* **32**, 64 (2000).

¹¹⁸ J.D. Kelley. Cleaning of optical surfaces by Excimer laser radiation, *Proc. of SPIE* **1624**, 153 (1994).

¹¹⁹ T. Fourrier, G. Schrems, T. Muhlberger, J. Heitz, N. Arnold, D. Bauerle, M. Mosbacher, J. Boneberg, P. Leiderer. Laser cleaning of polymer surfaces, *Appl. Phys. A* **72**, 1 (2001).

¹²⁰ Y. W. Zheng, B. S. Luk'yanchuk, Y. F. Lu, a) W. D. Song, and Z. H. Mai. Dry laser cleaning of particles from solid substrates: Experiments and theory, *J. Appl. Phys.* **90**, 2135 (2001).

6. Recommandations

Le passage d'un faisceau laser sur des composants optiques de silice traité antireflet induit un enlèvement des particules présentes en leur surface. Celui ci dépend de plusieurs paramètres caractéristiques de la particule, du laser et du substrat. Trois mécanismes vont intervenir principalement. Deux concernent directement la particule : sa vaporisation ou sa dilatation, et le troisième utilise l'humidité présente sur le substrat.

L'élimination des polluants est plus efficace dans certaines conditions :

- lorsqu'elles sont déposées sur la « face arrière » du composant par rapport au faisceau laser,
- lorsque les particules sont de grandes dimensions ($\geq 10 \mu\text{m}$),
- lorsqu'elles sont irradiées avec une longueur d'onde de 355 nm,
- lorsque la fluence est élevée.

Aux deux longueurs d'onde qui nous intéressent plus particulièrement, nous avons montré qu'une fluence d'environ 10 J/cm^2 avec une durée d'impulsion de 3 ns est nécessaire pour éliminer la moitié des particules de taille supérieure ou égale à $10 \mu\text{m}$ dans le cas à 1064 nm et supérieure ou égale à $3 \mu\text{m}$ à 355 nm. Par conséquent, une fluence relativement élevée semble nécessaire pour éliminer correctement les polluants.

Plus la fluence augmente, plus le nombre de particules éliminées est élevé mais plus la probabilité de marquer le substrat est également importante. Dans la plupart des cas, une irradiation à une fluence élevée ($10\text{-}40 \text{ J/cm}^2$ à 1064 nm et $6,5 \text{ ns}$ ou $5\text{-}17 \text{ J/cm}^2$ à 355 nm et $2,5 \text{ ns}$) ne provoque jamais d'endommagement critique mais peuvent modifier le substrat. Par exemple, des particules d'aluminium ($5\text{-}90 \mu\text{m}$) ont été déposées par enduction centrifuge sur un substrat de silice traité antireflet. Après une irradiation à une fluence de 10 J/cm^2 , une longueur d'onde de 355 nm, et une durée d'impulsion de $2,5 \text{ ns}$, la face polluée étant en « face arrière », nous avons obtenu une efficacité d'enlèvement proche de 100 % accompagné d'une modification de la surface dans moins de 10 % des cas. La figure V-10 illustre ces modifications de surface.

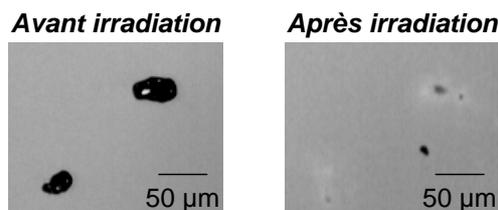


Figure V- 10 : Clichés de particules d'aluminium déposées sur un substrat de silice traité antireflet par enduction centrifuge et irradiées à 355 nm, 2,5 ns et 10 J/cm^2 .

Après irradiation, les particules sont éliminées. Elles laissent à l'endroit même où elles étaient positionnées une trace claire. Au centre de cette trace claire un point foncé est visible. Il s'agit de l'ablation du revêtement antireflet ou de résidus de la particule initiale (cf. chapitre III.6). Cette modification ne croît pas sous une succession de tir mais pourrait dégrader ses performances.

Certaines particules sont éliminées de façon partielle et laisse un résidu sur la surface. Dans ce cas, il est nécessaire d'utiliser une fluence plus importante pour éliminer toute la particule. Mais cette fluence ne doit pas être trop élevée afin de ne pas fragiliser le substrat.

Pour déterminer la meilleure manière d'enlever la particule de la surface en limitant la dégradation du substrat, nous nous plaçons dans le cas où la particule est en très bon contact avec la silice. Pour cela, nous utilisons des particules d'aluminium créées par photolithographie sur un substrat de silice. Elles sont de forme carrée, de $7\ \mu\text{m}$ de côté et $1\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et placées sur la « face arrière » du substrat positionné verticalement sur le banc laser. Pour définir la fluence d'irradiation appropriée pour une élimination de la particule nette sans fragiliser le substrat, nous procédons à plusieurs irradiations. La première permet d'éliminer la particule et les suivantes de vérifier si le substrat a été fragilisé au premier tir laser ou non. Pour déterminer la fluence du premier tir, nous rappelons les résultats présentés dans le chapitre III-4. A une fluence de $4\ \text{J}/\text{cm}^2$, une longueur d'onde de $1064\ \text{nm}$ et une durée d'impulsion de $6,5\ \text{ns}$, la particule est ablatée. La silice est chauffée et légèrement modifiée. Pour les fluences supérieures à $10\ \text{J}/\text{cm}^2$, l'aluminium et la silice sont vaporisés. La modification de surface du substrat est stable et non critique. A $40\ \text{J}/\text{cm}^2$, le seuil d'endommagement laser critique est atteint.

Dans un premier temps, nous avons irradié à $40\ \text{J}/\text{cm}^2$ de façon à enlever le maximum de particules. Un second tir effectué peu de temps après provoque un endommagement laser critique dont une image au microscope optique est représentée sur la figure V-11.

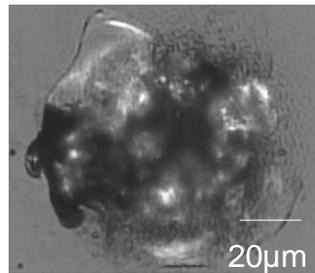


Figure V- 11 : Particule d'aluminium placée en « face arrière » du substrat de silice et irradiée à $1064\ \text{nm}$, $6,5\ \text{ns}$ et à $40\ \text{J}/\text{cm}^2$ deux fois.

Cet endommagement laser s'étend sur un diamètre de plus de $100\ \mu\text{m}$ alors que la particule initiale avait une dimension de $7\ \mu\text{m}$. L'irradiation laser à forte fluence élimine la particule mais fragilise le substrat qui se détériore sous les tirs successifs.

Dans un deuxième temps, nous avons irradié le substrat avec la fluence nécessaire pour éliminer en quasi totalité la particule : $5\ \text{J}/\text{cm}^2$. Les 100 tirs suivants sont effectués à $40\ \text{J}/\text{cm}^2$. Une image prise au microscope optique du résultat obtenu est représentée sur la figure V-12.

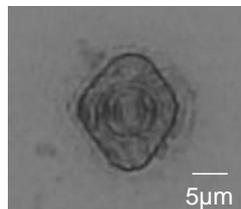


Figure V- 12 : Particule d'aluminium placée en « face arrière » du substrat de silice et irradiée à $1064\ \text{nm}$, $6,5\ \text{ns}$ et à $5\ \text{J}/\text{cm}^2$ puis 100 fois à $40\ \text{J}/\text{cm}^2$.

Après la succession de tirs, le substrat de silice n'est pas endommagé de façon critique. Il est marqué de l'empreinte de la particule et au delà. Sur l'image, elle apparaît noire et tout autour, sur une zone de $15\ \mu\text{m}$ de large, une auréole noire apparaît également. La silice semble « brûlée ». Des résidus d'aluminium ou des re-dépôts ont migré dans la silice chauffent la silice au cours des tirs et provoquent l'apparition d'une modification de surface irréversible. Bien que cette modification de surface croisse peu sous les tirs laser, elle représente une surface d'obturation du rayonnement laser sur le composant optique

transmissif. Dans le contexte de la LIL, si ce type de défaut est en nombre important, cela pourrait perturber la bonne propagation du faisceau laser. Nous devons éviter ces modifications de surface et donc trouver de meilleures conditions pour éliminer la pollution.

La fluence du premier tir semble déterminante pour l'évolution de la modification de surface. De manière à enlever la particule en limitant les résidus ou le re-dépôt, la particule est irradiée à 15 J/cm^2 puis de la même manière que précédemment par 100 tirs successifs à 40 J/cm^2 . Le résultat obtenu est montré sur la figure V-13.

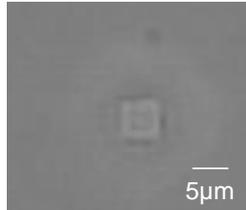


Figure V- 13 : Particule d'aluminium placée en face arrière du substrat de silice et irradiée à 1064 nm , $6,5 \text{ ns}$ et à 15 J/cm^2 puis 100 fois à 40 J/cm^2 .

L'ablation de la particule s'accompagne d'une modification de la surface de silice, qui conserve la forme carrée de la particule. Contrairement aux résultats représentés sur les figures V-11 et 12, la silice n'a pas évolué sous la succession de tirs à 40 J/cm^2 . La modification de surface est stable et ne constitue pas une obturation significative du rayonnement laser.

Ces résultats montrent qu'une faible fluence ne suffit pas à éliminer les particules métalliques de façon « nette ». Pour optimiser l'enlèvement des particules sans fragiliser le substrat, une fluence intermédiaire doit être utilisée.

Conclusion générale

L'objectif de cette thèse était l'étude de la pollution particulaire déposée sur un composant optique d'une chaîne laser de puissance. Dans le contexte du projet Laser MégaJoule, l'intérêt de ce travail est de déterminer l'influence de la pollution dans le processus d'endommagement des composants optiques sous un rayonnement laser intense.

Pour cela, nous avons mis en œuvre deux types d'approches : l'une consacrée à l'étude in situ des particules recueillies dans la LIL et l'autre reposant sur des particules « modèles ». Ces deux approches menées parallèlement s'appuient sur quatre étapes : la préparation des substrats et le dépôt de particules, la caractérisation de cette pollution, l'irradiation des substrats représentatifs des composants optiques pollués et une nouvelle caractérisation. Les résultats obtenus en suivant cette démarche ont été présentés dans les chapitres III et IV qui se différencient principalement par l'utilisation de deux longueurs d'onde d'irradiation : 1064 et 355 nm.

Dans différentes zones de la LIL, nous avons prélevé la pollution particulaire susceptible de se déposer en surface des composants optiques. L'analyse de ces prélèvements a montré une pollution « ambiante » présente dans les six zones étudiées. Elle est composée de particules de taille supérieure ou égale à 3 μm (limite d'observation) et leur nature chimique permet une répartition en trois catégories : organique, minérale et métallique. Ces trois classes apparaissent dans des proportions relativement équivalentes dans toutes les zones. A cette pollution ambiante se superpose une pollution « localisée » uniquement dans la section de conversion de fréquence et de focalisation. Cette dernière est principalement due à la dégradation des réseaux focalisants.

Dans cet environnement particulièrement pollué, nous avons corrélié l'émission de fines particules de dimension supérieure ou égale à 0,3 μm dans le volume avec l'énergie totale des tirs laser en sortie de la section de conversion de fréquence. Même si une quantité de particules bien supérieure à celle tolérée dans un environnement propre peut être comptabilisée dans une certaine configuration de tir, la ventilation permet d'abaisser le niveau de particules en suspension dans l'air à un niveau inférieur aux normes en moins d'1 heure.

Pour connaître l'impact de ces particules sur l'endommagement des optiques, des substrats de silice ont été exposés dans l'environnement de la LIL. Nous avons irradiés ces échantillons pollués selon des paramètres comparables à ceux utilisés sur la LIL (longueur d'onde de 1064 ou 355 nm, durée d'impulsion de l'ordre de quelques nanosecondes). Indépendamment des paramètres du laser, nous avons observé principalement l'élimination des particules. Moins de 10 % des particules éliminées laissent une marque sur le revêtement antireflet. Cette modification de surface est stable sous des irradiations successives et ne constitue donc pas un endommagement laser critique. Nous avons étudié son origine à partir de particules « modèles ».

L'étude des particules métalliques « modèles » a montré l'effet prépondérant de la fluence du laser sur le comportement de la particule indépendamment de la longueur d'onde du laser. L'élimination s'effectue par ablation du métal à l'état liquide ou vapeur à partir de fluences seuils qui varient selon la longueur d'onde du laser et sa durée d'impulsion. Dans le cas où la particule est vaporisée, une modification de la surface du substrat de silice apparaît. Lorsque la particule est irradiée en « face arrière » à une longueur d'onde de 1064 ou 355 nm, le dépôt

d'énergie laser s'effectue à l'interface entre la particule et le substrat favorisant ainsi l'éjection de la particule. Nous observons également une excavation générée par l'ablation de la silice à l'emplacement initial de la particule. De part et d'autre de cette excavation, la silice peut présenter des renflements ou former une cuvette en fonction de la fluence du laser et de la taille de la particule. Lorsqu'elle est irradiée en « face avant », le dépôt d'énergie laser s'effectue à la surface du polluant. Ceci permet une ablation progressive de la particule confinée entre le laser et le substrat. Nous avons observé dans la silice une excavation formée par densification de la silice. Dans ce cas, la silice environnante peut être légèrement modifiée par brûlure plasma. Toutefois, seule une fluence très élevée par rapport à celle utilisée dans la LIL provoque un endommagement laser critique. Quel que soit l'état de surface du substrat, aucun endommagement laser critique n'est observé même après 1000 irradiations successives aux fluences les plus fortes utilisées sur la LIL.

La simulation numérique avec le code ESTHER nous a permis de préciser l'interprétation expérimentale. Nous avons montré que le comportement de la particule métallique est fortement dépendant : de l'épaisseur du substrat de silice, des caractéristiques du métal, de la couche d'oxyde entre l'aluminium et la silice, de la fluence du rayonnement laser et de l'épaisseur de la particule. Elle a permis de montrer que la relation de proportionnalité entre la fluence seuil d'endommagement laser de la silice non polluée et la racine carrée de la durée d'impulsion (dans le régime nanoseconde) est également applicable au cas d'une silice polluée.

La comparaison des résultats obtenus après irradiation à 1064 et à 355 nm a révélé un comportement similaire, d'une part, de la particule et, d'autre part, de la silice à l'emplacement même du polluant.

Dans le dernier chapitre, nous avons présenté des résultats sur l'enlèvement des particules de surfaces représentatives des composants optiques en silice de la LIL sous le rayonnement laser. Il est piloté par différents paramètres tels que la taille des particules, leur position sur la « face avant » ou la « face arrière », la longueur d'onde du faisceau laser et la fluence. Malgré les fluences élevées du faisceau de la LIL, cet enlèvement de particules est souvent incomplet. Nous montrons qu'une fluence intermédiaire est nécessaire pour optimiser l'enlèvement des particules sans fragiliser le substrat.

Les perspectives de ce travail seraient l'étude de composants autre que la silice tel que des cristaux de KDP, qui pourraient avoir une sensibilité différente aux particules. Au delà de la problématique de l'endommagement des composants optiques, il serait également intéressant de mesurer l'influence de la particule ou de la modification de surface qu'elle génère sur la propagation du faisceau laser. De même nous nous sommes intéressés à la pollution particulaire mais qu'en est-il de la pollution moléculaire ?

Annexe: les moyens de caractérisation

Dans cette annexe, nous présentons brièvement les différentes techniques de caractérisation utilisées.

1. La microscopie électronique à balayage couplée à un spectromètre à dispersion d'énergie

Le principe de la Microscopie Electronique à Balayage (MEB) consiste à exciter localement un échantillon par un fine sonde d'électrons de haute énergie cinétique (1 à 40 keV) de façon à provoquer, par interactions élastique et inélastiques, diverses émissions : électrons secondaires, électrons rétrodiffusés, rayons X, luminescence¹²¹... Les différents types d'images de la surface de l'échantillon, balayée par la microsonde électronique sont obtenus en sélectionnant un signal secondaire particulier.

Le Microscope Electronique à Balayage (MEB) utilisé est associée à un Spectromètre à Dispersion d'Energie (EDS). L'ensemble est schématisé sur la figure A-1.

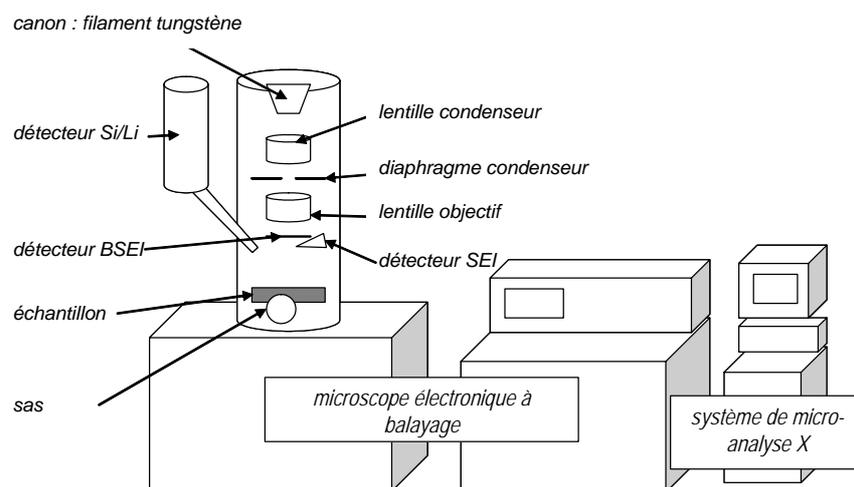


Figure A-1 : Mode de fonctionnement du MEB utilisé.

Le canon a pour fonction de générer un faisceau intense d'électrons monocinétiques. Dans la colonne maintenue sous vide secondaire, on trouve un ensemble de lentilles et de diaphragmes, le porte échantillon et les divers détecteurs. Les lentilles électroniques magnétiques sont constituées d'une bobine en fil de cuivre produisant un champ magnétique qui dévie les électrons. La résolution peut atteindre le dixième de nanomètre. Pour obtenir une telle résolution, les électrons sont accélérés sous quelques centaines de kilovolts. L'image est construite point par point en balayant une petite sonde d'électrons sur l'objet. Pour chaque position de la sonde, un signal est enregistré sur un ou plusieurs détecteurs : d'électrons secondaires (noté SEI sur la figure II-1), détecteurs d'électrons rétrodiffusés (noté BSEI), et de rayons X (détecteur Si/Li) émis par l'objet. En parallèle, un logiciel ou une carte d'acquisition réalise une cartographie de signaux détectés.

Le spectromètre EDS comprend une diode Si/Li maintenue froide par un réservoir d'azote liquide et son amplificateur associé. Le reste de la chaîne électronique de mesure, le système informatique et l'écran de visualisation forment la deuxième partie du dispositif.

¹²¹ P. Chomel, A. Rocher. Microcaractérisation des solides, Ed. M. Amou CNRS, 137 (1989).

2. La profilométrie

Le profilomètre est une technique d'analyse de surface basée sur les phénomènes d'interférence. Elle permet d'accéder à la topographie de surface, à des profils ainsi qu'à la rugosité de surface. Le profilomètre utilisé est schématisé sur la figure A-2.

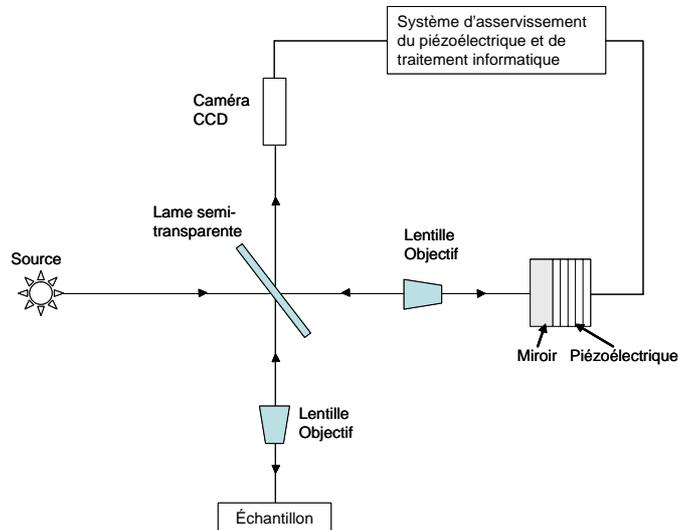


Figure A-2: Schéma du principe du profilomètre.

Il est constitué d'un faisceau lumineux qui est partagé en deux faisceaux par une lame séparatrice. Deux images sont alors formées une sur la surface de l'échantillon et l'autre sur le miroir de référence. La combinaison de ces deux images conduit à un interférogramme qui est recueilli par la caméra CCD. Toute perturbation de la surface (variation de hauteur) entraîne un déplacement latéral des franges qui se traduit par une différence de hauteur. L'analyse des franges d'interférence permet donc d'obtenir une cartographie du niveau de la surface. La résolution de l'appareil utilisé est de 0,01 nm verticalement et 360 nm latéralement.

3. La microscopie à force atomique

La Microscopie à Force Atomique (AFM) fonctionne en champ proche. Elle mesure les forces locales, attractives ou répulsives entre l'extrémité d'une pointe de dimensions nanométriques et une surface. Il s'agit de forces de courte portée telles que les forces attractives de Van Der Waals ou répulsives liées au contact de la pointe à la surface. Le principe de l'AFM est schématisé sur la figure A-3.

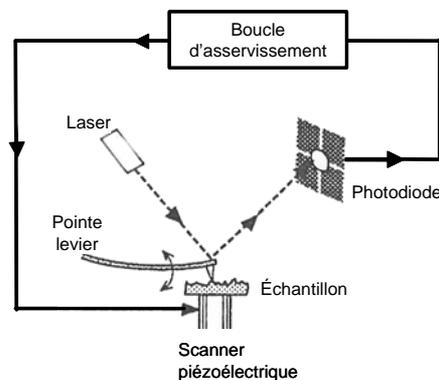


Figure A-3: Schéma de principe de l'AFM.

Une pointe située à l'extrémité d'un levier est approchée au voisinage d'une surface au moyen d'un système de vis micrométrique jusqu'à une distance de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. Une fois la pointe engagée sur la surface, la formation d'une image est assurée par le déplacement sous la pointe de l'échantillon grâce à une céramique piézoélectrique. Les déflexions du levier sous l'action des forces qui s'exercent entre la pointe et la surface sont mesurées par un système de détection optique constitué d'un faisceau laser et de quatre photodiodes. Le faisceau laser, centré sur l'extrémité du levier, est réfléchi vers les photodiodes qui délivrent une tension électrique proportionnelle aux déflexions. L'AFM fonctionne selon deux modes :

- le mode contact : la pointe est en contact avec la surface à étudier. La boucle d'asservissement maintient constante la déflexion du levier pendant le balayage (constante de raideur comprise entre 0,01 et 1 N/m).
- Le mode dynamique : l'ensemble pointe et micro-levier vibre dans un plan vertical avec une fréquence légèrement différente de sa fréquence propre de résonance. La boucle d'asservissement maintient l'amplitude d'oscillation constante. Nous pouvons travailler dans cette configuration en mode non contact ou mode intermittent.

En mode dynamique, les caractéristiques de la vibration du levier (fréquence, amplitude et angle de phase) changent en fonction de l'interaction de la pointe/surface. Une boucle d'asservissement permet d'ajuster la position verticale de l'échantillon afin de maintenir la force entre la pointe et la surface constante. Le tube piézoélectrique se déplace alors dans les trois directions de l'espace pendant la formation d'une image. Le signal obtenu est le signal topographique. La faible déviation verticale du levier permet d'obtenir un signal dit d'amplitude. La variation de l'angle de phase de la vibration du levier peut également être enregistrée et fournit une « image de phase ». Cette image de phase est représentative du contraste d'une surface hétérogène.

4. La microscopie photothermique

La microscopie photothermique constitue un moyen non destructif de détermination de l'absorption et des propriétés thermiques des composants optiques¹²². Le principe du microscope photothermique haute résolution est schématisé sur la figure A-4.

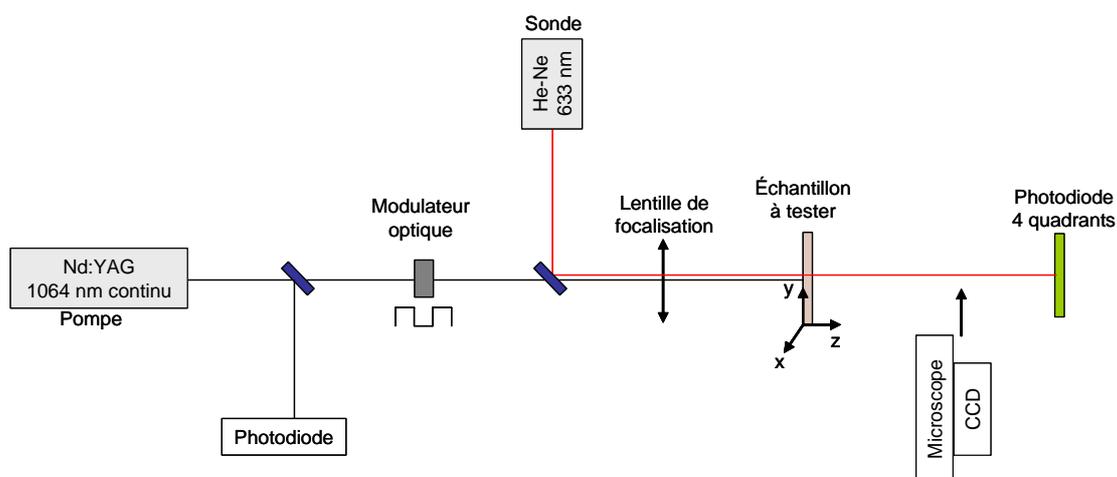


Figure A-4: Schéma de principe de la photothermie.

¹²² A.During. Thèse à l'Université de Marseille (2002).

Un faisceau pompe (source laser continu, $\lambda = 1064 \text{ nm}$) et un faisceau sonde (laser He-Ne, $\lambda = 633 \text{ nm}$), colinéaires entre eux, sont focalisés par le même objectif de microscope sur l'échantillon (la taille du spot d'irradiation est de $1 \mu\text{m}$ à $1/e^2$). Une photodiode mesure une tension proportionnelle à la puissance du faisceau sonde.

Le faisceau pompe, focalisé sur un échantillon absorbant, provoque une élévation locale et périodique de la température dans le matériau. Il en résulte une variation périodique de l'indice de réfraction qui induit une déflexion du faisceau sonde. Cette déflexion se traduit par une variation de puissance du faisceau sonde et donc une variation de tension sur la photodiode. Cette variation de tension correspond au signal photothermique. La valeur réelle de l'absorption est définie à partir de la mesure de l'absorption d'un étalon constitué d'un substrat de silice sur lequel une couche mince du matériau étalon a été déposée. Un coefficient d'étalonnage est défini par le rapport entre l'absorption connue de l'échantillon et le signal photothermique obtenu sur ce même échantillon. La valeur réelle de l'absorption correspond donc au produit du signal photothermique et du coefficient d'étalonnage. L'échantillon est monté sur une platine piézo-électrique 3 axes permettant de faire des cartographies dans les trois dimensions.

5. La micro-spectroscopie Raman

Cette technique permet d'obtenir des renseignements sur la nature des liaisons chimiques et sur la structure des échantillons analysés. Le principe Raman repose sur la diffusion de la lumière par tout objet éclairé par un rayonnement monochromatique dont la fréquence ne correspond pas à une transition résonnante possible (10^{-3} à 10^{-4} l'intensité incidente). La majeure partie de cette lumière diffusée possède la même fréquence que la lumière incidente (diffusion Rayleigh). Une très faible quantité possède une fréquence légèrement différente : c'est la diffusion Raman. Les fréquences Raman dépendent de la fréquence excitatrice mais la différence avec la fréquence excitatrice est caractéristique du composé étudié. Ces déplacements Raman correspondent aux fréquences de vibrations directement comparables aux fréquences observées par absorption infrarouge. Il s'agit de la diffusion inélastique de la lumière par la matière. Lorsqu'une molécule ou un ensemble d'atomes formant un cristal est placée dans un champ électrique, E , les charges électriques se déplacent par rapport à leur position d'équilibre induisant un moment dipolaire électrique $\mu = \alpha \cdot E$. La grandeur α est le tenseur de polarisabilité de la molécule et représente la facilité avec laquelle le nuage électronique peut se distordre sous l'action du champ électrique. Les mouvements de vibration de la molécule vont entraîner une perturbation du nuage électronique et donc une variation de la polarisabilité moléculaire à l'origine de la diffusion Raman.

Le spectromètre Raman utilisé est couplé à un microscope. Son schéma de principe est représenté sur la figure A-5.

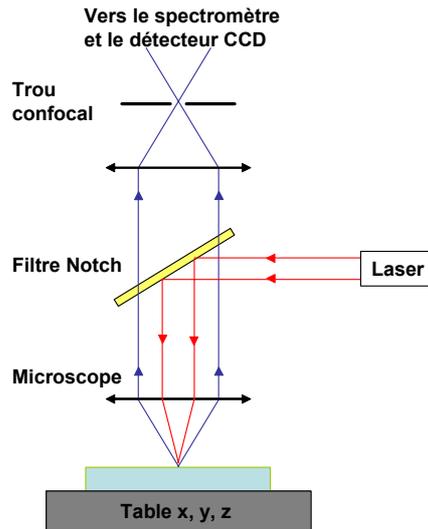


Figure A-5: Schéma de principe du spectromètre Raman.

Le faisceau laser incident est réfléchi par un filtre Notch holographique centré sur la longueur incidente du laser puis focalisé sur l'échantillon par l'intermédiaire d'un objectif de microscope. La lumière Raman diffusée en retour est récupérée par ce même objectif et transmise à travers le filtre Notch vers le spectromètre. Ce filtre rejette la diffusion Rayleigh mais transmet la diffusion Raman. La résolution spatiale est de l'ordre de $1 \mu\text{m}^3$. La lumière Raman est ensuite focalisée sur la fente d'entrée du spectrographe qui disperse le rayonnement. Ce dernier est enfin détecté par une matrice CCD (Charge Coupled Device). Cet ensemble assure une résolution spectrale d'environ 2 cm^{-1} .

6. Le compteur optique de particules

Un compteur optique de particules fonctionne sur le principe d'aspiration d'un air chargé de particules qui sont comptabilisées au moyen d'une diode laser et d'un détecteur. Le compteur utilisé est schématisé sur la figure A-6.

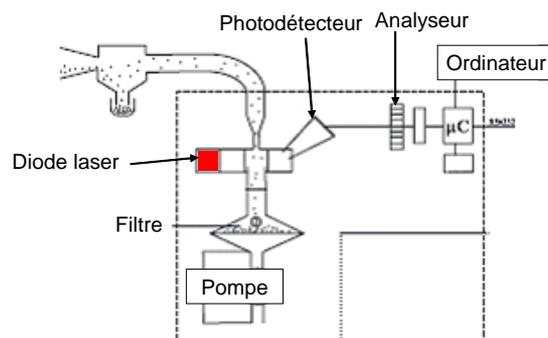


Figure A-6: Schéma de principe du compteur de particules.

Le compteur prélève un volume d'air défini en continu au moyen d'une pompe. Les particules ainsi aspirées traversent un faisceau lumineux produit par une diode laser. La lumière diffusée dans un angle solide déterminé par le système optique de réception est recueillie au moyen d'un photodétecteur associé à un amplificateur et à un analyseur multicanaux.

Les différents canaux de l'analyseur sont réglés à partir d'une courbe d'étalonnage du récepteur photodétecteur et correspondent à des classes de taille des particules. Ainsi

l'amplitude des impulsions électriques induites par les particules permettent de déterminer la taille des particules par classe, et la fréquence des impulsions permet leur comptage dans chaque classe.

Etude de la pollution particulaire d'une chaîne laser de puissance

Ce travail porte sur l'étude de la pollution particulaire déposée sur un composant optique d'une chaîne laser de puissance telle que la Ligne d'Intégration Laser (LIL), le prototype du Laser MégaJoule. Le passage du faisceau laser peut provoquer une dégradation prématurée des composants optiques et conduire, au cours des tirs laser successifs, à leur destruction. On parle alors d'endommagement laser. L'objectif de cette thèse est de déterminer l'influence de la pollution particulaire dans le processus d'endommagement des composants optiques sous un rayonnement laser intense. Pour cela, nous avons mis en œuvre deux types d'approches : l'une consacrée à l'étude des particules recueillies directement dans la LIL et l'autre reposant sur l'utilisation de particules « modèles » pour étudier précisément les effets de l'irradiation. La première a permis de caractériser la pollution particulaire et d'analyser son influence sur l'état de surface des optiques soumises à un flux laser comparable à celui de la LIL. Nous avons montré que l'irradiation laser d'un échantillon d'optique en silice pollué entraîne l'élimination des particules. Ce phénomène peut s'accompagner d'une modification de l'état de surface qui évolue peu au cours des tirs successifs. La deuxième approche, basée sur la confrontation entre les résultats expérimentaux et théoriques, a permis de compléter notre analyse. Nous avons montré que selon l'emplacement des particules par rapport au sens de propagation du faisceau laser, la modification de surface observée provient d'une densification ou d'une ablation de la silice. Nous avons confirmé que dans les deux cas, la silice était stable sous une succession de tirs. Ce travail démontre que dans les conditions de fonctionnement de la LIL, la pollution particulaire en surface des composants optiques est limitée par un phénomène de « nettoyage » par irradiation laser et surtout ne conduit pas à la destruction des optiques.

Mots clés : pollution, endommagement laser, silice, laser de puissance, interaction laser/matière, simulation numérique.

Study of the particulate pollution of high power laser chain

This work concerns the investigation of particular pollution deposited on optical components of high power lasers such as the Ligne d'Intégration Laser (LIL) which is the Laser MegaJoule prototype. The laser beam can induce damages which can lead ultimately to the destruction of the optical components under successive laser shots. The aim of this work is to investigate the influence of pollution on the laser induced damage process. Two general approaches have been developed: the first one is concerned with the study of particles collected *in situ* inside the LIL, and the other one relies on the investigation of the irradiation of model particles with shape and composition controlled. The first one provided a characterization of particulate pollution and an evaluation of its influence on the surface of the optical components submitted to an intense laser pulse comparable with the one existing in LIL. We showed that the irradiation of silica made optic samples polluted in surface induces a particle removing. This phenomenon can leave an imprint on the surface which generally does not evolve under successive shots. The second approach based on the comparison between experimental and theoretical results, offered a way to complete and broaden our analysis. We showed that depending of the particle positioning versus the laser propagation direction, the observed imprint results in silica ablation or densification. In both cases, silica remains stable under successive laser shots. This works showed that in the LIL working conditions, particulate pollution on optical components is limited by a cleaning effect by laser irradiation and overall does not induce optics destruction.

Keywords: pollution, laser induced damage, silica, high power laser, laser/matter interaction, numerical simulation.