

# THESE

Présentée à

**L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE**

Pour obtenir le titre de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE**



Spécialité : Lasers, Molécules et Rayonnement Atmosphérique

par

**Mohamed BENATSOU**

**ELABORATION PAR VOIE SOL-GEL ET CARACTERISATION DE  
GUIDES D'ONDES OPTIQUES DOPES AUX IONS ERBIUM :  
APPLICATION A L'AMPLIFICATION OPTIQUE**

Soutenue le 3 Décembre 1998 devant la Commission d'examen :

<b>M. P. GLORIEUX</b>	(U.S.T.L., Lille)	Président
<b>M. B. JACQUIER</b>	(Université Claude Bernard, Lyon)	Rapporteur
<b>M. D. BARBIER</b>	(G.E.E.O., Grenoble)	Rapporteur
<b>M. M. BOUZAOU</b>	(U.S.T.L., Lille)	Directeur de thèse
<b>MM. S. TURRELL</b>	(U.S.T.L., Lille)	Examineur
<b>M. J.P. VILCOT</b>	(I.E.M.N., Lille)	Examineur
<b>MM. D. MONGARDIEN</b>	(L. C. R. Thomson-CSF, Orsay)	Examineur

Thèse effectuée au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne, U.M.R. PhLAM, C.E.R.L.A., Bât. P-5,  
Université des Sciences et Technologies de Lille I, 59655 Villeneuve d'Ascq CEDEX

Les travaux présentés dans ce mémoire ont été réalisés au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Université des Sciences et Technologies de Lille. Je suis très reconnaissant envers Monsieur le Professeur Pierre GLORIEUX, Directeur du Laboratoire, de m'avoir accueilli au sein de son Laboratoire et de m'avoir permis d'y effectuer mon travail de recherche. Qu'il soit également remercié pour l'honneur qu'il m'accorde en présidant la commission d'examen.

Je tiens à remercier tout particulièrement Monsieur Bernard JACQUIER, Directeur de Recherches à l'Université Claude BERNARD de Lyon et Monsieur Denis BARBIER, Chef de Projet au Groupement d'Electromagnétisme Expérimental et d'Optoélectronique de l'Institut National Polytechnique de Grenoble qui ont accepté de rapporter sur ce travail.

Je suis très reconnaissant envers Monsieur Bruno MACKE, Professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, d'avoir autorisé mon inscription dans la formation doctorale qu'il dirigeait alors et d'avoir accepté la Responsabilité Scientifique de cette thèse.

Ce travail n'aurait pu être ce qu'il est sans le soutien, l'efficacité, les compétences la disponibilité et l'enthousiasme quotidiens de Mohamed BOUZAOUÏ. Au cours de ces quatre dernières années, il a su me faire bénéficier tant de ses qualités scientifiques que de ses qualités humaines. Qu'il trouve en ces quelques lignes l'expression de ma profonde reconnaissance et l'assurance de mes remerciements les plus sincères pour avoir dirigé cette thèse.

Il ne saurait être question de ne pas citer les autres membres du jury qui me font l'honneur d'examiner ce travail. Je remercie très vivement Madame Sylvia TURREL, Professeur à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, pour ses précieux conseils et nos discussions fructueuses concernant la Spectroscopie RAMAN. Je la remercie également pour sa lecture critique de ce mémoire. J'adresse ici mes plus vifs remerciements à Madame Dominique MONGARDIEN, du Laboratoire Central de Recherche de THOMSON-CSF, pour l'honneur qu'elle me fait en participant à la commission d'examen.

Ce travail de thèse, au moins dans sa partie finale, est le fruit d'une collaboration entre le Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne et le Département Hyperfréquences et Semiconducteurs de l'Institut d'Electronique et de Microélectronique du Nord. Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à Monsieur Didier DECOSTER, directeur du groupe Optoélectronique de l'IEMN, et à tous les membres de son équipe, pour leur accueil chaleureux grâce auquel j'ai pu m'intégrer rapidement dans le groupe. J'aimerais remercier en particulier Monsieur Jean-Pierre VILCOT, Chargé de Recherches au C.N.R.S., pour sa participation au Jury mais surtout pour tous ses conseils, son aide précieuse quant à la préparation des échantillons gravés et le temps qu'il m'a généreusement accordé au milieu de ses nombreuses activités de recherches. Je ne puis oublier Joseph HARARI, Maître de Conférences à l'Université des Sciences et Technologies de Lille, pour sa patience à m'initier à l'utilisation de la Méthode des Faisceaux Propagés et pour sa

contribution au développement du modèle numérique. Son expérience et son regard éclairé sur les simulations numériques m'ont été précieux. Qu'il soit ici assuré de toute ma reconnaissance.

L'équipe sol-gel du laboratoire s'est considérablement agrandie à l'arrivée de Bruno CAPOEN, Maître de Conférences à l'Université des Sciences et Technologies de Lille. Son regard neuf sur le sujet a contribué à m'apporter le recul indispensable à la rédaction de ce mémoire. Je le remercie sincèrement pour sa disponibilité quant à la réalisation de certaines expériences et surtout pour avoir consacré le temps nécessaire à la lecture et à la relecture critique de ce mémoire.

Je voudrais enfin remercier toutes les personnes que j'ai été amené à rencontrer au cours des quatre années passées au sein de l'U.F.R. de Physique, pour leur sympathie, leur générosité et leur bonne humeur. Ils ont tous contribué à leur façon au bon déroulement de ce travail de thèse. Toute ma sympathie va à : S. Bielawski, G. Boulant, G. Bowmans, M. Cordonnier, A. Debut, D. Derozier, J.L. Destombes, E.H. Dogheche, H. Fichoux, J.Y. Gadat, J.C. Garreau, A. Jabran, J.M. Lapauw, V. Lecoeuche, M. Lecoutre, M. Lefranc, D. Lesage, E. Louvergneaux, Y. Pennec, J. Plumecoq, D. Prévost, B. Ségard, P. Suret, C. Szwaj, S. Randoux, J. Ringot, W. Tchana, J. Zemmouri. Que tous ceux que j'aurais pu oublier de citer trouvent ici l'expression de mon amitié sincère.

**Chapitre I-I : La méthode sol-gel**

<b>I. Généralités</b>	<b>10</b>
I. 1. Historique	10
I. 2. Applications	10
I. 3. Quelques définitions	12
<b>II. Principes physico-chimiques du procédé sol-gel</b>	<b>12</b>
II. 1. les précurseurs	12
II. 2. Les mécanismes réactionnels	13
II. 3. La transition sol-gel	15
II. 3. 1. Aspect microscopique	15
II. 3. 2. Aspect macroscopique	16
<b>III. Densification des gels</b>	<b>17</b>
III. 1. Le vieillissement	17
III. 2. Le séchage	18
III. 3. Densification par traitement thermique	18
<b>IV. Avantages et inconvénients du procédé sol-gel</b>	<b>20</b>
IV. 1. Avantages	20
IV. 2. Inconvénients	20
<b>V. Les films minces élaborés par voie sol-gel</b>	<b>21</b>
V. 1. Le dépôt par centrifugation (spin-coating)	21
V. 2. Le dépôt par trempage (dip-coating)	23
V. 2. 1. Principe	23
V. 2. 2. Contrôle de l'épaisseur des dépôts	24
V. 2. 3. Formation du film	26
V. 2. 4. Avantages et limites du procédé de trempage	26
a. Avantages	26
b. Limites	27
<b>Bibliographie</b>	<b>28</b>

**Chapitre I-II : L'optique guidée et l'optique intégrée**

<b>I. Propagation de la lumière dans un guide d'onde plan</b>	<b>32</b>
I. 1. Le guide d'onde plan	32
I. 2. Détermination de l'équation de dispersion par la théorie des rayons	33
I. 3. Analyse de la propagation par les équations de Maxwell	36
I. 3. 1. Résolution des équations de Maxwell	36
I. 3. 2. Expression des champs pour les modes guidés	39
<b>II. Le guide à confinement bidimensionnel</b>	<b>42</b>
II. 1. Les différentes structures 3D	42
II. 2. La méthode des indices effectifs	44
<b>III. Couplage de la lumière dans un guide d'onde</b>	<b>46</b>
III. 1. Le couplage par prisme	46
III. 1. 1. Principe	46
III. 1. 2. La méthode M-lines ou méthode des lignes noires	47
III. 2. Le couplage par fibre	49
<b>Bibliographie</b>	<b>50</b>

## Chapitre I-III : Propriétés spectroscopiques des ions de terres rares

<b>I. Niveaux d'énergie des ions de terres rares</b>	<b>52</b>
I. 1. Structure électronique	52
I. 2. Niveaux d'énergie et notations spectroscopiques	53
<b>II. Les transitions électroniques</b>	<b>55</b>
II. 1. Les transitions radiatives	56
II. 1. 1. L'absorption	56
II. 1. 2. L'émission spontanée	57
II. 1. 3. L'émission stimulée	58
II. 2. Les transitions non radiatives	58
<b>III. Mécanismes d'interactions entre ions de terres rares</b>	<b>59</b>
III. 1. Migration d'énergie	60
III. 2. Transfert d'énergie assisté de phonons	60
III. 3. Addition de photons par transfert d'énergie	61
III. 4. Absorption dans l'état excité	61
<b>IV. Codopage</b>	<b>62</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>63</b>

## Chapitre II-I : Les guides d'ondes planaires germanosilicates

<b>I. Elaboration de guides d'ondes germanosilicates</b>	<b>65</b>
I. 1. Préparation d'un alkoxyde de germanium modifié par échange d'alcool	66
I. 2. Préparation du sol	67
I. 3. Dépôts de films minces par la méthode de trempage	69
I. 3. 1. Les substrats	69
I. 3. 2. Dépôt de films minces par trempage	70
I. 3. 3. Traitements thermiques	71
<b>II. Caractérisation optogéométrique des guides</b>	<b>71</b>
II. 1. Dispositif de mesure des indices effectifs	71
II. 2. Mesure de l'indice et de l'épaisseur des films	73
II. 3. Mesure des pertes de propagation	75
<b>III. Fluorescence des ions erbium dans une matrice SiO<sub>2</sub>-GeO<sub>2</sub></b>	<b>76</b>
III. 1. Dispositif expérimental	77
III. 2. Emission autour de 1500 nm	78
III. 3. Emissions dans le visible	81
<b>IV. Analyse de la structure des films par Spectroscopie Raman</b>	<b>82</b>
IV. 1. Principe de la diffusion Raman	82
IV. 2. Analyse et interprétation des spectres Raman	84
IV. 2. 1. La matrice vitreuse de silice pure	85
IV. 2. 2. La matrice germanosilicate	86
<b>V. Durée de vie de fluorescence du niveau <sup>4</sup>I<sub>13/2</sub></b>	<b>88</b>
V. 1. Principe de mesure de la durée de vie	89
V. 2. Optimisation de la concentration en ions erbium	90
V. 3. Influence des groupements hydroxyles OH-	91
V. 3. 1. Acquisition des spectres FTIR	92
V. 3. 2. Analyse des spectres	92
<b>VI. Conclusion</b>	<b>93</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>94</b>

## Chapitre II-II : Les guides d'ondes planaires aluminosilicates

<b>I. Elaboration des guides d'ondes planaires aluminosilicates</b>	<b>99</b>
I. 1. Préparation du sol	99
I. 2. Caractéristiques des guides d'ondes $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$	99
<b>II. Etude structurale de la matrice aluminosilicate</b>	<b>101</b>
II. 1. Analyse des spectres Raman	101
II. 1. 1. La matrice aluminosilicate non dopée	101
a. Film recuit à 900 °C	101
b. Film recuit à 1000 °C	103
c. Film recuit à 1100 °C	104
II. 1. 2. Influence du dopage	105
II. 2. Etude de la structure des films par des techniques de microscopie	106
II. 2. 1. Analyse par microscopie A.F.M.	106
II. 2. 2. Analyse au M.E.B.	108
<b>III. Fluorescence des ions erbium dans une matrice aluminosilicate</b>	<b>109</b>
III. 1. Fluorescence Up-conversion	109
III. 1. 1. Analyse des émissions de fluorescence dans le visible	109
III. 1. 2. Influence de la concentration	112
III. 2. Analyse de la fluorescence autour de 1,53 $\mu\text{m}$	116
III. 2. 1. Etude des déclins de fluorescence	116
III. 2. 2. Influence du dopage sur la largeur de la bande d'émission infrarouge	119
<b>IV. Conclusion</b>	<b>120</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>121</b>

## Chapitre III : Amplification optique - Etude expérimentale et modélisation

<b>I. Elaboration des guides en arêtes</b>	<b>123</b>
I. 1. Détermination des paramètres	123
I. 2. Les différentes étapes de la gravure	124
<b>II. Caractérisation et performances de l'amplificateur</b>	<b>126</b>
II. 1. Banc de mesures	126
II. 2. Mesure de pertes	127
II. 3. Mesure du gain d'amplification	129
<b>III. Modélisation du comportement de l'amplificateur optique</b>	<b>131</b>
III. 1. L'outil de modélisation : la Méthode des Faisceaux Propagés (B.P.M.)	132
III. 1. 1. Introduction	132
III. 1. 2. Concepts généraux	133
III. 1. 3. Expression des équations de propagation dans un guide plan selon les approximations scalaire et paraxiale.	133
III. 1. 4. Principe de la B.P.M. aux différences finies à 2 dimensions	134
III. 2. Les différentes étapes de calcul du logiciel	136
III. 2. 1. Détermination des conditions initiales (en $z=0$ )	136
III. 2. 2. Expression de l'intensité des faisceaux	136
III. 2. 3. Etablissement du modèle "matériau"	138
a. L'absorption	138
b. L'émission	140
c. Système à trois niveaux : cas des ions erbium	141
III. 3. Le logiciel	143
III. 3. 1. Numérisation du problème	143
III. 3. 2. Exemples de résultats obtenus	143
a. Influence de la puissance de pompe	144
b. Influence de la longueur de l'amplificateur	145
<b>IV. Conclusion</b>	<b>147</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>148</b>

<b>Conclusion</b>	<b>149</b>
<b>Annexe I</b> : Calcul de la profondeur de gravure à partir de la méthode des indices effectifs	153
<b>Annexe II</b> : Microscopie à effet de force atomique et microscopie électronique à balayage	155
<b>Contributions Scientifiques</b>	<b>159</b>

# INTRODUCTION



## Introduction

La société dans laquelle nous vivons fait de plus en plus appel aux systèmes de télécommunications optiques. Le besoin de transmettre l'information de plus en plus vite, de plus en plus loin, pour un nombre sans cesse croissant d'utilisateurs, a fortement contribué au succès des fibres optiques. Celles-ci ont pu s'imposer aux techniques de transport électrique grâce à plusieurs facteurs : une faible atténuation des signaux optiques, une insensibilité aux perturbations électromagnétiques, une faible taille de composants, une large bande passante ( $\sim 10^{15}$  Hz) et une capacité à propager plusieurs faisceaux de différentes longueurs d'onde. L'utilisation de la lumière a d'ores et déjà révolutionné les systèmes de télécommunication et aura bientôt un impact considérable sur les possibilités d'accès à l'information. Le développement fulgurant d'Internet et du World Wide Web (W.W.W.), en est le premier exemple concret.

Le débit des transmissions de signaux optiques se heurte néanmoins aux propriétés intrinsèques des fibres utilisées à savoir : leur atténuation et leur dispersion. De tels phénomènes dégradent et perturbent le signal, limitant ainsi la distance et la vitesse de propagation. Ces effets ont été observés dans les premières fibres optiques en silice opérant à la longueur d'onde  $0,8 \mu\text{m}$  (première fenêtre des télécommunications). Les fibres présentaient alors une atténuation importante et également une forte dispersion intermodale. Pour répondre à ces problèmes, sont apparues les fibres transportant les signaux à  $1,3 \mu\text{m}$  (seconde fenêtre des télécommunications). A cette longueur d'onde, les coefficients d'atténuation et de dispersion de la silice sont beaucoup plus faibles. Dans un souci constant d'améliorer la transmission de l'information, les activités de recherches se sont orientées, par la suite, vers des fibres présentant une atténuation encore plus faible et opérant à la longueur d'onde  $1,5 \mu\text{m}$  (troisième fenêtre des télécommunications).

Bien que l'on ait apporté aux fibres optiques de nettes améliorations au cours des deux dernières décennies, le problème de l'atténuation du signal persiste. La solution désormais adoptée consiste à amplifier le signal après une dizaine de kilomètres de propagation. Le premier système mis au point utilisait l'amplification électronique : le signal optique était transformé en signal électrique qui était amplifié, puis reconverti en signal optique. L'inconvénient de cette technique provient de la génération de bruit dans

la chaîne optique et de la réduction de la bande passante. Les performances désormais atteintes dans l'élaboration des fibres optiques permettent actuellement d'utiliser un système d'amplification tout optique. La nouvelle génération de fibres, dites actives, composent aujourd'hui les systèmes de communication utilisant des amplificateurs à fibres dopées aux ions de terres rares [1]. Dans la gamme de longueur d'onde avoisinant  $1,5 \mu\text{m}$ , les fibres sont dopées avec des ions erbium. Le principe de fonctionnement des amplificateurs à fibres dopées aux ions erbium est celui de l'émission stimulée. Les ions absorbent les photons d'un faisceau de pompe à une longueur d'onde inférieure à  $1,5 \mu\text{m}$  puis réémettent une partie de l'énergie sous forme de photons à la longueur d'onde du signal. Les ions erbium ont été choisis car ils présentent une émission de fluorescence autour de  $1,5 \mu\text{m}$ , générée par une transition radiative entre l'état électronique excité  $^4I_{13/2}$  et le niveau fondamental  $^4I_{15/2}$ .

Ce principe d'amplification tout optique sert bien évidemment les systèmes de transmission à longue distance mais peut également être utilisé comme moyen d'amplification dans des réseaux de distribution locale et dans des circuits en optique intégrée. Dans ce dernier domaine cependant, les besoins de miniaturisation font apparaître une limitation des fibres optiques à cause de leur encombrement. Parallèlement au développement des amplificateurs à fibre, une partie des recherches s'est donc orientée vers l'étude des amplificateurs sous forme de guides d'ondes planaires dopés aux ions erbium. Grâce à leur petite taille (quelques centimètres), ces composants peuvent être utilisés en optique intégrée comme guides actifs pour amplifier le signal entre les différents constituants d'un même support.

L'élaboration des guides d'ondes optiques emprunte beaucoup à la technologie des circuits intégrés en électronique. Les parties actives sont déposées en couches minces sur un substrat : celui-ci est constitué de verre ou de silice sur silicium. Le matériau constituant le film mince est généralement à base de silice (constituant majoritaire des fibres optiques). Les techniques d'élaboration des guides et de dopage avec des ions erbium sont nombreuses :

- *L'oxydation thermique* [2] consiste à porter un substrat de silicium (Si) à haute température en atmosphère sèche ou humide. Cette technique requiert beaucoup de temps pour élaborer des couches épaisses et le dopage de la silice ( $\text{SiO}_2$ ) ainsi obtenue est délicat.

- *L'évaporation* [3] est une technique très utilisée pour élaborer des films minces. Le principe est de vaporiser un matériau source soit en la chauffant avec des résistances électriques, soit en la bombardant d'électrons. La vapeur obtenue se dépose par condensation sur le substrat, formant ainsi la couche mince. Le dopage est rendu possible en incorporant les ions de terres rares dans la source.

- *La pulvérisation* est également une technique très utilisée. La formation des films résulte de l'adhésion des atomes d'une cible sur le substrat. Les atomes de la cible sont arrachés soit par un faisceau d'ions soit par une décharge R.F. [4,5]. En choisissant des cibles contenant des ions de terres rares, il est possible de doper les films [6].

- *L'hydrolyse à la flamme* (F.H.D.) est inspirée de la méthode d'élaboration des fibres optiques. Cette technique permet le dépôt de films très épais (typiquement 50  $\mu\text{m}$ ). Cependant, les films obtenus conservent une porosité importante et la méthode nécessite des températures d'élaboration élevées (1300 °C) [7]. Le dopage peut être réalisé en incorporant les ions de terres rares dans le mélange gazeux [8] ou en immergeant le film poreux dans une solution contenant ces ions [9].

- *Le dépôt chimique en phase vapeur* (C.V.D : Chemical Vapor Deposition et P.E.C.V.D. Plasma Enhanced C.V.D) utilise des réactions de mélanges gazeux qui se déposent en phase solide sur le substrat. La difficulté de cette technique est d'obtenir des couches uniformes à partir des gaz dont la concentration, la température et la composition chimique peuvent varier fortement. L'ajout des ions de terres rares au mélange gazeux permet d'obtenir des films dopés [10].

- *L'épitaxie* consiste à faire croître une couche cristalline sur un substrat monocristallin. Le film ainsi élaboré possède les mêmes propriétés cristallines que le substrat au moins à l'interface. Bien que cette technique soit couramment utilisée pour la réalisation de films semi-conducteurs, elle l'est beaucoup moins pour le dépôt de matériaux diélectriques. Le dopage est obtenu en incorporant les ions de terres rares dans le mélange initial ou en chargeant la source avec un composé de terres rares dans le cas de l'épitaxie par jet moléculaire [11,12].

- *L'implantation ionique* [13] est une technique de dopage qui emploie le bombardement de la surface d'un film par des électrons accélérés. Cette technique permet d'obtenir un profil de concentration gaussien avec des profondeurs de pénétration de quelques  $\mu\text{m}$  [14]. Elle nécessite cependant des énergies d'implantation élevées pour atteindre de telles profondeurs. Du point de vue industriel, cet aspect constitue un inconvénient car il contribue à augmenter fortement les coûts de production. De plus, le bombardement peut causer des dommages dans le matériau hôte. C'est pourquoi l'implantation ionique est non seulement une technique onéreuse mais également délicate à utiliser.

- *L'échange ionique* [15] est une technique de dopage très utilisée, permettant d'obtenir des guides à gradient d'indice présentant des faibles pertes optiques ( $< 0,2$  dB/cm [16]).

- *Le procédé sol-gel*, dont nous détaillerons le principe dans le chapitre I-I est très adapté à l'élaboration de matériaux polymères ou diélectriques. C'est une des techniques les plus prometteuses pour la fabrication d'amplificateurs à faible coût.

L'étude des lasers et des amplificateurs optiques dopés aux ions de terres rares a débuté, dans les années soixante, avec les travaux de Snitzer sur les fibres optiques dopées avec des ions Néodyme [17]. Les recherches concernant les composants dopés pour l'optique intégrée n'ont réellement commencé qu'à la fin des années quatre-vingt. Depuis une quinzaine d'années, le nombre de publications sur le sujet n'a cessé de croître. Dans le

tableau suivant nous répertorions les principaux résultats concernant les guides amplificateurs dopés aux ions erbium.

Technique d'élaboration	Matériau	[Er <sup>3+</sup> ]	L (cm)	$\tau$ (ms)	Gain (dB@mW)	$\lambda_{pompe}$ (nm)	Réf.
Implantation	LiNbO <sub>3</sub>	1,4.10 <sup>21</sup> /cm <sup>3</sup>	2	2,4	0,6@5	1480	[18]
Diffusion	LiNbO <sub>3</sub>				1,2@87	1480	[19]
F.H.D	Silice	0,55 wt. %	19,4		13,7@640	980	[20]
Pulvérisation	Verre	0,7 at. %	2,4	5	0,0@120	975	[21]
F.H.D.	Silice	3800 ppm	23		9,4@99	980	[22]
F.H.D.	Silice	0,47 wt. %	35		24,0@200	980	[23]
P.E.C.V.D.	Verre	4,3 10 <sup>19</sup> /cm <sup>3</sup>	7,5		5,0@420	980	[24]
P.E.C.V.D.	Verre	0,48 at. %	6,6		2,2@420	980	[25]
Echange d'ions	Verre	3,3 10 <sup>19</sup> /cm <sup>3</sup>	3,8	8	0,5@180	528	[26]
Pulvérisation	Verre	1,4 at. %	4,5		15,0@280	975	[27]
Pulvérisation	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0,34 at. %	3,9	6,1	14,0@2	1480	[28]
F.H.D	Silice	0,45 wt. %	47,7		27,0	980	[29]
Echange d'ions	Verre	1,98 10 <sup>20</sup> /cm <sup>3</sup>	2	7,6	1,0@35	980	[30]
Implantation	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2,7.10 <sup>20</sup> /cm <sup>3</sup>	4	7,8	2,3@9	1480	[31]
Implantation	Verre	5,3.10 <sup>20</sup> /cm <sup>3</sup>	1	4	4,1	980	[32]
Sol-gel	Verre	0,25 at. %	5,7	6	2,7	980	[33]

Avec [Er<sup>3+</sup>] = concentration en ions erbium, L = Longueur de l'amplificateur,  $\tau$  = durée de vie de fluorescence du niveau <sup>4</sup>I<sub>13/2</sub>,  $\lambda_{pompe}$  = Longueur d'onde de la pompe.

L'objectif de ce travail de thèse a consisté en l'analyse des potentialités du procédé sol gel pour l'optique intégrée. Nous nous sommes intéressés notamment à la réalisation d'amplificateurs optiques dans un matériau vitreux déposé en couches minces. L'étude présentée dans ce rapport constitue les premiers développements de la technique sol-gel au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de Lille.

Ce document de synthèse, rapportant nos travaux, comporte trois parties.

Dans la première, nous commençons par présenter les principes de la méthode sol-gel ainsi que la technique de trempage pour l'obtention de films minces. Le second chapitre décrit la propagation de la lumière dans des guides plans et dans des guides à confinement bidimensionnel. Enfin, un troisième chapitre présente les propriétés spectroscopiques des ions de terres rares.

La seconde partie est composée de deux chapitres, consacrés aux études expérimentales menées sur des guides planaires. Nous présentons une analyse structurale de nos matériaux obtenue au moyen de la spectroscopie Raman par ondes guidées et grâce à différentes techniques de (A.F.M., M.E.B.). Nous présentons également une étude portant sur la caractérisation des émissions de fluorescence des ions erbium incorporés dans les matrices vitreuses. Le premier chapitre traite des guides germanosilicates et le second concerne les guides aluminosilicates.

La dernière partie porte tout d'abord sur la mesure des coefficients d'amplification optique dans des guides en arête. La partie active de ces derniers est constituée d'une matrice amorphe aluminosilicate dopée aux ions erbium. Enfin, nous présentons une modélisation du comportement de nos amplificateurs. Nous exposerons les principes fondamentaux de la méthode des faisceaux propagés (B.P.M.), qui est à la base de notre modèle et présenterons nos premiers résultats numériques.

---

## Bibliographie

- [1] E. Desurvire, *Lightwave Communications : The fifth generation*, Scientific American, **266**, (1992), 114.
- [2] D.E. Zelmon, H.E. Jackson, J.T. Boyd, A. Naumann, D.B. Anderson, *Appl. Phys. Lett.*, **42**, (1983), 565.
- [3] M. Nakazawa, Y. Kimura, *Electron. Lett.*, **28**, (1992), 2054.
- [4] G.N. Van den Hoven, PhD Thesis, Utrecht Univ., The Netherlands, (1996).
- [5] Y.C. Yan, PhD Thesis, Eindhoven Univ., The Netherlands, (1997).
- [6] T.H. Hoekstra H. Albers, P.V.Lambeck, Th.J.A. Popma, *Electron. Lett.*, **29**, (1993), 581.
- [7] M. Kawashi, M. Yasu, T. Edahiro, *Electron. Lett.*, **19**, (1983), 583.
- [8] R. Tuminelli, F. Hattori, J. Haavisto, *Opt. Lett.*, **16**, (1991), 1098.
- [9] T. Kitagawa, K. Hattori, M. Shimizu, Y. Ohmori, M. Kobayashi, *Electron. Lett.*, **27**, (1991), 334.
- [10] K.Shuto, K. Hattori, T. Kitagawa, Y. Ohmori, M. Horigushi, *Electron. Lett.*, **29**, (1993), 139.
- [11] M. Lui, R.A. McFarlane, D. Yap, D. Lederman, *Electron. Lett.*, **29**, (1993), 172.
- [12] M.C. Marco de Lucas, E. Daran, B. Jacquier, C. Garapon, J. Mugnier, P. Pernas, A. Muñoz-Yague, *J. Appl. Phys.*, **83**, (1998), 3345.
- [13] E. Snoeks, PhD Thesis, Utrecht Univ., The Netherlands, (1995).
- [14] A. V. Chelnokov, J.M. Loutioz, PH. Boucaud, H. Bernas, *Electron. Lett.*, **30**, (1994), 1850.
- [15] J.M. Jouanno, Thèse de doctorat, I.N.P. Grenoble, (1995).
- [16] S. Honkanen, *Introduction to glass integrated optics*, Ed. S. Iraj Najafi, Artech House Inc. (1992).
- [17] E. Snitzer, *Phys. Rev. Lett.* **7**, (1961), 444.
- [18] S. Helmfrid, G. Arvidson, J. Webjurn, M. Linnarson, T. Phil, *Electron. Lett.*, **27**, (1991), 913.
- [19] R. Brinkmann, W. Sohler, H. Suche, *Proc. ECOC'91*, (1991), 157.
- [20] T. Kitagawa, K. Hattori, K. Shuto, M. Yasu, M. Kobayashi, M. Horigushi, *Electron. Lett.*, **28**, (1992), 1818.
- [21] J. Shmulovich, A. Wong, Y.H. Wong, P.C. Beker, A.J. Bruce, R.A.DAR, *Electron. Lett.*, **28**, (1992), 1181
- [22] K. Hattori, T. Kitagawa, M. Oguma, M. Wada, J. Temmyo, M. Horigushi, *Electron. Lett.*, **29**, (1993), 357.
- [23] T. Kitagawa, K. Hattori, K. Shuto, M. Oguma, J. Temmyo, S. Suzuki, M. Horigushi, *Proc. ECOC'93*, (1993), 41.
- [24] K. Shuto, K. Hattori, T. Kitagawa, Y. Ohmori, M. Horigushi, *Electron. Lett.*, **29**, (1993), 139.
- [25] K. Shuto, K. Hattori, T. Kitagawa, Y. Ohmori, M. Horigushi, *Proc. ECOC'93*, (1993), 53.
- [26] D. Trouchet, A. Beguin, P. Laborde, C. Lermينياux, *Proc. OFC'93*, (1993), 106.
- [27] J. Shmulovich, Y.H. Wong, G. Nykolak, *Proc. OFC'93*, (1993), 175.

- [28] K. Hattori, T. Kitagawa, M. Oguma, Y. Ohmori, M. Horigushi, *Electron. Lett.*, **30**, (1994), 856.
- [29] T.H. Hoekstra, PhD Thesis, Twente Univ., The Netherlands, (1994).
- [30] J.M.Jouanno, Thèse de doctorat, I.N.P. Grenoble, (1995)
- [31] G.N Van den Hoven, R.J.I.M. Koper, A. Polman, C. van Dam, J.W.M Van Uffelen, M.K. Smit, *Appl. Phys. Lett.*, **68**, (1996), 1886.
- [32] Y.C. Yan, A.J. Faber, H. De Waal, P.G. Kik, A. Polman, *Appl. Phys. Lett.*, **71**, (1997), 1922.
- [33] X. Orignac, Thèse de doctorat, I.N.P. Grenoble, (1997).





## Partie I :

Ch. I-I :La méthode sol-gel

Ch. I-II : Optique Guidée et optique Intégrée

Ch. I-III : Propriétés spectroscopiques des ions erbium

## Chapitre I-I

### La Méthode sol-gel

Dans ce premier chapitre, nous nous intéressons aux bases du procédé sol-gel que nous avons utilisé pour la réalisation de structures optiquement guidantes. Bien que le procédé sol-gel soit connu de longue date [1], son utilisation ne connaît un essor important que depuis deux décennies.

Basé sur des principes simples de chimie, ce procédé consiste à mettre des précurseurs en solution. Cette solution, encore appelée le sol, contient des particules solides dispersées. Les précurseurs subissent des réactions d'hydrolyse et de condensation qui ont pour conséquence la transformation du sol en gel, d'où le nom du procédé. Les avantages majeurs de la méthode sol-gel résident dans la chimie "douce" utilisée. Celle-ci permet, en effet, de contrôler chacune des étapes de la synthèse et de fabriquer des matériaux présentant des propriétés préalablement définies. Outre sa simplicité de mise en œuvre, cette technique permet également d'obtenir des matériaux de grande pureté grâce à la pureté des précurseurs utilisés. Les propriétés physiques des sols et des gels autorisent l'élaboration de matériaux sous forme de fibres, de poudres, de monolithes ou encore de films minces. Cette variété de mise en forme ouvre ainsi la porte à de nombreuses applications dans des domaines tels que l'optique, l'électronique, l'industrie des verres,...

Ce présent chapitre est composé de trois parties. Après un bref rappel historique, nous aborderons les principes physico-chimiques de la méthode sol-gel et discuterons de l'importance de la densification. La troisième partie sera consacrée à la description de l'élaboration des films minces par voie sol-gel.

L'approche proposée dans le cadre de ce travail, n'est pas une présentation exhaustive de la méthode sol-gel. Pour une étude plus complète, la synthèse réalisée par Brinker et Scherrer [2] dans Sol-gel Science, peut être consultée avec profit. Du point de vue de la technologie et des applications, l'ouvrage édité par L.C. Klein [3] fait référence.

### I. Généralités

#### I. 1. Historique

A l'état naturel, les sols et les gels constituent des formes de matières connues depuis longtemps. On peut citer en exemple les argiles, les encres, la vitrée de l'œil, le sérum, le lait [4].

Les travaux d'Ebelmen [1,5] et Graham [6] au XIX<sup>ème</sup> siècle constituent la première approche du procédé sol-gel. Ces premières investigations ont montré que l'hydrolyse du TétraEthylOrthoSilicate (TEOS), dans un milieu de faible pH, aboutit à la formation d'un oxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ). De nombreux matériaux inorganiques, notamment les verres et les céramiques, sont basés sur des oxydes simples ou multicomposants. La remarquable stabilité thermique et chimique des oxydes, a fortement contribué à leur développement.

Du point de vue théorique, une avancée importante a été réalisée dans les années 1930 avec la publication des travaux de Hurd [7], qui mit en évidence la structure en réseau du gel de silice. Plus tard, Flory [8] développa un modèle permettant la compréhension de la structure du réseau d'un gel et de la cinétique de sa formation.

Pendant de nombreuses années, l'intérêt des sols et des gels a été purement scientifique. Les catalyseurs furent les premières applications de ces matériaux. Au début des années 50, Geffcken [9] a montré que les alkoxydes pouvaient être utilisés dans la formation de couches minces d'oxydes. L'orientation des travaux de recherche vers les céramiques plus techniques [10] a commencé dans les années 60, et depuis les années 70 le nombre de publications dans le domaine des gels et des colloïdes n'a cessé de croître.

#### I. 2. Applications

Le procédé sol-gel est particulièrement simple à mettre en œuvre. Il permet de réaliser des dépôts sur des supports très variés : verres, céramiques, métaux, polymères, substrats de silicium, ...

En optique, ce procédé peut être utilisé dans la production de traitements antireflet [11,12], de composants à effets électro-optique [13], de matériaux pour l'optique non linéaire [14-18], et de guides d'ondes pour l'optique intégrée [19-30]. Parmi les développements récents, citons le HUD (Head Up Display) produit au Japon pour l'industrie automobile. Un film  $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$  d'environ  $0,2 \mu\text{m}$  d'épaisseur est déposé en haut du pare-brise. Ce dépôt sert d'écran pour visualiser les informations (vitesse, heure, kilométrage, etc.) émises par un tube fluorescent.

Dans le cadre de travaux sur les lasers de puissance mégajoule, le CEA a développé un savoir-faire important dans le domaine des couches minces optiques (lentilles antireflet, miroirs, etc.) déposées par voie sol-gel [30,32]. Leur technologie repose sur le dépôt d'une monocouche poreuse qui se caractérise par une grande résistance au flux

laser. L'avantage de la technique sol-gel, pour cet exemple, réside dans la possibilité de recouvrir une grande surface (lentille de focalisation de 800 mm de diamètre) sans utiliser le vide, ce qui diminue fortement les coûts de production.

Dans un autre registre d'applications, citons les nombreux travaux sur les propriétés de photosensibilité des matériaux sol-gel [33-41]. En ce qui concerne l'amplification optique, une étude très détaillée dans la partie III de cette thèse montrera l'intérêt grandissant de la technique sol-gel pour l'élaboration de matériaux actifs.

L'électronique offre, elle aussi, des débouchés importants pour les films sol-gel. Le procédé est compatible avec les technologies modernes et les dépôts sol-gel peuvent être réalisés sur des substrats de silicium. Il n'y a pas encore que peu d'applications commercialisables, mais de nombreuses recherches se poursuivent actuellement dans plusieurs laboratoires à travers le monde. Les travaux portent, essentiellement, sur les dépôts céramiques tels que  $\text{BaTiO}_3$  (diélectrique) [42,43],  $\text{PbTiO}_3$  [44,46], et sur des matériaux présentant des propriétés piézo-électriques [47,49] ou supraconductrices [50,51].

Les revêtements protecteurs constituent eux aussi un marché potentiel important pour les produits issus du procédé sol-gel. Des revêtements anticorrosion ( $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ ) peuvent être déposés sur des aciers [52,53], voire même sur des matériaux composites à base de fibre de carbone ou de SiC. Des revêtements hydrophobes à base de produits fluorés sont déposés sur des pare-brise. Des revêtements anti-rayure à base de silice sont utilisés pour protéger les optiques en matériau polymère [31].

Les matériaux sol-gel peuvent se trouver sous diverses formes telles que des poudres, des monolithes, des couches minces ou des fibres. L'adaptation des paramètres physico-chimiques, rend possible la synthèse de gels dont la viscosité est adaptée à l'élaboration, à basse température de fibres de matériaux réfractaires, ce qui est difficilement réalisable par des techniques de fusion. Ainsi, des fibres de silice pure ont pu être fabriquées à des températures inférieures à 1000 °C [11] alors que les techniques conventionnelles nécessitent des températures voisines de 1700 °C.

Parmi les autres applications, on peut citer les conducteurs ioniques et superioniques [54], les filtres et membranes [55-57], la fixation de gaz polluants [58], les dépôts protecteurs sur les disques de mémoires optiques [59,60]. Bien sûr, cette liste n'est pas exhaustive puisque de nouvelles applications du procédé sol-gel sont sans cesse découvertes.

### I. 3. Quelques définitions

Le procédé sol-gel est une méthode de préparation de verres ou de céramiques à partir de solutions de métaux organiques et de composés inorganiques au travers d'une série de réactions chimiques. Celles-ci permettent l'obtention du sol qui évolue avec le temps pour former le gel.

Un *sol* se définit comme une dispersion stable de particules solides au sein d'un liquide. Il faut distinguer les sols polymériques des sols particulaires [61]. Dans les sols polymériques, la phase solide se présente sous la forme de polymères ou d'oligomères. Pour ce qui est des sols particulaires, les atomes se regroupent en amas pour former des particules colloïdales. La méthode sol-gel offre ainsi la possibilité d'élaborer des matériaux chimiquement très différents.

On définit le *gel* comme un réseau solide tridimensionnel stable interconnecté, expansé au travers du milieu liquide. Le liquide, présent dans les mailles du réseau solide, est en équilibre thermodynamique avec celui-ci. Lorsque le liquide prédominant est majoritairement constitué d'eau, le gel mou obtenu est appelé **hydrogel**. Si le liquide est essentiellement constitué d'alcool, le gel obtenu est un **alcogel**. Lors du retrait du liquide, le gel se transforme en un solide fragile. De même que pour les sols, on distingue les gels colloïdaux et les gels polymériques en fonction de la nature du réseau solide.

Dans le sol, les composants sont dispersés de façon homogène. Cette homogénéité est fixée dans le gel. Un sol se transforme en gel en passant par ce que l'on appelle un **point de gélification**.

## II. Principes physico-chimiques du procédé sol-gel

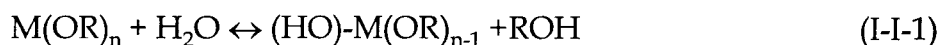
### II. 1. les précurseurs

Comme nous l'avons indiqué précédemment, le processus sol-gel peut emprunter deux voies de formation du gel : soit le gel est polymérique, soit il est particulaire. De plus, le choix du catalyseur permet d'orienter les réactions de synthèse suivant la nature du gel recherchée. En règle générale, les milieux basiques favorisent la condensation plutôt que l'hydrolyse et donc la formation de gels colloïdaux. Les catalyseurs acides, quant à eux, favorisent l'hydrolyse et permettent la formation du gel polymérique.

La méthode que nous avons employée est celle de la polymérisation d'entités moléculaires [62]. Elle consiste à hydrolyser des composés organométalliques en milieu organique (alcool, hydrocarbures). Ces précurseurs sont essentiellement des alkoxydes métalliques de formule  $M(OR)_n$  où M désigne un élément métallique dont le nombre de coordination est n, et OR un groupement alkoxy hydrolysable. Leur réactivité dépend de l'électronégativité du métal.

## II. 2. Les mécanismes réactionnels

En présence de molécules d'eau, les alkoxydes métalliques subissent des réactions d'hydrolyse et de condensation. Lors de la réaction d'hydrolyse, il y a substitution d'un groupe alkoxy (OR) par un groupement hydroxyle (OH), qui s'accompagne de la libération d'une molécule d'alcool. La réaction d'hydrolyse s'écrit schématiquement :



Comme on peut le remarquer, il s'agit d'une réaction réversible [63]. Si la quantité d'eau présente permet de réaliser la réaction jusqu'à complétion, tous les groupements (OR) sont remplacés par des groupements hydroxyles (OH) :



La seconde hypothèse aboutit à des précurseurs partiellement hydrolysés de formule  $M(OR)_{n-x}(OH)_x$ .

Après cette première substitution, la condensation rapide qui établit des pontages via les atomes d'oxygène, conduit à la formation de réseaux bi ou tridimensionnels. Les premières étapes de la condensation conduisent à la formation de dimères suivant deux processus :

*La déshydratation :*

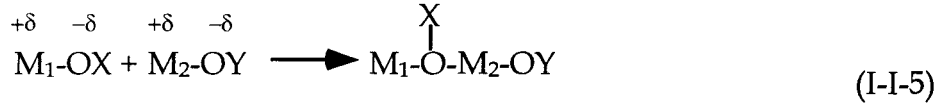


*La dé-alcolisation :*



Du point de vue théorique, ces réactions d'hydrolyse-condensation peuvent être décrites par les modèles d'addition et de substitution nucléophile.

\* L'*addition nucléophile* schématisée comme suit :



où  $M_1$  et  $M_2$  désignent des atomes métalliques, X et Y correspondent à un proton ou à un groupement alkyl et  $\delta$  représente la charge. L'oxygène chargé négativement (nucléophile) attaque le métal chargé positivement (électrophile) pour former la liaison.

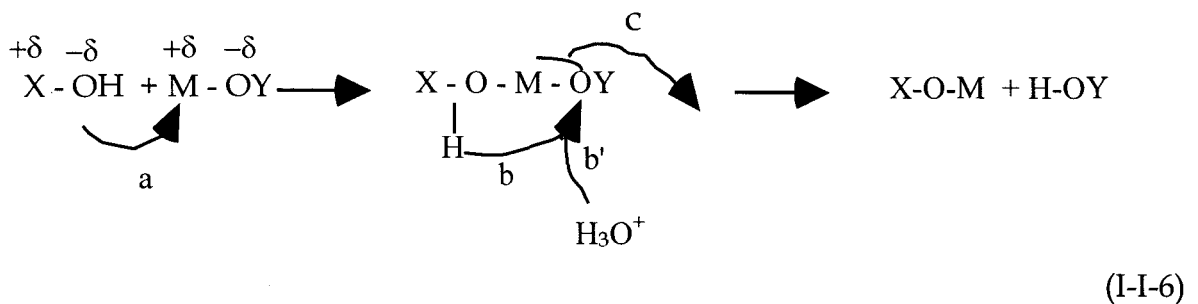
\* Dans le cas de la *substitution nucléophile*, qui est le mécanisme le plus répandu en chimie du sol-gel, le modèle comporte trois étapes :

a) le nucléophile XOH s'additionne au métal électrophile,

b) dans l'état de transition (HOX)--M--(OY), le proton du nucléophile est transféré vers le nucléophage (OY),

b') un proton issu du solvant peut générer la protonation,

c) départ du nucléophage qui s'élimine d'autant mieux qu'il est protoné.



Si Y est un radical R, suivant la nature de X, cette réaction décrit :

- une hydrolyse si  $X = H$ ,
- une condensation si  $X = M$ .

## II. 3. La transition sol-gel

Initialement les réactions de condensation libèrent une petite molécule ( $H_2O$ , ROH) et des dimères. Ces réactions se poursuivent afin de créer des molécules de plus en plus grandes : c'est le processus de **gélification**. L'établissement de liaisons entre les molécules de la solution aboutit à la formation d'un réseau solide tridimensionnel. La gélification est différente de la solidification classique d'un liquide puisque la structure solide est imprégnée par le liquide du sol. Ce processus peut être décrit tant du point de vue microscopique que macroscopique.

### II. 3. 1. Aspect microscopique

A l'échelle microscopique, les étapes de la transition sol-gel peuvent être schématisées par l'évolution d'une solution diluée de monomères trifonctionnels [64], comme le montre la figure I-I-1.

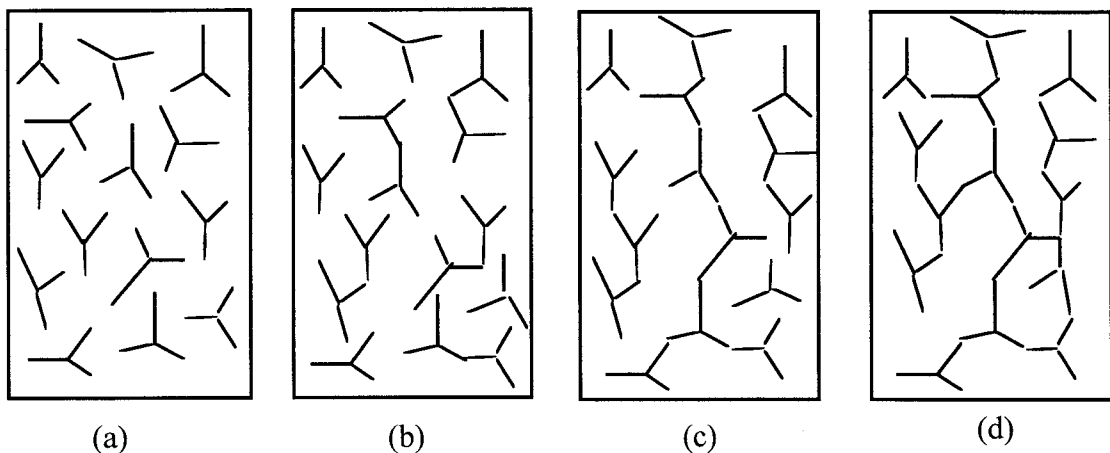


Figure I-I-1 : La transition sol-gel - Aspect microscopique [64].

\* Le sol constitue la phase initiale (a), contenant les précurseurs, le solvant (alcool) et l'eau et éventuellement un catalyseur (ex : HCl).

\* Au cours de l'avancement des réactions d'hydrolyse et de condensation, des amas polymériques, dont la taille croît avec le temps, se forment (b). Ce phénomène est accompagné d'une augmentation de la viscosité macroscopique du milieu réactionnel.

\* Lorsqu'un de ces amas atteint une taille presque infinie (c) (c'est à dire pratiquement de la taille du récipient) la viscosité devient également infinie : c'est le **point de transition sol-gel**.



\* A partir de cet instant, l'amas infini, encore appelé fraction gel, continue de grossir en incorporant les groupements polymériques de plus petite taille (d). Lorsque toutes les liaisons chimiques ont été utilisées, le gel est formé et la réaction est terminée.

### II. 3. 2. Aspect macroscopique

Du point de vue macroscopique, la transition sol-gel peut être suivie en étudiant le comportement mécanique de la solution [65]. Tout d'abord, on observe une augmentation de la viscosité de la solution au fur et à mesure des réactions chimiques. A l'approche du point de transition, celle-ci tend vers l'infini. Au-dessus du point de gélification, on soumet le solide à une déformation en torsion et on mesure le module de cisaillement en fonction du temps comme représenté sur la figure I-I-2 [66].

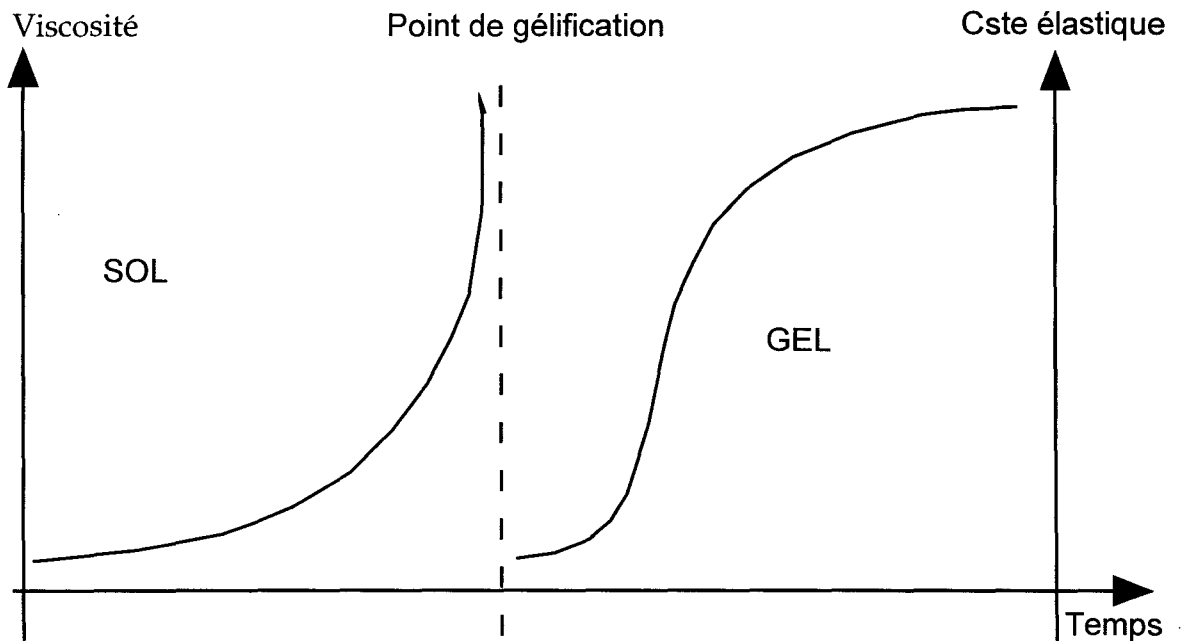


Figure I-I-2 : La transition sol-gel - Aspect macroscopique [66].

### III. Densification des gels

Au-delà du point de gélification, les matériaux issus des réactions de condensation sont des gels humides. Ils se présentent sous la forme d'un réseau tridimensionnel de chaînes polymériques, incluant des pores de différentes tailles remplis de liquide (solvants, eau, etc.).

#### III. 1. Le vieillissement

Dans le cas des gels humides, non solubles dans l'eau, l'évolution du matériau entre la gélification et le séchage peut se décomposer comme suit [67] :

- Un accroissement volumique, lié à l'expulsion de molécules d'eau par condensation, se produit durant la gélification (figure I-I-3 b, c).
- Le gel expansé subit un retrait volumique après le point de gélification par exudation du solvant : c'est la **synérèse** (figure I-I-3 d). La contraction de la phase solide chasse le solvant hors des pores.
- La réticulation du réseau continue après le point de gélification. Elle se manifeste par une augmentation du taux d'oxydes dans le gel, ce qui engendre une rigidification du réseau.

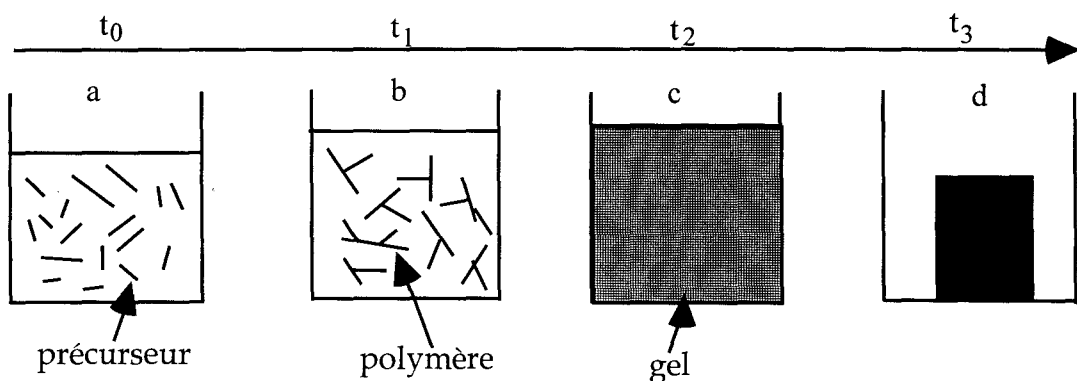


Figure I-I-3 : Changement de volume d'un gel pendant la synérèse [67].

Le phénomène de synérèse peut être considéré comme un processus diminuant l'énergie du système par réduction de l'interface liquide-solide, qui aboutit :

- au rapprochement des groupes hydroxyles susceptibles de condenser,
- à la réticulation du matériau.

### III. 2. Le séchage

Le séchage du gel humide est généralement obtenu par évaporation des solvants à température ambiante ou après un léger chauffage. Le produit alors obtenu, appelé **xérogel**, présente une texture poreuse notablement effondrée par rapport à celle du gel humide. Dès que le gel perd son comportement viscoélastique (évaporation du solvant), son retrait volumique n'est pas égal à celui du volume évacué. Les pores se vident et apparaît à l'intérieur de ceux-ci une interface liquide-vapeur.

Dans le cas d'une distribution hétérogène de la taille des pores, l'hétérogénéité des forces capillaires provoque des craquelures dans la texture poreuse du xérogel. Deux solutions peuvent être mises en place afin d'éviter l'apparition de celles-ci:

- Au niveau de l'élaboration de la solution, on introduit des additifs de séchage (DCCA : Drying Control Chemical Additives). Ils ont pour effet d'homogénéiser la taille des pores du gel et de durcir sa structure de façon à uniformiser et réduire l'influence des forces capillaires [68].

- En évacuant les solvants en autoclave dans des conditions hypercritiques de température et de pression [69]. On cherche alors à diminuer les effets de l'interface liquide-vapeur. Le gel obtenu dans ces conditions est un **aérogel**.

### III. 3. Densification par traitement thermique

Après séchage, le gel sec encore friable, subit un traitement thermique destiné à le densifier. Les conditions de densification par recuit dépendent de plusieurs facteurs intrinsèques comme la porosité, la concentration de groupements organiques résiduels et des groupes hydroxyles, et extrinsèques tels que l'atmosphère environnante, la température, la vitesse, et le temps de recuit. Au cours de la densification, on note une évolution des propriétés physico-chimiques et structurales du gel [70].

Dans un premier temps, le gel voit sa masse diminuer de façon importante sans diminution de son volume [71] (Figure I-I-4 : Région I). La perte de masse est causée par une augmentation de la tension de surface liée à la désorption d'eau (ou du solvant) physiquement adsorbée [72].

La perte en masse et la contraction, dans la région II, s'expliquent par l'évacuation des groupements organiques, par la polymérisation et par la relaxation structurale. Le départ des matières organiques se fait par oxydation sous une atmosphère riche en oxygène afin d'éviter la formation de carbone. La polymérisation génère une diminution de volume liée à la condensation qui se produit à la fois à la surface et à l'intérieur du gel. La relaxation structurale, phénomène exothermique de réduction irréversible de l'énergie libre, engendre une densification du squelette sans perte de poids. Elle résulte des déplacements du réseau par diffusion.

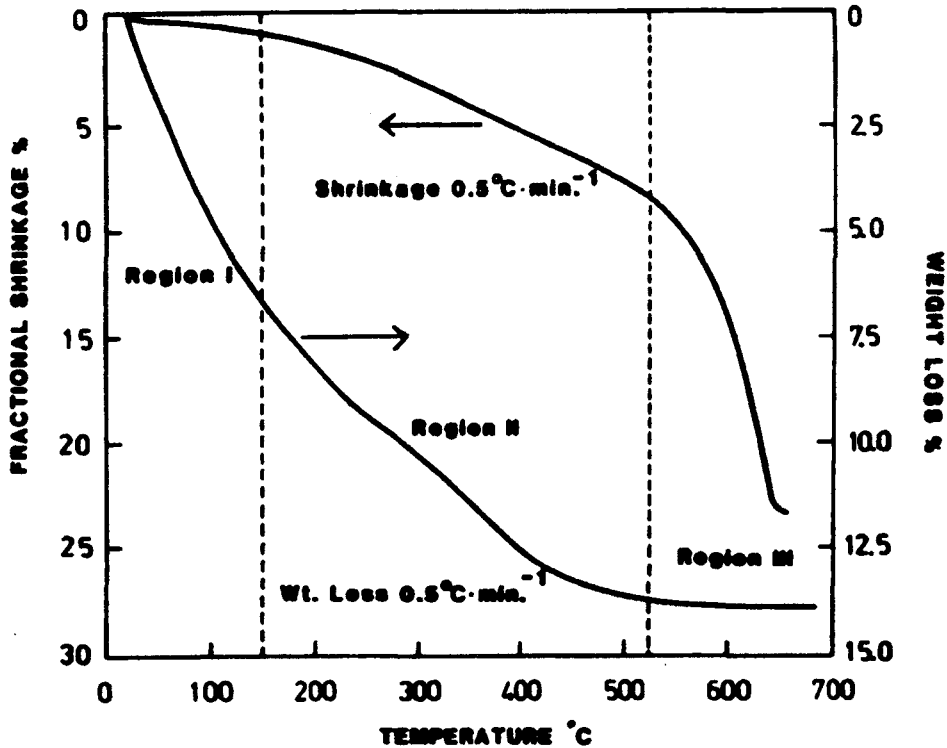


Figure I-I-4 : Perte en poids et compression linéaire en fonction de la température de recuit [71]. Vitesse de recuit 0,5°C/min.

Dans la région III, on observe une importante compression linéaire alors que la perte de poids est quasiment inexistante. Brinker et al. [72] ont montré que la compression linéaire dans cette région s'accompagne d'une densification importante du squelette. La relaxation structurale est le mécanisme dominant.

L'ensemble de ces transformations peut être suivi à l'aide de plusieurs techniques expérimentales. Nous traiterons de l'analyse structurale de nos matériaux sol-gel, accomplie au moyen de la Spectroscopie Raman couplée aux techniques de microscopie électronique à balayage (M.E.B.) et à effet de force atomique (A.F.M.). Les résultats seront présentés et discutés dans la Partie II de cette thèse.

## IV. Avantages et inconvénients du procédé sol-gel

### IV. 1. Avantages

Parmi les nombreux avantages du procédé sol-gel, citons :

- La grande pureté des matériaux obtenus qui est en majeure partie liée au choix des précurseurs et des solvants utilisés. Il est en outre facile de les purifier, par des cycles de distillation et de recristallisation.
- La réalisation de matériaux à base d'oxydes multicomposants est rendue très facile par la chimie douce qu'utilise le procédé sol-gel. L'élaboration par des techniques conventionnelles se heurte à des problèmes de démixtion.
- La synthèse à basse température permet l'utilisation d'un équipement léger et minimise les coûts de fabrication.
- L'homogénéité des produits sol-gel, liée au fait que les réactions chimiques se produisent en phase liquide.
- La variété de mise en forme des matériaux : fibres, monolithes, films minces.
- La versatilité, c'est à dire la possibilité d'élaborer de nombreux oxydes métalliques et d'utiliser une multitude de dopants.

### IV. 2. Inconvénients

Ce procédé connaît également quelques inconvénients. En particulier :

- Le coût élevé de certains précurseurs, lié surtout à leur grande pureté.
- La difficulté de réaliser des matériaux massifs de grandes dimensions. Les problèmes de contraction du réseau lors de la densification du gel en sont les principales causes.
- L'élimination des groupements hydroxyles résiduels nécessitant des traitements à haute température, qui peuvent détériorer la qualité des matériaux.
- L'élaboration de solutions stables et de matériaux de bonne qualité optique, dans le cas de certains oxydes, impose des conditions critiques, au niveau de la chimie et des recuits.

## V. Les films minces élaborés par voie sol-gel

L'étude des couches minces occupe une place importante dans le cadre des recherches menées sur les matériaux obtenus par voie sol-gel. En comparaison avec les techniques classiques de dépôt de couches minces (évaporation, C.V.D., M.O.C.V.D., pulvérisation, etc.), le procédé sol-gel bénéficie de sa facilité de mise en œuvre et surtout de la faiblesse des coûts de production.

L'élaboration des couches minces est basée sur l'utilisation d'une solution de précurseurs organométalliques. Comparée à la réalisation de blocs monolithiques, elle nécessite une préparation particulière. La cinétique de gélification doit être suffisamment lente pour stabiliser les paramètres physico-chimiques lors du dépôt. La viscosité de la solution est un paramètre fondamental, car elle détermine à la fois l'homogénéité des couches et l'épaisseur des dépôts.

Nous avons vu précédemment qu'il est possible de réaliser des verres de qualité pour l'optique par la méthode sol-gel. Les applications en optique intégrée nécessitent l'élaboration de matériaux sous forme de couches minces. Plusieurs techniques de dépôts existent, mais nous ne décrirons ici que celles que nous avons utilisées.

### V. 1. Le dépôt par centrifugation (spin-coating)

La technique de dépôt par centrifugation consiste à déposer quelques gouttes de la solution préparée au centre du substrat de symétrie radiale. Ce dernier est entraîné en rotation (vitesse de rotation de l'ordre de quelques milliers de tours par minute). Cette rotation engendre une évaporation très rapide du solvant et la gélification se produit tout aussi rapidement. Cette technique peut se décomposer en quatre étapes (figure I-I-5) :

- (1) Dépôt de la goutte,
- (2) Spin-up, phase d'accélération provoquant l'écoulement radial de la solution vers l'extérieur,
- (3) Spin-off, rotation à vitesse constante : éjection de l'excès de liquide sous forme de gouttelettes qui provoque une diminution de l'épaisseur du film de manière uniforme.
- (4) Evaporation.

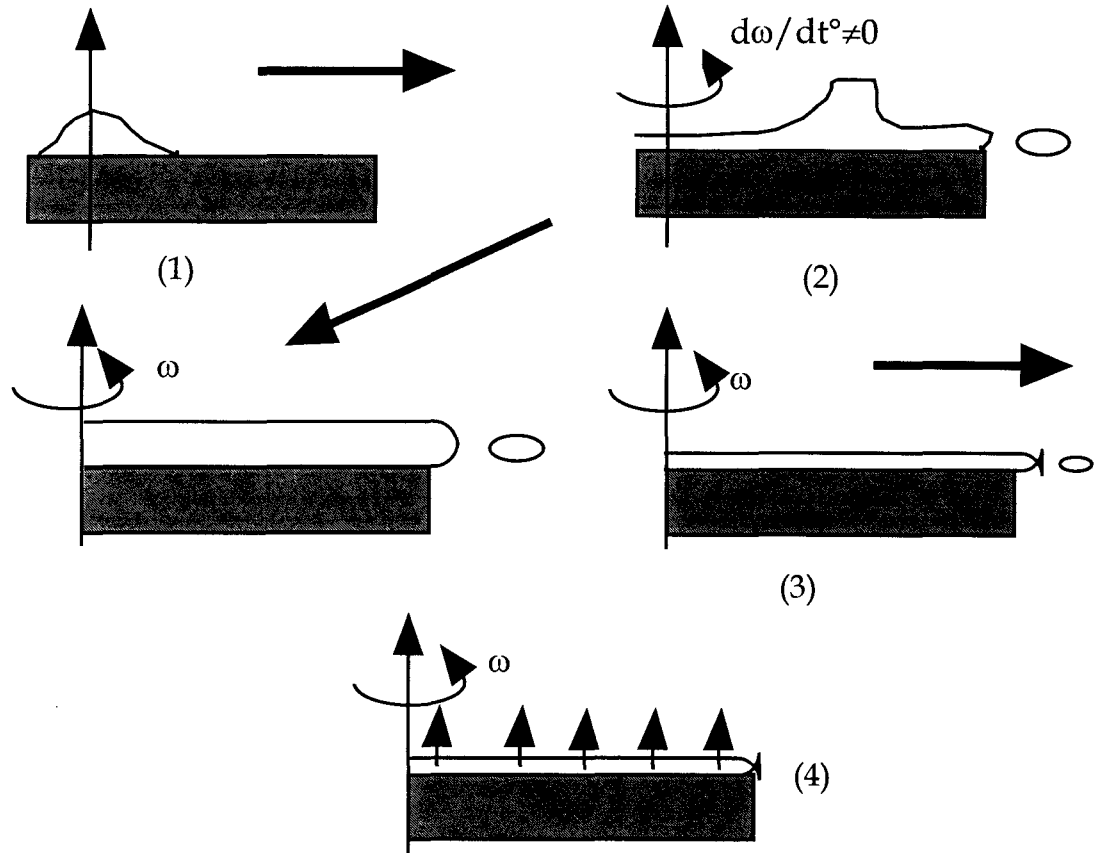


Figure I-I-5 : Les étapes du dépôt par centrifugation [73].

La formation de la couche résulte de l'équilibre entre deux forces : la force centrifuge (dirigée vers l'extérieur) et la résistance due à la viscosité (vers l'intérieur). L'épaisseur de la couche uniforme varie alors durant la phase 3 en obéissant à la loi suivante :

$$h(t) = \frac{h_0}{\sqrt{1 + \frac{4\rho\omega^2 h_0^2 t}{3\eta}}} \quad (\text{I-I-7})$$

dans laquelle  $h_0$  est l'épaisseur initiale,  $\eta$  la viscosité de la solution,  $\rho$  sa masse volumique,  $t$  le temps de rotation, et  $\omega$  la vitesse angulaire de rotation.

L'épaisseur finale de la couche est donnée par la formule de Meyerhofer [74] et tient compte de l'évaporation durant toutes les étapes de l'élaboration :

$$h_f = \left(1 - \frac{\rho_A^0}{\rho_A}\right) \left(\frac{3\eta e}{2\rho_A^0 \omega^2}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{I-I-8})$$

où  $\rho_A$  est la masse du solvant volatil par unité de volume de sol,  $\rho_A^0$  sa valeur initiale au début de l'étape d'évaporation et  $e$  la vitesse d'évaporation du solvant.

Les équations (I-7) et (I-8) mettent en avant deux groupes de paramètres :

- ceux liés à la solution : la viscosité, la masse volumique, la concentration du solvant, sa vitesse d'évaporation,
- ceux d'origine extérieure : la vitesse et le temps de rotation.

L'épaisseur finale des dépôts de films minces par centrifugation varie de 0,1 à 0,3  $\mu\text{m}$  [74].

### V. 2. Le dépôt par trempage (dip-coating)

#### V. 2. 1. Principe

Cette méthode consiste à tremper, comme son nom l'indique, un substrat d'une grande propreté dans le sol et à le retirer à vitesse constante afin d'obtenir une couche uniforme. Elle conduit par des mécanismes complexes à la formation d'un film solide à la surface du substrat. Cette méthode de dépôt a été décomposée en quatre étapes successives (figure I-I-6) par Scriven [76] :

- (1) l'immersion,
- (2) le retrait,
- (3a) le dépôt,
- (3b) le drainage,
- (4) l'évaporation.

Par rapport aux méthodes conventionnelles, le dépôt par trempage n'exige pas d'équipements lourds et onéreux. Cependant l'avantage le plus important qu'elle présente réside dans la possibilité de réaliser des films d'une grande homogénéité et de contrôler l'épaisseur en ajustant la viscosité du sol ou la vitesse de retrait.



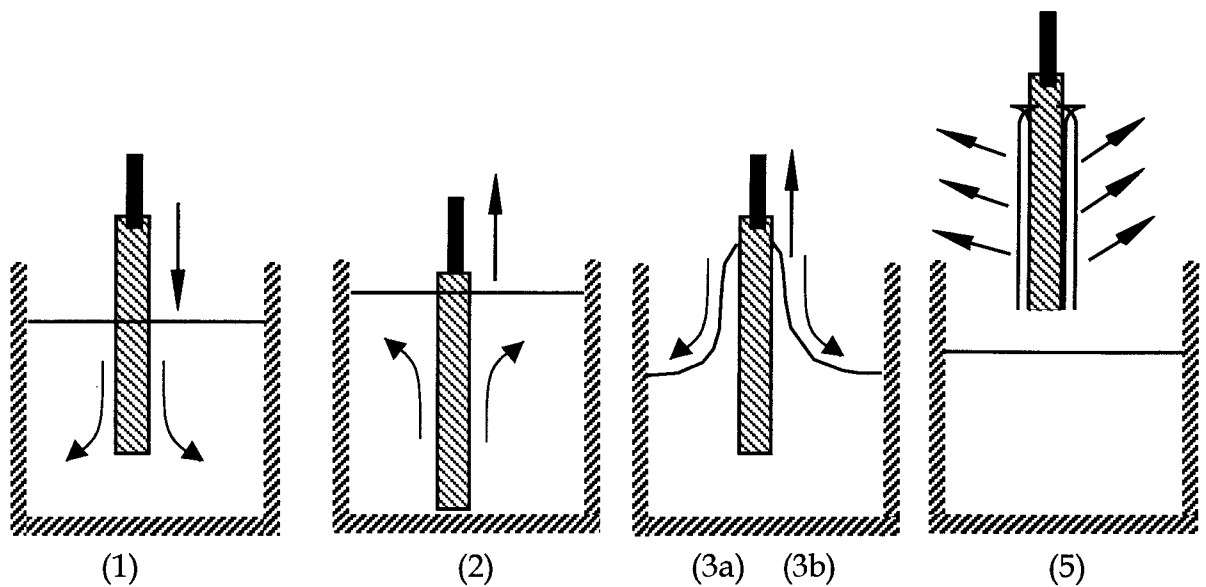


Figure I-I-6 : Les étapes du dépôt par trempage [76].

### V. 2. 2. Contrôle de l'épaisseur des dépôts

Lors de son retrait, le substrat entraîne une partie du sol sous forme d'un film fluide qui se scinde en deux à l'approche du ménisque. Le premier au voisinage du substrat est animé d'une vitesse suffisante pour l'accompagner dans son ascension; le second retourne dans le récipient (figure I-I-7). L'intersection du ménisque avec la surface séparant les deux films définit la ligne de stagnation. La position de cette surface de séparation définit l'épaisseur du film déposé. Elle est gouvernée par la compétition entre plusieurs forces s'exerçant dans la zone de dépôt [76].

Lorsque la vitesse ( $U$ ) de retrait du substrat et la viscosité ( $\eta$ ) du sol sont assez élevées pour réduire la courbure du ménisque, l'épaisseur ( $h$ ) du dépôt dépend de l'équilibre entre la force d'entraînement visqueux et la gravitation :

$$h = c \cdot \left( \frac{\eta \cdot U}{\rho \cdot g} \right)^{1/2} \quad (\text{I-I-9})$$

Dans le procédé sol-gel, la viscosité du sol ainsi que la vitesse de retrait sont souvent faibles, la compétition devient alors tripartite. Landau et Levich [77] ont établi dans ce cas la relation suivant :

$$h = 0,94 \cdot \left( \frac{\eta \cdot U}{\gamma_{LV}} \right)^{1/6} * \left( \frac{\eta \cdot U}{\rho \cdot g} \right)^{1/2} \quad (\text{I-I-10})$$

Cette expression traduit simplement la modulation de l'équilibre précédent par le rapport entraînement visqueux/tension superficielle.

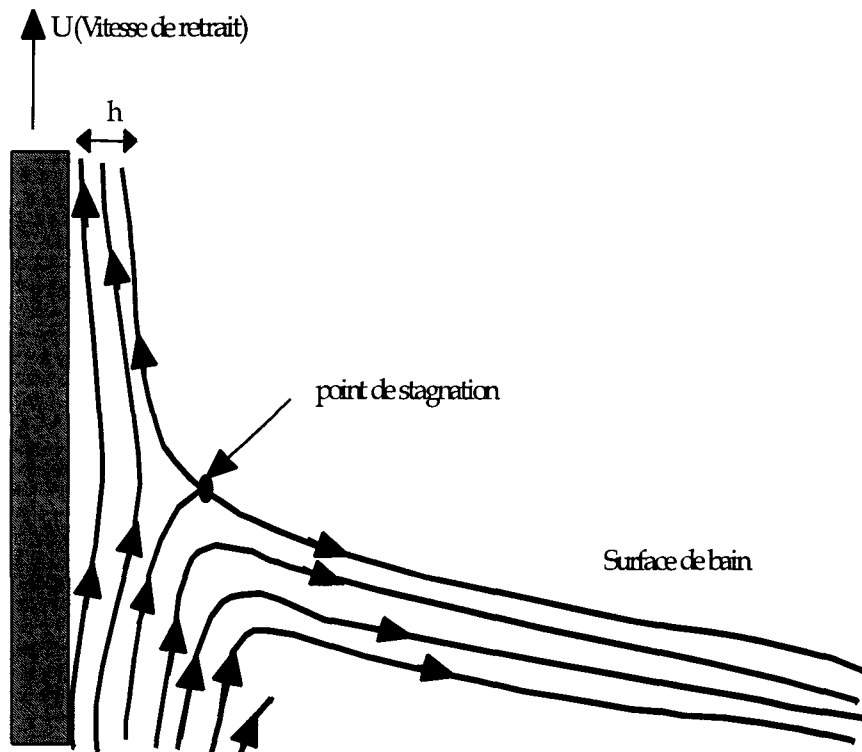


Figure I-I-7 : Principe physique du retrait [76].

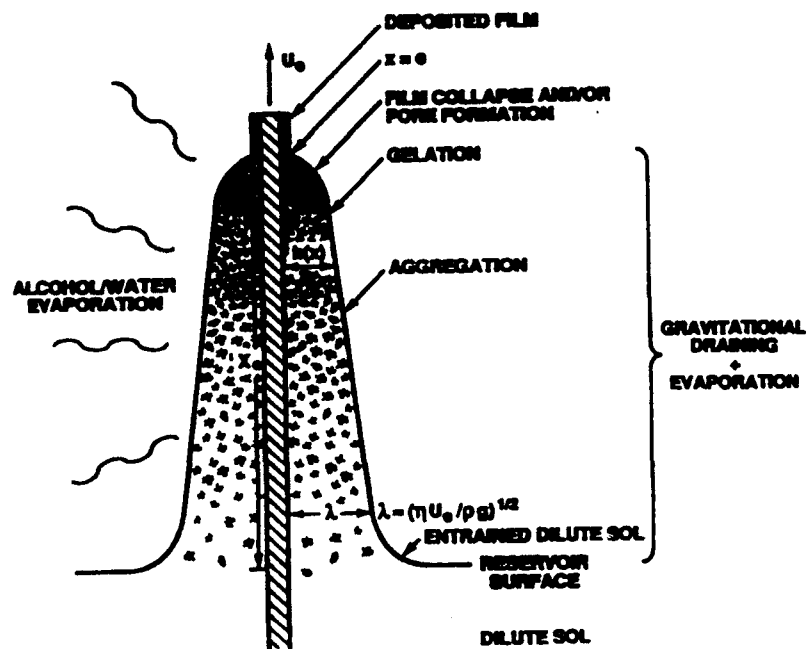


Figure I-I-8 : Formation d'un film mince [78].

### V. 2. 3. Formation du film

Le dépôt liquide dont l'épaisseur a été définie auparavant, subit une évolution rapide et spontanée. Les précurseurs sont rapidement concentrés à la surface du support par le drainage et l'évaporation des solvants (figure I-I-8).

- Dans le cas de particules répulsives, celles-ci s'assemblent en adoptant une organisation proche de celle du liquide ou du cristal selon sa vitesse de tirage.

- Dans le cas d'entités réactives, la structure obtenue est le résultat d'un compromis entre l'évaporation et la condensation. Le premier phénomène compacte la structure alors que le second lui donne la consistance s'opposant ainsi à la compaction. Ce chevauchement et cette compétition n'ont pas lieu dans le processus qui donne lieu à la formation du gel massique. Ils permettent dans le cas des couches minces, par l'ajustement des cinétiques d'évaporation et de condensation, un véritable contrôle de la porosité des dépôts.

La dernière étape de transformation correspond à un effondrement de la texture du film, qui résulte des forces de pression capillaires induites par l'interface liquide-vapeur à l'intérieur des pores :

$$P = \frac{2\sigma \cos\theta}{r} \quad (\text{I-I-11})$$

où  $\theta$  est l'angle de mouillage,  $\sigma$  la tension superficielle et  $r$  le rayon des pores.

### V. 2. 4. Avantages et limites du procédé de trempage

#### a. Avantages

Outre le contrôle de l'épaisseur des dépôts et la possibilité d'ajuster la microstructure finale des films, le procédé de trempage présente d'autres avantages :

- Les films obtenus par cette technique sont très homogènes, reproductibles et ne présentent pas de variations significatives d'épaisseur.

- Il est possible d'utiliser des substrats dont la taille peut atteindre plusieurs mètres ; d'où l'aspect économique de cette technique.

- Les dépôts multicouches sont faciles à produire. Ceci permet en particulier d'obtenir des films dont les caractéristiques optiques (transmission, réflexion, indice,...) peuvent être ajustées à volonté.

- Il est possible de couvrir des substrats de formes diverses (tubes, baguettes, lames, fibres,...).

### **b. Limites**

Les principales limitations résident dans la difficulté d'obtenir des couches relativement épaisses (de l'ordre du micron) présentant de bonnes qualités optiques. Pour la réalisation de guides optiquement actifs, dopés aux ions de terres rares, l'élimination des groupements hydroxyles résiduels reste l'inconvénient majeur.

## Bibliographie

- [1] M. Ebelmen, Comptes Rendus Acad. Sci. Fr., **21**, (1845), 502.
- [2] C.J. Brinker, G.W. Scherer, *Sol-gel Science : The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing*, Academic Press, New York (1990).
- [3] *Sol-gel Optics : Processing and Applications*, Ed. L.C. Klein Kluwer Academic Publishers (1994).
- [4] J. Livage, J. Lemerle, Ann. Rev. Mater. Sci., **12**, (1982), 103.
- [5] M. Ebelmen, Ann. Chimie Phys., **16**, (1846), 129.
- [6] T. Graham, J. Chem. Soc., **17**, (1864), 318.
- [7] C.B. Hurd, Chem. Rev., **22**, (1938), 403.
- [8] P.J. Flory, J. Am. Ceram. Soc., **63**, (1941), 3083.
- [9] W. Geffcken, Glastechn. Ber. **24**, 6, (1951), 143.
- [10] R.W. Ford, *Drying*, Institute of Ceramics, Textbook series, MacLaren and Sons, London, England, (1964).
- [11] R.B. Petit, C.S. Ashley, S.T. Reed and C.J. Brinker, in *Sol-gel Technology for Thin Films, Fibers, Preforms, Electronics, and Specialty Shapes*, Ed. L.C. Klein, Noyes Publications, Park Ridge, New Jersey, (1988), 80.
- [12] B.E. Yoldas, D.P. Partlow, Appl. Opt., **23**, 9, (1984), 1418.
- [13] G.H. Haertling, in *Electronic Ceramics*, Ed. L.M. Levinson, Marcel Dekker, New York and Basel, Switzerland, (1988), 371.
- [14] J.D. Mackenzie, J. Sol-gel Sc. Techn., **1**, (1993), 17.
- [15] G.C. Righini, A. Verciani, S. Pelli, M. Guglielmi, A. Martucci, J. Fick, G. Vitrant, Pure Appl. Opt., **5**, (1996), 655.
- [16] E.J.C. Dawnay, M.A. Fardad, M. Green, E.M. Yeatman, J. Mater. Res., **12**, (1997), 3115.
- [17] S. Gorer, G. Hodes, Y. Sorek, R. Reisfeld, Mater. Lett. : (Gen. Ed. ), **31**, (1997) 209.
- [18] S. Juodkasis, E. Bernstein, J.C. Plenet, C. Bovier, J. Dumas, J. Mugnier, J.V. Vaitkus, Opt. Commun, **148**, (1998), 242.
- [19] N. Tohge, M. Asuka, T. Minami, J. Non-Cryst. Solids, **147-148**, (1992), 652.
- [20] M.A. Fardad, E.M. Yeatman, E.J.C. Dawnay, M. Green, J. Fick, M. Guntan, G. Vitrant, IEE Proc. Optoelectron., **143**, (1996), 298.
- [21] M. Guglielmi, P. Colombo, L. Mancinelli degli Esposti, G.C. Righini, S. Pelli and V. Rigato, J. Non-Cryst. Solids, **147-148**, (1992), 641.
- [22] R.R.A. Syms and A.S. Holmes, IEEE Photon. Tech. Lett., **5**, (1993), 1077.
- [23] A.S. Holmes, R.R.A. Syms, Ming Li and M. Green, Appl. Opt., **32**, (1993), 4916.
- [24] Y. Sorek, R. Reisfeld, I. Feinkelstein and S. Ruschin, Appl. Phys. Lett., **63**, (1993), 3256.
- [25] D.G. Chen, B.G. Potter, J.H. Simmons, J. Non-Cryst. Solids, **178**, (1994), 135.
- [26] S. Pelli, G.C. Righini, A. Scaglione, M. Guglielmi, A. Martucci, Opt. Mat., **5**, (1996), 119.
- [27] X. Orignac, R.M. Almeida, IEE Proc. Optoelectron., **143**, (1996), 287.
- [28] E.M. Yeatman, Preprint from SPIE Crit. Rev. Proc. **CR68**, (1997).
- [29] E.M. Yeatman, K. Pita, M.M. Ahmad, A. Vanucci, A. Fiorello, J. Sol-gel Sci. Tech., sous presse, (1997).

- [30] R.M. Almeida, P.J. Morais, H.C. Vasconcelo, *Sol-Gel Optics IV*, SPIE **3130**, (1997).
- [31] J. Livage, *L'Actualité Chimique (R)*, **10**, (1997), 4.
- [32] M. Ferretti, *Optoélectron.*, **88**, (1996), 48.
- [33] T. Touam, X.M. Du, M. Fardad, M.P. Andrews, S.I. Najafi, *Opt. Eng.*, **37**, (1998), 1136.
- [34] Y. Moreau, P. Arguel, P. Coudray, P. Etienne, J. Porque, P. Signoret, *Opt. Eng.*, **37**, (1998), 1130.
- [35] B. Darracq, F. Chaput, K. Lahlil, J.P. Boilot, Y. Levy, V. Alain, L. Ventelon, M. Blanchard-Desce, *Opt. Mater.*, **9**, (1998), 265.
- [36] F. Chaput, D. Riehl, J.P. Boilot, K. Cargnelli, M. Canva, Y. Levy, A. Brun, *Chem. Mater.*, **8**, (1996), 312.
- [37] S.I. Najafi, M.P. Andrews, T. Touam, X.M. Du, M.A. Fardad, invited paper, *Journées Nationales d'Optique Guidée*, Nice, (1997).
- [38] K.D. Simmons, G.I. Stegeman, B.G. Potter Jr., J.H. Simmons, *J. Non-Cryst. Solids*, **179**, (1994), 254.
- [39] K.D. Simmons, B.G. Potter Jr., G.I. Stegeman, *Appl. Phys. Lett.*, **64**, (1994), 2537.
- [40] K.D. Simmons, J.H. Simmons, *Appl. Phys. Lett.*, **66**, (1995), 2104.
- [41] K.D. Simmons, G.I. Stegeman, B.G. Potter Jr., J.H. Simmons, *Opt. Lett.*, **18**, (1993), 25.
- [42] A. Bahtat, J. Mugnier, M. Bahtat, C. Bovier, J. Serughetti, *J. Sol-gel Sci. Tech.*, **2**, (1994), 555.
- [43] R.G. Dosch, in *Better Ceramics Through Chemistry*, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **32**, (1984), 157.
- [44] K.D. Budd, D.A. Payne, *SPIE Proc.*, **1328**, (1990), 450.
- [45] S.J. Lee, K.Y. Kang, S.K. Han, M.S. Jang, B.G. Chae, Y.S. Yang, S.H. Kim, *Appl. Phys. Lett.*, **72**, (1998), 299.
- [46] C. Urlacher, E. Bernstein, J. Serughetti, J. Mugnier, *Radiation Effects and Defects in Solids*, **136**, (1995), 115.
- [47] K.D. Budd, S.K. Dey, D.A. Payne, *Br. Ceram. Proc.*, **36**, (1985), 107.
- [48] G. Yi, M. Sayer, Z. Wu, C.K. Jen, J.F. Bussiere, *Electron. Lett.*, **25**, (1989), 907.
- [49] A. Di Cristoforo, P. Mengucci, G. Majni, F. Leccabue, B.E. Watts, G. Chiorbolli, **47**, (1997), 263.
- [50] G. Kordas, *J. Non-Cryst. Solids*, **121**, (1990), 436.
- [51] S. Fujihara, Y. Masuda, J.S. Jin, T. Kimura, K. Tanabe, *Phys. C. Supercond.*, **290**, (1997), 63.
- [52] C. Bernard-Chino, *Thèse de Doctorat*, Université C. Bernard de Lyon, (1992).
- [53] L.F. Permodo, L.A. Avaca, M.A. Aegerter, P. De Lima-Neto, *J. Mater. Sci. Lett.*, **17**, (1998), 295.
- [54] J.P. Boilot, P. Colomban, in *Sol-gel Technology for Thin Films, Fibers, Preforms, Electronics and Specialty Shapes*, Ed. L.C. Klein, Noyes Publications, New Jersey, (1988), 303.
- [55] L.C. Klein, in *Sol-gel Technology for Thin Films, Fibers, Preforms, Electronics and Specialty Shapes*, Ed. L.C. Klein, Noyes Publications, New Jersey, (1988), 382.
- [56] T. Kohyama, *Physica A.*, **248**, (1998), 323.
- [57] G. Sheng, L. Chu, A. Zeltner, M.A. Anderson, *J. Non-Cryst. Solids*, **147-148**, (1992), 548.

- [58] A. Yosry, Y.A. Attia, M.S. Ahmed, M. Zhu, in *Sol-gel processings and applications*, Ed. Y.A. Attia, Plenum Press, New-York and London, (1994), 311.
- [59] G. Fiksmán, P. Datta, J.M. Oton, I.R. Matias, M. Lopez-Amo, F. Del Monte, D. Levy, *Opt. Eng.*, **36**, (1997), 1766.
- [60] A. Matsuda, Y. Matsuno, S. Katawama, T. Tsuno, *J. Mater. Sci. Lett.*, **8**, (1989), 902.
- [61] A.C. Pierre, *Introduction aux procédés sol-gel*, Forceram, Ed. Septima, Paris, (1992), 117.
- [62] S. Sakka, K. Kamiya, *J. Non-Cryst. Solids*, **42**, (1980), 403.
- [63] C.J. Brinker, B.C. Bunker, D.R. Tallant, K.J. Ward, *J. Chem. Phys.*, **83**, (1986), 851.
- [64] R. Audebert, *Séminaire GRECO 93*, Paris, **1**, (1987), 599.
- [65] C.J. Brinker, G.W. Scherer, *Sol-gel Science: The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing*, Academic Press, New York (1990), 303.
- [66] B. Gauthier-Manuel, E. Guyon, S. Roux, S. Gits, F. Lefauchaux, *J. Phys. (Les Ulis France)*, **48**, (1987), 869.
- [67] A.C. Pierre, *Introduction aux procédés sol-gel*, Forceram, Ed. Septima, Paris, (1992), 117.
- [68] S.H. Wang, L.L. Hench, in *Better Ceramics Through Chemistry*, Ed. North Holland, New-York, **71**, (1984).
- [69] J. Zarzycki, M. Prassas, J. Phalippou, *J. Mat. Sci.*, **17**, (1982), 3371.
- [70] C.J. Brinker, G.W. Scherer, *Sol-gel Science : The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing*, Academic Press, New York (1990), 547.
- [71] C.J. Brinker, G.W. Scherer, E.P. Roth, *J. Non-Cryst. Solids*, **72**, (1985), 345.
- [72] C.J. Brinker, D.M. Haaland, *J. Am. Ceram. Soc.*, **66**, (1983), 758.
- [73] D.E. Bornside, C.W. Macosko, L.E. Scriven, *J. Imaging Technol.*, **13**, (1987), 122.
- [74] D. Meyerhofer, *J. Appl. Phys.*, **49**, (1978), 3993.
- [75] K.A. Vorotilov, E.V. Orlova, V.I. Petrovsky, *Thin Solid Films*, **209**, (1990), 303.
- [76] L. E. Scriven, in *Better Ceramics Through Chemistry III*, Ed. C. J. Brinker, D. E. Clark, and D. R. Ulrich, *Mat. Res. Soc.*, Pittsburgh, Pa., (1988), 717.
- [77] L.D. Landau, B.G. Levich, *Acta Physicochim. U.R.S.S.*, **17**, (1942), 42.
- [78] C.J. Brinker, A.J. Hurd, K.J. Ward, *Ultrastructure Processing of Advanced Ceramics*, Ed. J.D. Mackenzie, D.R. Ulrich (Wiley New-York), (1988), 223.





## Chapitre I-II

### L'optique guidée et l'optique intégrée

Pour répondre à un besoin de miniaturisation et pour s'affranchir des problèmes d'alignement généralement rencontrés en optique classique, la technologie moderne s'est orientée vers la réalisation de composants optiques simultanément déposés sur une même puce et interconnectés entre eux par des **guides d'ondes**. Les procédés d'élaboration de ces guides sont fortement influencés par les techniques utilisées en électronique pour la réalisation de circuits intégrés. Les premières structures optiquement guidantes, sous forme de couches minces, élaborées par voie sol-gel, ont été développées dans les années 70 [1]. Leur optimisation a permis d'obtenir des guides de faible atténuation (de l'ordre de 1dB/cm) [2]. Ces performances en font de très bons candidats pour une utilisation dans le domaine de l'optique intégrée.

Dans un souci de compréhension de l'optique guidée, la première partie de ce chapitre sera consacrée à la description de la propagation des ondes lumineuses dans un guide d'onde plan. L'étude des guides tridimensionnels, qui permettent un confinement vertical et horizontal fera l'objet de la seconde partie. Les différentes techniques de couplage seront enfin abordées en portant un accent particulier sur le couplage par prisme et par fibre.

Dans le cadre des travaux que nous avons menés, les guides, réalisés par la méthode sol-gel, sont assimilés à des guides à saut d'indice. Nous nous limiterons donc volontairement à la description de la propagation dans ce type de structure. L'article de P.K.Tien [3] pourra être consulté pour une étude plus complète.

## I. Propagation de la lumière dans un guide d'onde plan

### I. 1. Le guide d'onde plan

Un guide d'onde plan en couche mince est un film diélectrique d'indice  $n_f$  entouré par deux milieux moins réfringents appelés superstrat ( $n_0$ ) et substrat ( $n_s$ ). Selon la méthode de fabrication, on distingue deux types de guides d'ondes :

- les guides dont l'indice de réfraction est constant sur toute l'épaisseur du film : guide à saut d'indice (figure I-II-1)
- les guides pour lesquels cet indice varie avec l'épaisseur : guides à gradient d'indice.

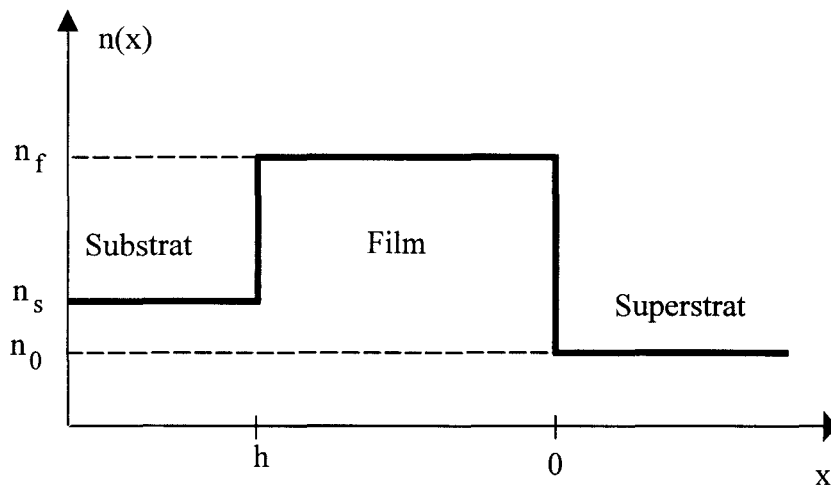


Figure I-II-1 : Guide à saut d'indice.

Il est possible d'étudier la propagation dans de tels guides, suivant deux approches [5-11] :

- une description géométrique basée sur la théorie des rayons lumineux,
- une étude plus rigoureuse utilisant la résolution des équations de Maxwell.

Ces deux analyses nous montrent que, sous certaines conditions, il y a réflexion totale aux interfaces air-film et film-substrat. La lumière se propage alors dans le film. Par les deux méthodes, nous pouvons décrire les conditions de propagation sous forme d'une équation dite équation de dispersion. Les solutions de cette équation sont appelées : **les modes guidés**.

## I. 2. Détermination de l'équation de dispersion par la théorie des rayons

Le guide est constitué d'un film diélectrique d'épaisseur  $h$  et d'indice de réfraction  $n_f$  (figure I-II-2) déposé sur un substrat d'indice  $n_s$  et recouvert par un superstrat d'indice  $n_0$ . Dans le cadre de la théorie des rayons, un mode guidé peut être représenté par le cheminement en zigzag d'un rayon lumineux. Les réflexions totales aux deux interfaces sont régies par les conditions suivantes :

\* L'indice de réfraction  $n_f$  de la couche doit être supérieur à la fois à l'indice  $n_0$  de l'air et à l'indice  $n_s$  du substrat.

\* L'angle  $\theta$  doit vérifier :  $\theta > \theta_{c_0}$  et  $\theta > \theta_{c_s}$

où  $\theta_{c_0} = \arcsin\left(\frac{n_0}{n_f}\right)$  : angle limite de réflexion totale à l'interface air-film,

et  $\theta_{c_s} = \arcsin\left(\frac{n_s}{n_f}\right)$  : angle limite de réflexion totale à l'interface film-substrat.

L'onde guidée se propage suivant l'axe  $Oz$  et le champ électrique qui lui est associé s'écrit de manière générale :

$$\vec{E}(x, y, z, t) = \vec{E}(x, y). \exp[j(\omega t - \beta z)] \quad (\text{I-II-1})$$

où  $\beta$  est la constante de propagation associée.

La propagation a lieu uniquement suivant la direction  $Oz$ . Les réflexions introduisent des déphasages qui conditionnent l'existence d'un nombre limité de rayons, pouvant se propager dans la structure en interférant de manière constructive et qui définissent les modes.

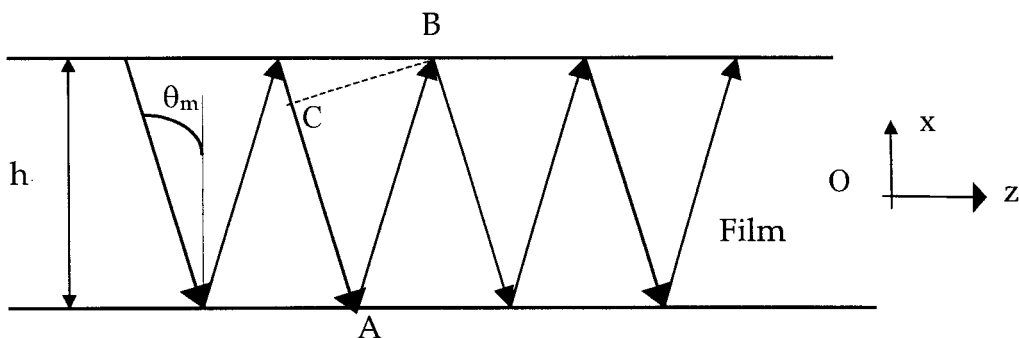


Figure I-II-2 : Propagation d'un rayon lumineux dans un guide plan.

Le chemin optique (CAB) vaut :  $(CAB) = 2 n_f h \cos(\theta_m)$

La condition traduisant l'accord de phase aux points B et C s'écrit :

$$h\sqrt{n_f^2 k_0^2 - \beta_m^2} = \varphi_{fs} + \varphi_{f0} + m\pi \quad (\text{I-II-2})$$

où

$m$  représente l'ordre du mode ( $m=1, 2, 3, 4, \dots, M$ ),

$\varphi_{fs}$ , le déphasage associé à la réflexion à l'interface film-substrat,

$\varphi_{f0}$ , le déphasage associé à la réflexion à l'interface film superstrat.

La constante de propagation pour un mode  $m$  vaut :

$$\beta_m = k_0 n_f \sin \theta_m \quad (\text{I-II-3})$$

avec  $k_0 = 2\pi/\lambda_0$  ( $\lambda_0$  est la longueur d'onde de l'onde se propageant).

Les relations de Fresnel permettent d'exprimer les termes de déphasage dans les deux cas suivants :

i) Dans le cas d'une onde, dont la composante électrique  $\vec{E}$  du champ électromagnétique est perpendiculaire au plan d'incidence (mode transverse électrique TE), l'amplitude de l'onde, après réflexion sur les interfaces, ne subit pas d'atténuation. Par contre sa phase est modifiée d'une quantité  $\Phi_{fs}$  à l'interface film-substrat et  $\Phi_{f0}$  à l'interface film-superstrat tels que :

$$\Phi_{fs} = \arctan\left(\frac{\sqrt{\beta_m^2 - n_s^2 k_0^2}}{\sqrt{n_f^2 k_0^2 - \beta_m^2}}\right) \quad (\text{I-II-4})$$

$$\Phi_{f0} = \arctan\left(\frac{\sqrt{\beta_m^2 - n_0^2 k_0^2}}{\sqrt{n_f^2 k_0^2 - \beta_m^2}}\right) \quad (\text{I-II-5})$$

ii) Dans le cas d'une onde, dont la composante électrique  $\vec{E}$  du champ électromagnétique est parallèle au plan d'incidence (mode transverse magnétique TM), les déphasages  $\Phi_{fs}$  et  $\Phi_{f0}$  peuvent s'écrire :

$$\Phi_{fs} = \arctan\left(\frac{n_f^2 \sqrt{\beta_m^2 - n_s^2 k_0^2}}{n_s^2 \sqrt{n_f^2 k_0^2 - \beta_m^2}}\right) \quad (\text{I-II-6})$$

$$\Phi_{f0} = \arctan\left(\frac{n_f^2 \sqrt{\beta_m^2 - n_0^2 k_0^2}}{n_0^2 \sqrt{n_f^2 k_0^2 - \beta_m^2}}\right) \quad (\text{I-II-7})$$

L'équation de dispersion peut alors s'écrire de manière générale :

$$\frac{2\pi h}{\lambda_0} \sqrt{n_f^2 - N_m^2} - \arctan\left(\frac{a}{a_s} \frac{\sqrt{N_m^2 - n_s^2}}{\sqrt{n_f^2 - N_m^2}}\right) - \arctan\left(\frac{a}{a_0} \frac{\sqrt{N_m^2 - n_0^2}}{\sqrt{n_f^2 - N_m^2}}\right) = m\pi \quad (\text{I-II-8})$$

avec  $a = a_s = a_0 = 1$  pour une polarisation TE

et  $a = n_f^2$ ;  $a_s = n_s^2$ ;  $a_0 = n_0^2$  pour une polarisation TM.

Cette équation impose des valeurs discrètes  $\theta_m$  de l'angle d'incidence, correspondant aux diverses valeurs entières de  $m$  qui définissent ainsi les modes guidés dans la structure. A chacun de ces modes est associé un vecteur de propagation. L'onde associée à un mode, se propage dans le guide avec une constante de propagation effective :  $\beta_m = n_f k \sin(\theta_m)$ , qui est la composante suivant la direction de propagation (Oz) du vecteur de propagation  $\vec{k}$ . Tout se passe comme si l'indice de la couche guidante, vu par le mode, est  $N_m = n_f \sin(\theta_m)$ , que l'on appelle indice effectif.

L'équation de dispersion est interprétée de façon simple en représentant graphiquement l'évolution des indices effectifs en fonction de l'épaisseur du film. Pour un mode donné, lorsque l'épaisseur diminue, l'indice effectif tend vers l'indice du substrat. Comme le montre la figure I-II-3, il est possible de trouver pour chaque mode une valeur de l'épaisseur pour laquelle l'indice effectif est égal à l'indice du substrat. Cette épaisseur  $h_c$  est appelée **épaisseur de coupure**. Elle correspond à une valeur minimale de l'épaisseur en dessous de laquelle le mode cesse d'être guidé.

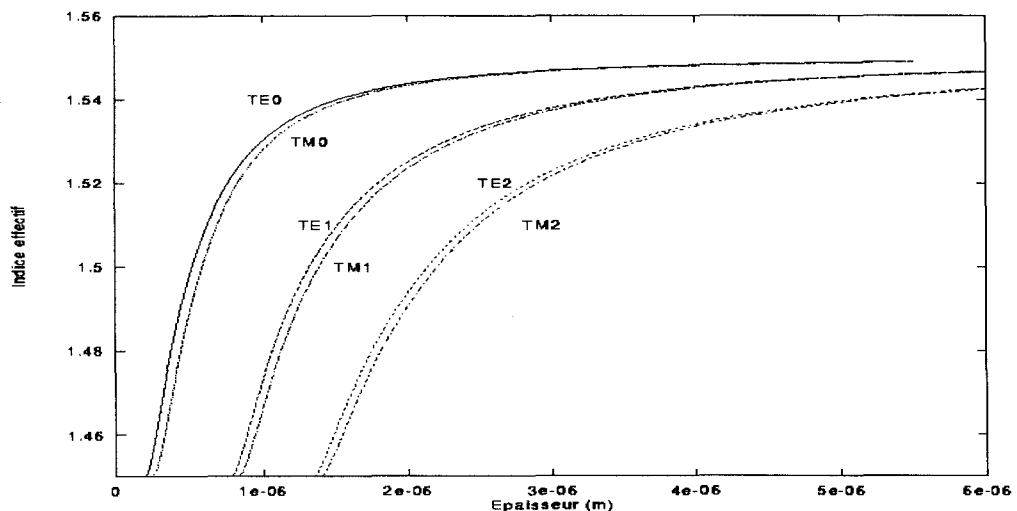


Figure I-II-3 : Courbes de dispersion d'un guide plan asymétrique.

Théoriquement, cette épaisseur de coupure peut être déterminée en imposant  $N_m = n_s$  dans l'équation de dispersion. Elle vaut alors :

$$\text{Pour une polarisation TE : } h_c = \frac{m\pi + \arctan\left(\sqrt{\frac{n_s^2 - n_0^2}{n_f^2 - n_s^2}}\right)}{k\sqrt{n_f^2 - n_s^2}} \quad (\text{I-II-9})$$

$$\text{Pour une polarisation TM : } h_c = \frac{m\pi + \arctan\left(\frac{n_f^2}{n_0^2} \sqrt{\frac{n_s^2 - n_0^2}{n_f^2 - n_s^2}}\right)}{k\sqrt{n_f^2 - n_s^2}} \quad (\text{I-II-10})$$

Ces deux équations nous permettent de déterminer le nombre de modes pouvant se propager dans la structure guidante lorsque les indices effectifs et l'épaisseur de la couche sont connus. On pourra donc contrôler l'épaisseur des films pour réaliser des guides monomodes ou multimodes.

On peut remarquer également que dans le cas d'un guide symétrique ( $n_s = n_0$ ), l'épaisseur de coupure du mode fondamental ( $m=0$ ) est  $h_c=0$ .

### I. 3. Analyse de la propagation par les équations de Maxwell

#### I. 3. 1. Résolution des équations de Maxwell

L'approche par la théorie des rayons nous a permis de poser les bases de l'optique guidée. Cependant elle occulte partiellement l'aspect ondulatoire et ne permet pas d'avoir une vision claire de la répartition de l'énergie véhiculée par les modes. La résolution des équations de Maxwell pour sa part nous donne des informations explicites quant à la distribution des champs électromagnétiques dans les trois milieux constitutifs du guide.

Dans le cas de figure qui nous intéresse ici, nous supposons que les guides sont linéaires, homogènes, isotropes, sans pertes, et non chargés. Leur perméabilité magnétique est supposée constante et égale à celle du vide ( $\mu = \mu_0$ ). La permittivité diélectrique est une quantité scalaire ne dépendant que de la coordonnée  $x$ . Nous supposons également les couches invariantes par translation dans les directions  $Oy$  et  $Oz$ . Dans la direction  $Oy$ , la structure est supposée infinie.

Dans ces conditions, les champs électromagnétiques se propagent suivant Oz et doivent vérifier les équations de Maxwell :

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \cdot \vec{E} &= -\frac{\partial \bar{D}}{\partial t} & \text{div} \bar{D} &= \rho \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{H} &= \bar{J} + \frac{\partial \bar{D}}{\partial t} & \text{div} \bar{B} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{I-II-11})$$

où  $\vec{E}$  représente le champ électrique,  $\bar{D}$  l'induction électrique,  $\vec{H}$  le champ magnétique,  $\bar{B}$  l'induction magnétique et  $\rho$  la densité volumique de charge (généralement nulle).

Les équations du milieu sont données par :

$$\begin{aligned} \bar{D} &= \epsilon \vec{E} = \epsilon_0 \epsilon_r \vec{E} \\ \bar{B} &= \mu \vec{H} = \mu_0 \mu_r \vec{H} \\ \bar{J} &= \gamma \vec{E} \end{aligned} \quad (\text{I-II-12})$$

où  $\epsilon$  représente la permittivité diélectrique,  $\mu$  la perméabilité magnétique, et  $\gamma$  la conductivité électrique.

L'onde électromagnétique peut être décrite par les champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$ , dépendant des variables  $x$ ,  $z$ , et  $t$ .

$$\begin{aligned} \vec{E}(x, z, t) &= \vec{E}(x) \exp[j(\omega t - \beta z)] \\ \vec{H}(x, z, t) &= \vec{H}(x) \exp[j(\omega t - \beta z)] \end{aligned} \quad (\text{I-II-13})$$

En tenant compte de l'invariance suivant la direction Oy, en régime dynamique, la résolution des équations de Maxwell (I-II-11) permet de regrouper les solutions couplées en deux groupes.

Le premier fait intervenir la composante  $E_y$  du champ électrique et les composantes  $H_x$  et  $H_z$  du champ magnétique. Ce groupe détermine les solutions transverses électriques (TE).

$$\text{Modes TE : } \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial^2 E_y(x)}{\partial x^2} + (k^2 n_i^2 - \beta^2) E_y(x) = 0 \\ H_x = -\frac{\beta}{\omega \mu_0} E_y \\ H_z = \frac{1}{j\omega \mu_0} \frac{\partial E_y(x)}{\partial x} \end{array} \right. \quad (\text{I-II-14})$$

Le second système contient les solutions transverses magnétiques (**TM**) et regroupe les composantes  $H_y$ ,  $E_x$ ,  $E_z$  :

$$\text{Modes TM : } \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial^2 H_y(x)}{\partial x^2} + (k^2 n_i^2 - \beta^2) H_y(x) = 0 \\ E_x = \frac{\beta}{\omega \varepsilon_0 n_i^2} H_y \\ E_z = -\frac{1}{j\omega \varepsilon_0 n_i^2} \frac{\partial H_y(x)}{\partial x} \end{array} \right. \quad (\text{I-II-15})$$

Pour chaque système, les champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  sont dans des états de polarisation orthogonaux. La détermination des composantes transverses  $E_y$  et  $H_y$  permet de déduire les autres composantes ( $H_x$ ,  $H_z$ ) et ( $E_x$ ,  $E_z$ ).

De manière générale les équations (I-II-14) et (I-II-15) sont de la forme :

$$\frac{\partial^2 \Psi(x)}{\partial x^2} + \Omega_i^2 \Psi(x) = 0 \quad (\text{I-II-16}) \quad \text{avec} \quad \Omega_i^2 = k^2 n_i^2 - \beta^2$$

La forme analytique des solutions de l'équation I-II-16 dépend du signe de  $\Omega_i^2$ .

- Solution oscillante propagative si  $\frac{\beta}{k} < n_i$  :

$$\Psi(x) = A \exp(j\Omega_i x) + A' \exp(-j\Omega_i x) \quad (\text{I-II-17})$$



- Solution exponentielle évanescente si  $\frac{\beta}{k} > n_i$  :

$$\Psi(x) = B \exp(\Omega_i x) + B' \exp(-\Omega_i x) \quad (\text{I-II-18})$$

Dans le cas d'un guide plan asymétrique tel que  $n_0 < n_s < n_f$ , les différentes solutions sont résumées dans le tableau ci-dessous.

	$0 < \frac{\beta}{k} < n_0$	$n_0 < \frac{\beta}{k} < n_s$	$n_s < \frac{\beta}{k} < n_f$
solution oscillante $\Omega^2 > 0$	dans le film, dans le superstrat et dans le substrat.	dans le film , et dans le substrat.	dans le film.
solution évanescente $\Omega^2 < 0$		dans le superstrat.	dans le substrat et dans le superstrat.
type de mode	<b>mode d'air</b>	<b>mode du substrat</b>	<b>mode guidé</b>

Tableau I-II-1 : Les différentes solutions de l'équation de dispersion.

Le confinement de l'énergie portée par l'onde, dans le guide, n'est rendu possible que lorsque la condition  $n_s < \frac{\beta}{k} < n_f$  est vérifiée. On peut encore l'écrire. Cette condition est la même que celle établie par la théorie des rayons.

### I. 3. 2. Expression des champs pour les modes guidés

Comme nous l'avons vu précédemment, pour que les modes soient guidés la condition est  $n_s < \frac{\beta}{k} < n_f$ . Etudions les amplitudes des champs électromagnétiques dans les trois régions qui composent le guide (figure I-II-4) :

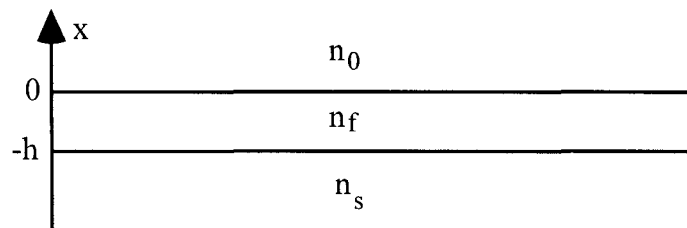


Figure I-II-4 : guide asymétrique.

Compte tenu de la continuité de la composante transverse  $E_y$  du champ électrique aux interfaces superstrat-film et film-substrat, pour les modes **TE**, on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{ll} E_y(x) = A \exp(-\Omega_0 x) & \text{pour } x > 0, \\ E_y(x) = A \cos(\Omega_f x) + B \sin(\Omega_f x) & \text{pour } -h < x < 0, \\ E_y(x) = (A \cos(\Omega_f h) - B \sin(\Omega_f h)) \exp(\Omega_s (x + h)) & \text{pour } x < -h, \end{array} \right. \quad (\text{I-II-19})$$

$$\text{avec } \Omega_0 = \sqrt{\beta^2 - k^2 n_0^2}, \quad \Omega_s = \sqrt{\beta^2 - k^2 n_s^2}, \quad \text{et } \Omega_f = \sqrt{k^2 n_f^2 - \beta^2}$$

La continuité de la composante tangentielle  $H_z$  du champ magnétique (ou de  $\frac{\partial E_y}{\partial x}$ ), aux interfaces air-film et film-substrat conduit à :

$$\Omega_0 A = -\Omega_f B \quad (\text{II-20})$$

$$\Omega_f (A \sin(\Omega_f h) + B \cos(\Omega_f h)) = \Omega_s (A \cos(\Omega_f h) - B \sin(\Omega_f h)) \quad (\text{I-II-21})$$

A partir de ces deux équations, il est possible de retrouver l'équation de dispersion sous la forme :

$$\tan(\Omega_f h) = \frac{\Omega_f (\Omega_0 + \Omega_s)}{\Omega_f^2 - \Omega_0 \Omega_s} \quad (\text{I-II-22})$$

ou encore :

$$h \sqrt{k^2 n_f^2 - \beta^2} = \arctan \left( \sqrt{\frac{\beta^2 - k^2 n_0^2}{k^2 n_f^2 - \beta^2}} \right) + \arctan \left( \sqrt{\frac{\beta^2 - k^2 n_s^2}{k^2 n_f^2 - \beta^2}} \right) + m\pi \quad (\text{I-II-23})$$

Pour les modes **TM**, on utilise un raisonnement similaire afin d'établir l'équation de dispersion et la distribution des champs dans les trois régions constituant le guide.

$$\left\{ \begin{array}{ll} H_y(x) = A' \exp(-\Omega_0 x) & \text{pour } x > 0, \\ H_y(x) = A' \cos(\Omega_f x) + B' \sin(\Omega_f x) & \text{pour } -h < x < 0, \\ H_y(x) = (A' \cos(\Omega_f h) - B' \sin(\Omega_f h)) \exp(\Omega_s (x + h)) & \text{pour } x < -h, \end{array} \right. \quad (\text{I-II-24})$$

La continuité de la composante tangentielle  $E_z$ , du champ électrique, aux interfaces, nous donne les équations suivantes :

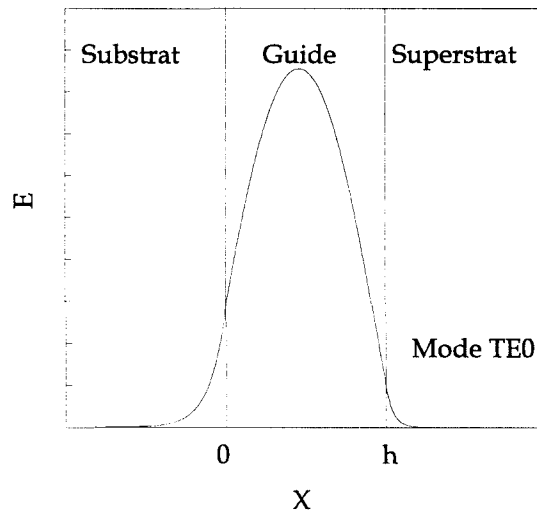
$$\left(\frac{n_f^2}{n_0^2}\right)\Omega_0 A' = -\Omega_f B' \quad (\text{I-II-25})$$

$$\Omega_f (A' \sin(\Omega_f h) + B' \cos(\Omega_f h)) = \left(\frac{n_f^2}{n_s^2}\right)\Omega_s (A' \cos(\Omega_f h) - B' \sin(\Omega_f h)) \quad (\text{I-II-26})$$

Par combinaison de ces deux équations, l'équation de dispersion s'écrit :

$$h\sqrt{k^2 n_f^2 - \beta^2} = \arctan\left(\frac{n_f^2}{n_0^2} \sqrt{\frac{\beta^2 - k^2 n_0^2}{k^2 n_f^2 - \beta^2}}\right) + \arctan\left(\frac{n_f^2}{n_s^2} \sqrt{\frac{\beta^2 - k^2 n_s^2}{k^2 n_f^2 - \beta^2}}\right) + m\pi \quad (\text{I-II-27})$$

En pratique, pour obtenir le profil du champ pour un mode donné, on commence par résoudre l'équation de dispersion afin de déterminer la constante de propagation du mode. Lorsque l'indice effectif est calculé, on détermine l'expression des champs électromagnétiques dans l'une ou l'autre des polarisations, ce qui permet de tracer le profil du champ associé au mode (figure I-II-5).



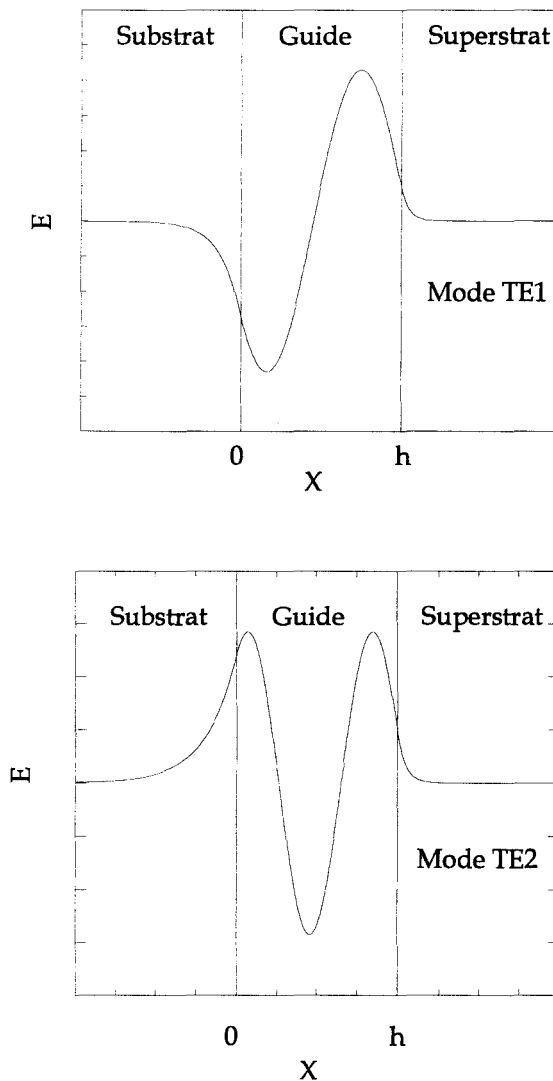


Figure I-II-5 : Profils des champs pour différents modes de propagation.

## II. Le guide à confinement bidimensionnel

### II. 1. Les différentes structures 3D

Comme nous l'avons montré dans le paragraphe précédent, dans un guide plan, la lumière se propage suivant une direction ( $Oz$ ) et le confinement ne se fait que dans la direction ( $Ox$ ). La réalisation d'un amplificateur optique, sous forme d'un guide d'onde, nécessite un confinement maximum de l'énergie pour la pompe et le signal et un bon recouvrement entre ces derniers dans la région active de la structure. La réalisation d'un guide tridimensionnel, qui permet un confinement à la fois suivant ( $Ox$ ) et suivant ( $Oy$ ), devient nécessaire.

Parmi les structures possibles (figure I-II-6), on distingue : le guide rectangulaire (a), le guide enterré (b), le guide chargé par un ruban (c), le guide en arête (d), et le guide chargé par une arête (e). Le choix du type de structure est souvent régi par des contraintes technologiques. Pour cette raison, les guides que nous avons réalisés sont du type guide chargé par une arête.

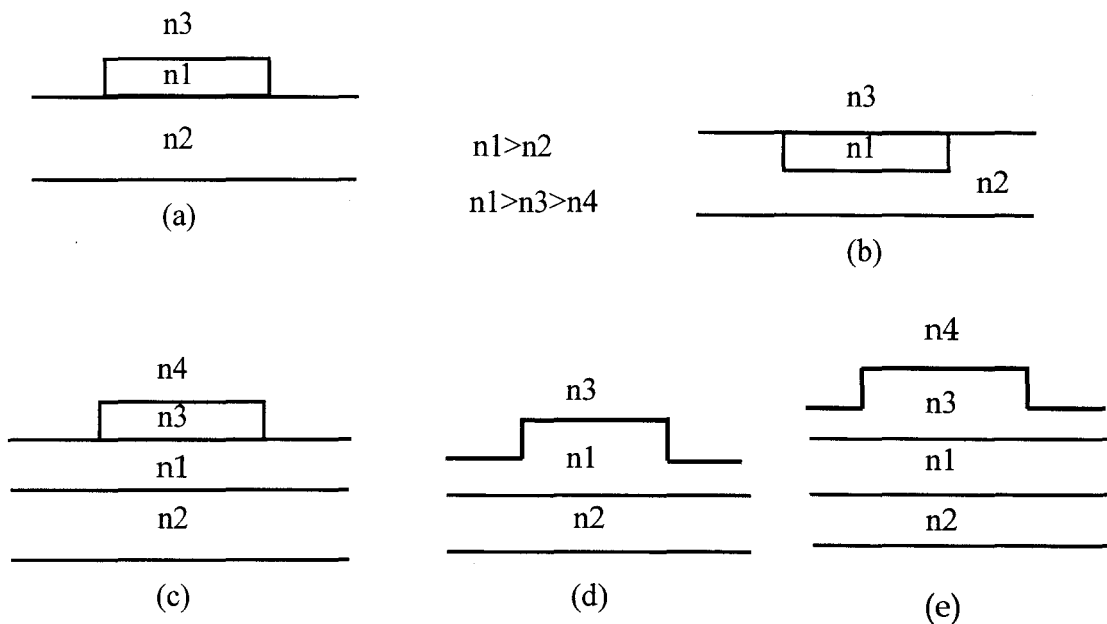


Figure I-II-6 : Différents types de guides tridimensionnels.

Etant donné la complexité des structures, la résolution des équations de Maxwell, pour la détermination des profils de modes, n'aboutit pas à une solution analytique générale. Diverses méthodes alternatives sont alors utilisées. Dans notre étude, nous nous attacherons, dans un premier temps à la description des outils mathématiques que nous avons utilisés : la méthode des indices effectifs et la méthode de la propagation des faisceaux, B.P.M., qui fera l'objet d'une étude détaillée dans la troisième partie de ce mémoire.

**II. 2. La méthode des indices effectifs**

Cette méthode est basée sur une approche analytique simple, mais il faut l'utiliser avec précaution. En effet, elle n'est applicable qu'aux guides présentant une arête de faible hauteur [12,13]. Compte tenu des obligations de compacité en optique intégrée, cette condition reste vérifiée dans la plupart des cas.

Dans le cas d'une faible hauteur d'arête, le champ  $E(x,y)$  peut être considéré comme le produit de deux champs indépendants  $F(x)$  et  $G(y)$ , confinés respectivement dans la direction  $Ox$  et dans la direction  $Oy$ . Le principe de la méthode des indices effectifs consiste à étudier le guide tridimensionnel (figure I-II-7a) comme étant constitué de deux guides plans.

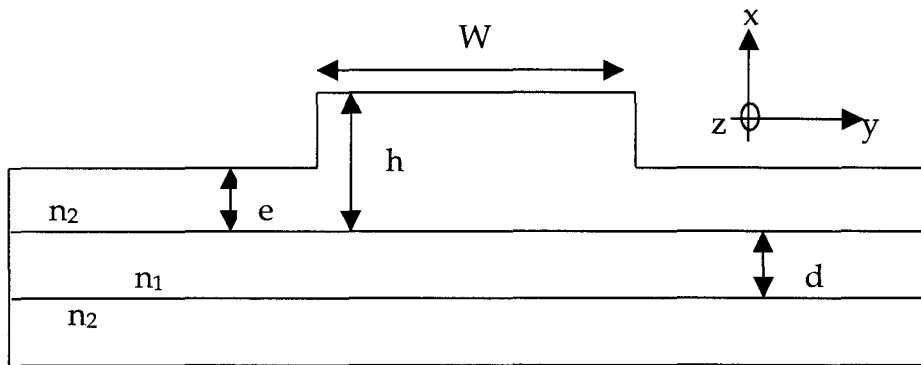


Figure I-II-7a : Guide tridimensionnel.

Dans un premier temps, nous considérons indépendamment les régions (I), (II), et (III) qui constituent trois guides plans (remarque : la région I et III sont identiques).

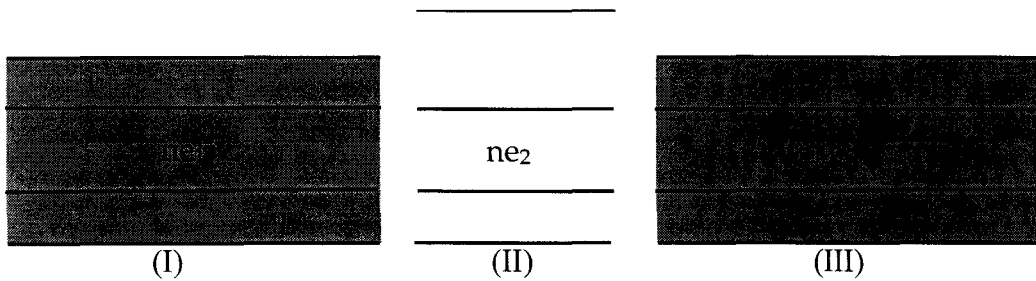


Figure I-II.7b : Décomposition en guides plans dans la direction  $Ox$ .

A partir de l'équation de dispersion, nous calculons les indices effectifs  $ne_1$  et  $ne_2$ , caractérisant un mode se propageant dans la structure guidante à une longueur d'onde donnée (soit  $\lambda_{pompe}$ , soit  $\lambda_{signal}$ ).

La seconde étape consiste à considérer le guide équivalent obtenu dans l'autre direction (Oy) (figure I-II-7c) et par la même méthode à déterminer l'indice effectif (N), en prenant bien soin de tenir compte du changement de polarisation. En effet si le champ étudié est polarisé TE dans le plan (xOz), le champ équivalent devient polarisé TM dans le plan (yOz).

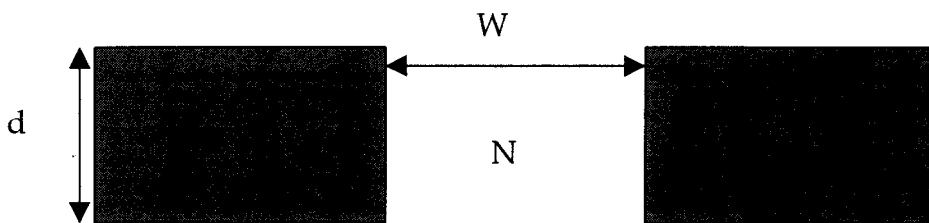


Figure I-II-7c : Guide plan équivalent dans la direction Oy.

Ainsi modélisés par la méthode des indices effectifs, les guides en canaux se caractérisent par deux paramètres fondamentaux qui sont : le contraste d'indice effectif ( $ne_2-ne_1$ ) et la largeur de l'arête  $W$ . Lorsque les indices de chaque couche et l'épaisseur  $h$  de la couche tampon sont connus, le contraste est défini par la profondeur de la gravure. Le détail du calcul de la profondeur de gravure est présenté dans l'annexe I.

La méthode de modélisation, que nous avons utilisée, aboutit à des résultats très satisfaisants. D'autres méthodes sont utilisées pour déterminer les constantes de propagation et les profils des champs dans les guides tridimensionnels. On peut citer, à titre d'exemple, la méthode des éléments finis [14], la méthode des différences finies [15,16], la méthode des équations intégrales [17], la méthode de l'adaptation de modes [18].

Les simulations mènent à des valeurs de constante de propagation différentes suivant la méthode utilisée, bien que ces méthodes soient considérées comme rigoureuses. Les différences sont essentiellement liées à des erreurs numériques ou au choix du pas de discrétisation.

### III. Couplage de la lumière dans un guide d'onde

Les deux parties précédentes étaient consacrées à l'étude des profils de champs et des modes de propagation dans les guides plans et dans les guides tridimensionnels. Pour traiter le problème de la propagation de la lumière, il nous faut également étudier le couplage de la lumière dans les guides. Celui-ci présente un intérêt fondamental pour la caractérisation optique de nos composants. De nombreux paramètres tels que l'indice de réfraction, l'épaisseur, les coefficients de pertes, peuvent ainsi être mesurés par des techniques utilisant le **couplage par prisme**. De même, la Spectroscopie Raman par ondes guidées, que nous avons employée pour étudier la structure de nos films, est basée sur ce type de couplage. En ce qui concerne la caractérisation des composants actifs sous forme de guide tridimensionnels, nous avons injecté la lumière par la tranche du guide au moyen d'une **fibre optique**.

#### III. 1. Le couplage par prisme

##### III. 1. 1. Principe

Cette méthode de couplage [19-21], très utilisée en optique guidée, est basée sur l'injection d'un faisceau de lumière monochromatique (généralement un laser) par l'intermédiaire d'un prisme placé contre la surface du guide plan à caractériser (figure I-II-8).

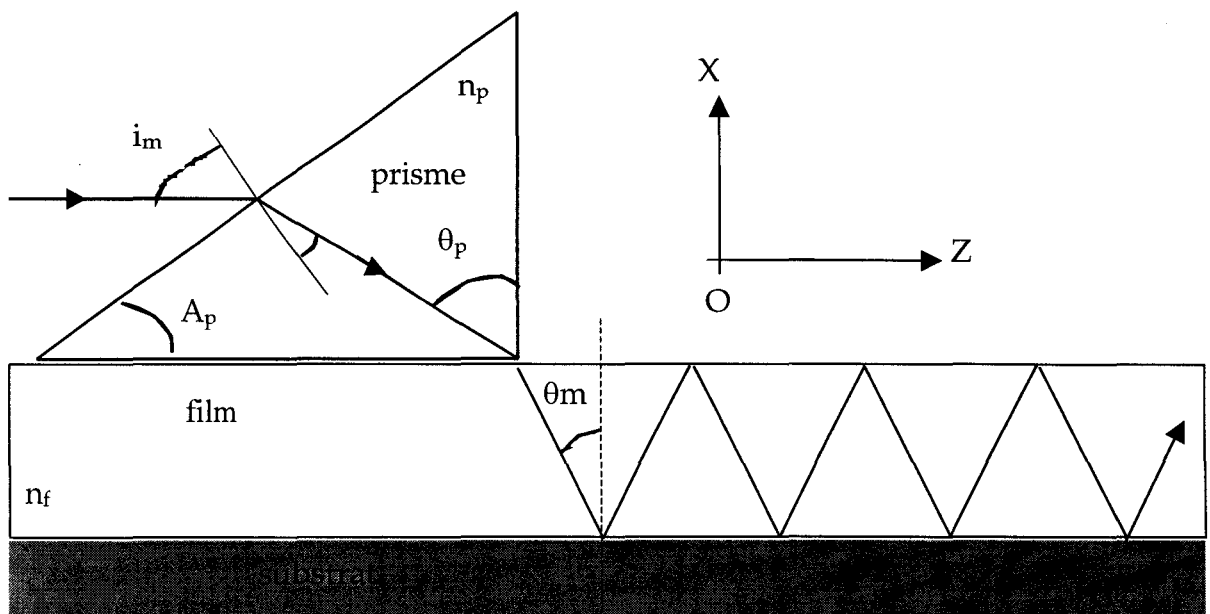


Figure I-II-8 : Principe du couplage par prisme.



Lorsque le faisceau de lumière arrive sur la base du prisme rectangulaire, il y subit une réflexion totale. Pour certains angles d'injection dans le prisme, que l'on appelle angles de synchronisme, il se produit, à l'interface prisme-film, un transfert d'énergie du prisme vers le guide. Ce transfert est assuré par une onde évanescente qui se propage dans le petit gap d'air ( $<\lambda/4$ ) entre le prisme et le film. Dans ce cas, par analogie avec l'effet tunnel quantique, on parle d'effet tunnel optique. Ce couplage ne peut se produire que si les trois conditions suivantes sont vérifiées :

i) la structure autorise la propagation de modes possédant une polarisation TE ou TM. Ainsi, le faisceau incident doit avoir la même polarisation que le mode à exciter.

ii) la composante tangentielle du vecteur d'onde dans le prisme doit être égale à la constante de propagation du mode à exciter dans le guide :

$$kn_p \sin\theta_p = \beta_m = kn_f \sin\theta_m \quad (\text{I-II-28})$$

iii) l'épaisseur du gap d'air doit être optimisée de façon à ce que l'onde ne soit pas totalement atténuée avant de pénétrer dans le guide.

Lorsque toutes ces conditions sont réunies et en choisissant correctement les caractéristiques du prisme (angle et indices), le couplage peut théoriquement atteindre une efficacité de 92%. Les limites de cette méthode sont liées notamment à l'état de surface du prisme et du guide ainsi qu'à leur planéité.

Du point de vue pratique, nous avons utilisé cette technique de couplage dans les expériences de spectroscopie Raman, de spectroscopie d'émission et de spectroscopie des lignes noires.

### III. 1. 2. La méthode M-lines ou méthode des lignes noires

La technique des lignes noires [21-23] utilise le principe du couplage par prisme mais cette fois l'injection se fait au moyen d'un prisme isocèle (figure I-II-9).

La condition d'accord de phase nous impose :  $N_m = n_p \sin(\theta_m)$ . Par construction géométrique, on montre que :

$$N_m = n_p \sin\left(A_p + \arcsin\left(\frac{\sin(i)}{n_p}\right)\right) \quad (\text{I-II-29})$$

Lorsqu'il y a accord de phase, la lumière véhiculée par le faisceau est couplée dans le guide. Dans le faisceau de lumière réfléchi, on observe une ligne noire qui résulte de l'absence d'une partie de l'énergie qui se propage maintenant dans le guide [21,22].

Lorsque l'on observe une de ces lignes, il suffit de mesurer l'angle d'injection du faisceau par rapport à la normale à la face d'entrée du prisme et on détermine l'indice effectif du mode excité par la résolution de l'équation (I-II-29).

En nous basant sur les équations de dispersion établies au paragraphe I-2 et I-3, nous pouvons, à partir de la mesure des indices effectifs, calculer l'épaisseur et l'indice de réfraction à une longueur d'onde donnée. Les  $m$  équations de dispersions peuvent s'écrire sous la forme :

$$F(m, N_m, n_0, n_s, n_f, h, \lambda) = 0 \quad (\text{I-II-30})$$

Les deux seules inconnues de cette équation sont  $n_f$  et  $h$ . Lorsque le guide autorise la propagation d'au moins deux modes de même polarisation, on obtient alors au minimum un système de deux équations à deux inconnues que l'on résout de manière itérative [22]. La précision des mesures des angles d'incidence à  $\pm 0,01^\circ$  atteinte avec cette méthode permet de déterminer l'épaisseur à  $\pm 5\text{nm}$  et l'indice à  $\pm 0,001$ .

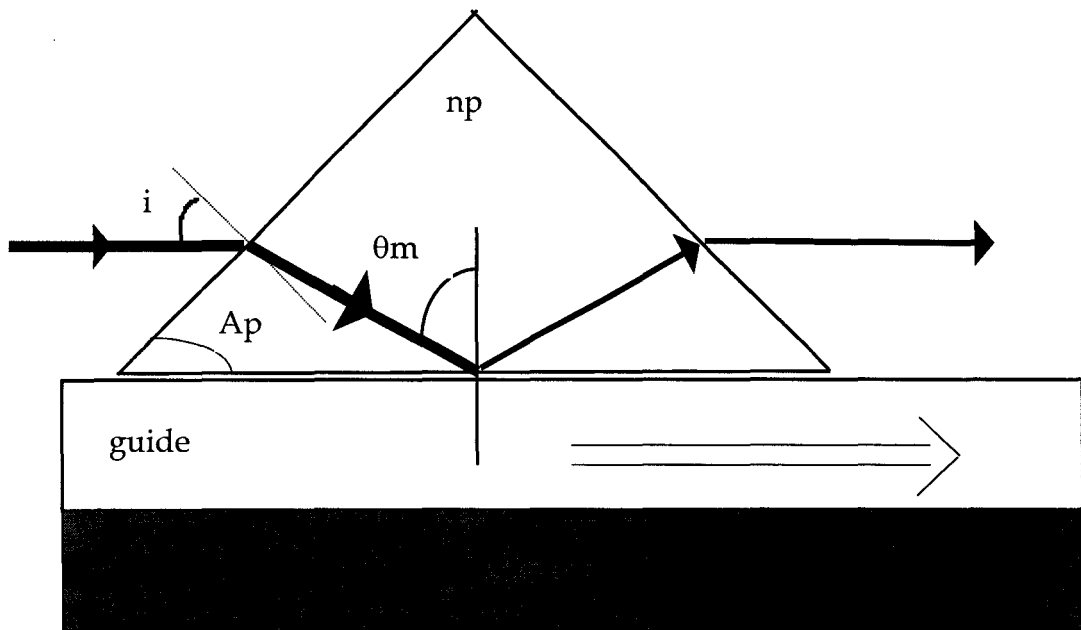


Figure I-II-9 : Couplage par un prisme isocèle.

### III. 2. Le couplage par fibre

La technique de couplage par prisme est très adaptée aux guides plans. Cependant, elle ne peut pas être utilisée pour coupler la lumière dans des guides tricouches. L'injection de la lumière se fait dans ce cas par la tranche du guide, à l'aide d'une fibre optique (figure I-II-10).



Figure I-II-10 : Couplage par fibre optique.

Le faisceau laser issu de la fibre est directement injecté dans le canal. L'inconvénient de cette technique réside dans l'impossibilité de sélectionner les modes du guide. Cependant, le couplage par fibre est très intéressant, car il permet d'injecter simultanément plusieurs radiations laser, ce qui n'est pas possible avec un prisme car les angles de synchronisme varient avec la longueur d'onde.

## Bibliographie

- [1] R. Ulrich, H.P. Weber, *Appl. Optics*, **11**, (1972), 428.
- [2] K. Heuberger, W. Lukosz, *Appl. Optics*, **25**, (1986), 537.
- [3] P. K. Tien, *Rev. Modern Phys.* **49**, (1977), 361.
- [4] P. K. Tien, *Appl. Optics*, **10**, (1971), 2395.
- [5] R.G. Hunsperger, *Integrated optics : theory and applications*, Springer, Berlin (1985).
- [6] A.W. Snyder, J.D. Love, *Optical waveguide Theory*, Ed. Chapman and Hall, (1983).
- [7] D.L. Lee, *Electromagnetic Principles of Integrated Optics*, Interscience Publication, J. Wiley and Sons, New-York, (1986).
- [8] *Integrated Optics*, *IEEE J Quant. Electron.*, **22**, (1986), 803.
- [9] S.I. Najafi, *Introduction to glass integrated optics*, Ed. Artech House, Boston, (1992).
- [10] J.J. Clair, *Télécommunications optiques : Introduction à l'optique intégrée*, Ed. Masson, Paris - New-York, (1977).
- [11] D. Ostrowsky, *L'optique intégrée*, *La Recherche*, **6**, (1975), 740.
- [12] K.S. Chiang, *Appl. Optics*, **25**, (1986), 348.
- [13] K.S. Chiang, *Opt. Lett.*, **16**, (1991), 714.
- [14] B.M.A. Rahman, J.B. Davies, *J. Lightwave. Techn.*, **2**, (1984), 682.
- [15] M.S. Stern, *IEEE Proc.*, **135**, (1988), 56.
- [16] K. Bierwirth, N. Schulz, F. Arndt, *Appl. Opt.*, **25**, (1986), 2169.
- [17] M.C. Amann, *J. Lightwave Technol.*, **4**, (1986), 689.
- [18] M.D. Feit, J.A. Fleck, *Appl. Opt.* **17**, (1978), 3990.
- [19] P.K. Tien, R. Ulrich, J. Martin, *Appl. Phys. Lett.*, **14**, (1969), 291.
- [20] R. Reinisch, J. Fick, P. Coupier, J.L. Coutaz, G. Vitrant, *Opt. Commun.*, **120**, (1995), 121.
- [21] P. K. Tien, *Rev. Modern Phys.* **49**, (1977), 371.
- [22] R. Ulrich, R. Torge, *Appl. Optics*, **12**, (1973), 2901.
- [23] A. Boudrioua, J.C. Loulergue, *Opt. Commun.*, **137**, (1997), 37.



## Chapitre I-III

### Propriétés spectroscopiques des ions de terres rares

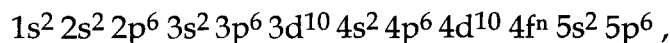
La facilité d'incorporer au sol de départ des éléments optiquement actifs, laisse envisager de nombreuses utilisations des xérogels pour la réalisation de composants optiques. Dans notre étude, nous nous sommes intéressés à la réalisation de systèmes amplificateurs dans de nouveaux matériaux. Il existe plusieurs méthodes optiques permettant d'amplifier la lumière : l'effet Raman ou Brillouin stimulé, le mélange à 4 ondes, etc. . La voie que nous avons empruntée est celle basée sur le phénomène de l'émission stimulée dans une matrice vitreuse dopée aux ions de terres rares. Les ions sont utilisés comme éléments actifs dans de nombreuses matrices solides [1] en raison de leur fluorescence intense située dans le domaine spectral visible et proche infrarouge.

Les propriétés spectroscopiques des ions de terres rares ainsi que le phénomène d'émission stimulée seront décrits au début de ce chapitre. Nous aborderons ensuite les différents types d'interactions qui peuvent avoir lieu entre les ions de terres rares et en particulier les phénomènes de transfert d'énergie. Nous examinerons le cas du transfert d'énergie entre les ions erbium et ytterbium.

## I. Niveaux d'énergie des ions de terres rares

### I. 1. Structure électronique [2]

Les ions trivalents de terres rares sont des éléments de la famille des lanthanides (voir tableau III-1). Leur configuration électronique fondamentale s'écrit :



où n est le nombre d'électrons sur la couche 4f. La première configuration excitée  $4f^{n-1}5d^1$  correspond au passage d'un électron 4f sur la couche 5d.

Numéro atomique	Élément	Configuration électronique des atomes	Configuration électronique des ions trivalents
57	Lanthane (La)	[Xe]5d <sup>1</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]
58	Cérium (Ce)	[Xe]4f <sup>2</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>1</sup>
59	Praséodyme (Pr)	[Xe]4f <sup>3</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>2</sup>
60	Néodyme (Nd)	[Xe]4f <sup>4</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>3</sup>
61	Prométhium (Pm)	[Xe]4f <sup>5</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>4</sup>
62	Samarium (Sm)	[Xe]4f <sup>6</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>5</sup>
63	Europium (Eu)	[Xe]4f <sup>7</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>6</sup>
64	Gadolinium (Gd)	[Xe]4f <sup>7</sup> 5d <sup>1</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>7</sup>
65	Terbium (Tb)	[Xe]4f <sup>9</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>8</sup>
66	Dysprosium (Dy)	[Xe]4f <sup>10</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>9</sup>
67	Holmium (Ho)	[Xe]4f <sup>11</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>10</sup>
68	Erbium (Er)	[Xe]4f <sup>12</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>11</sup>
69	Thulium (Tm)	[Xe]4f <sup>13</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>12</sup>
70	Ytterbium (Yb)	[Xe]4f <sup>14</sup> 5d <sup>0</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>13</sup>
71	Lutetium (Lu)	[Xe]4f <sup>14</sup> 5d <sup>1</sup> 6s <sup>2</sup>	[Xe]4f <sup>14</sup>

Tableau I-III-1 : Configurations électroniques des éléments de terres rares [3].

L'ionisation des atomes de terres rares produit généralement des ions trivalents ou divalents. Les ions trivalents résultent de la perte des électrons 6s et d'un électron 5d ou un des électrons 4f (voir tableau ci-dessus), tandis que les couches externes 5s<sup>2</sup> et 5p<sup>6</sup> restent remplies et protègent la couche 4f de l'influence de l'environnement externe. La figure I-III-1 présente les distributions radiales de probabilité des orbitales 4f, 5s et 5p pour l'ion libre Pr<sup>3+</sup> obtenues par la méthode Hartree-Fock [4]. Ainsi, la position moyenne pour un électron 4f est proche du noyau, comparée à celle d'un électron 5s ou 5p. Ce phénomène, traduisant la faible extension spatiale des fonctions d'ondes des électrons 4f dans leur environnement, explique de nombreuses propriétés optiques des ions de terres rares.

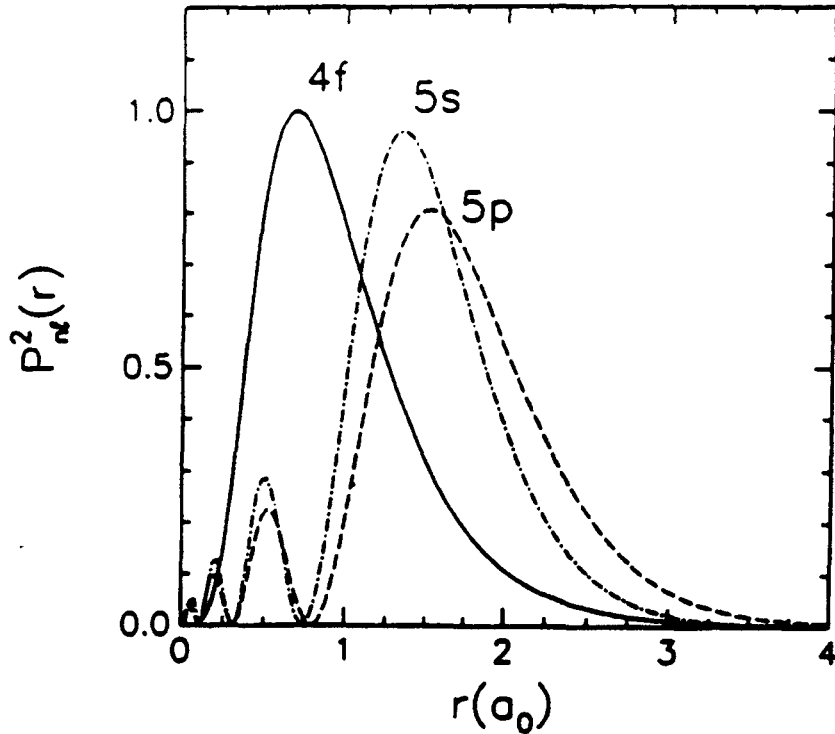


Figure I-III-1 : Distributions radiales de probabilité des orbitales 4f, 5s et 5p pour l'ion libre  $\text{Pr}^{3+}$ , issues de calculs Hartree-Fock [4].

## I. 2. Niveaux d'énergie et notations spectroscopiques

Pour un ion libre possédant  $N$  électrons, et un noyau de charge  $Ze$ , de masse supposée «infinie», l'Hamiltonien permettant de déterminer les niveaux d'énergie s'écrit [5] :

$$H = \sum_{i=1}^N \left( \frac{-\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 - \frac{Ze^2}{r_i} \right) + \sum_{i < j=1}^N \frac{e^2}{r_{ij}} + \sum_i \lambda_i \bar{l}_i \cdot \bar{s}_i \quad (\text{I-II-1})$$

Les deux premiers termes de cette équation sont la somme des énergies cinétiques et potentielles des électrons dans l'approximation du champ central. La résolution de l'équation de Schrödinger permet d'obtenir les positions énergétiques des configurations électroniques. Les électrons sont ainsi répartis dans différentes couches, caractérisées par les nombres quantiques  $n$  et  $l$ .



Le troisième terme caractérise la répulsion coulombienne inter-électronique. Elle lève partiellement la dégénérescence de chaque configuration. Le niveau 4f se décompose en plusieurs niveaux étiquetés par des termes spectraux  $^{2S+1}L$ , où S et L représentent les moments résultants des couplages entre spins ( $\vec{S} = \sum_i \vec{s}_i$ ) et moments orbitaux ( $\vec{L} = \sum_i \vec{l}_i$ ).

Le dernier terme représente l'Hamiltonien spin-orbite qui traduit l'interaction entre les moments de spins et les moments orbitaux,  $\lambda_i$  désignant les coefficients de couplage spin-orbite. Dans le cas du couplage Russell-Saunders, pour lequel l'interaction spin-orbite est faible devant les interactions des spins entre eux ou des moments orbitaux entre eux, on peut définir un moment cinétique total  $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ , tel que  $|\mathbf{L} - \mathbf{S}| \leq \mathbf{J} \leq |\mathbf{L} + \mathbf{S}|$ , et des niveaux multiplets  $^{2S+1}L_J$ , où J est le nombre quantique représentant le moment cinétique total.

Dans le cadre du couplage de Russell-Saunders, où les états sont notés par les termes  $^{2S+1}L_J$ , le niveau fondamental est déterminé selon la règle semi-empirique de Hund, et se caractérise par :

- (i) S maximum
- (ii) L maximum
- (iii)  $\mathbf{J} = |\mathbf{L} - \mathbf{S}|$  pour une couche moins que moitié pleine  
 $\mathbf{J} = |\mathbf{L} + \mathbf{S}|$  pour une couche plus que moitié pleine.

Dans le cas de l'ion erbium trivalent, ( $4f^{11}$ ), le multiplet ayant la multiplicité de spin la plus élevée ( $S = 3/2$ ), le moment orbital et le moment cinétique J les plus grands ( $L=6$  et  $J=15/2$ ) correspond à  $^4I_{15/2}$ .

La relation (I-II-1) traduit l'Hamiltonien de l'ion libre. Lorsque cet ion est introduit dans un matériau dense (verre ou cristal), il est soumis à un champ électrostatique créé par les charges électriques des atomes voisins (coordinats). Cette interaction de chaque électron avec le champ cristallin peut s'écrire :

$$H_c = -e \sum V_c(\vec{r}_i) \tag{I-II-2}$$

Ce Hamiltonien possède les mêmes éléments de symétrie que le système formé par les charges qui lui ont donné naissance. Ainsi, la symétrie sphérique étant détruite, la fonction d'onde se trouve modifiée et la dégénérescence d'un état de J donné est levée jusqu'à un certain degré. Cette décomposition de niveaux d'énergie en sous niveaux Stark dépend donc de la symétrie ponctuelle du site dans lequel est incorporé l'ion de terre rare (la levée de dégénérescence totale se produit pour des sites de très basse symétrie et se manifeste par la décomposition d'un niveau J donné en  $2J+1$  composantes Stark).

Néanmoins, les fonctions d'ondes restent faiblement perturbées en raison de l'effet d'écran électrostatique que jouent les couches externes  $5s^2$  et  $5p^6$ . De manière générale, on garde les fonctions d'ondes de départ et on traite  $H_c$  comme une perturbation.

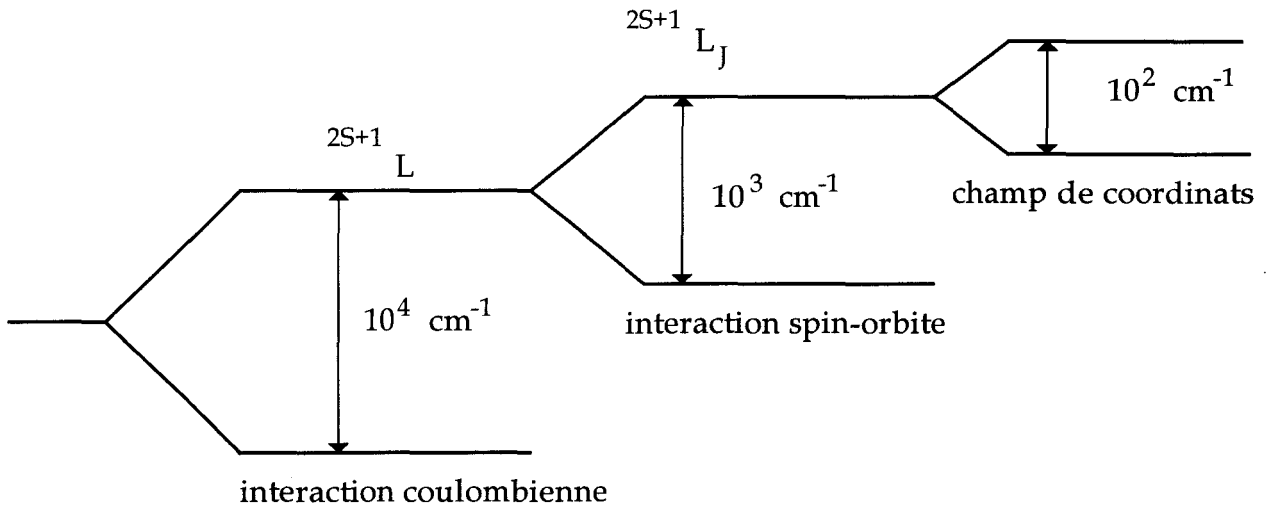


Figure I-III-2 : Représentation schématique de l'effet de différentes interactions sur la décomposition des niveaux d'énergie des ions de terres rares [1].

## II. Les transitions électroniques

De nombreux travaux théoriques et expérimentaux ont été consacrés aux propriétés spectroscopiques des ions de terres rares. Pour l'aspect théorique, les travaux de Judd [6] et Ofelt [7] constituent un pas très important dans l'interprétation et la compréhension des spectres de fluorescence ou d'absorption des ions de terres rares. Suite à ces travaux, plusieurs expériences [8-10] ont été réalisées pour étayer le modèle théorique. Ainsi, cette approche a pu être complétée en 1982 par Judd [11]. Actuellement, c'est dans ce cadre théorique, élaboré en 1962 et affiné en 1982, que sont interprétées les données spectroscopiques expérimentales se rapportant aux ions de terres rares. Dans ce qui suit, nous rappellerons, de manière, très brève quelques propriétés concernant l'absorption et l'émission des ions de terres rares. De plus amples informations peuvent être trouvées dans la foisonnante littérature traitant du sujet [2,4,12,13,14].

Il est bien connu que les transitions entre états de même configuration électronique, en l'occurrence  $4f$ , sont interdites à l'ordre dipolaire électrique par la règle de sélection de Laporte ( $\Delta l = \pm 1$ ). Ainsi, tout au long de la première moitié de ce siècle, il semblait que les transitions intra-configurationnelles des ions de terres ne pouvaient être que de nature dipolaire magnétique. Néanmoins, les fluorescences intenses générées par les ions de

terres rares ne s'expliquaient pas dans cette hypothèse. En 1962, Judd et Ofelt montrèrent que le mélange des fonctions d'ondes électroniques dans les configurations 4f et 5d (première configuration excitée), par le biais du Hamiltonien du champ cristallin, rend ces transitions 4f permises à l'ordre dipolaire électrique. On a dès lors parlé de ce qui leur a donné le nom de «transitions dipolaires électriques forcées». Une transition entre différents multiplets  $2s+1L_J$ , peut avoir un caractère dipolaire électrique forcé, si elle obéit aux règles de sélection  $\Delta J \leq 6$ ,  $\Delta L \leq 6$  et  $\Delta S=0$  ou dipolaire magnétique si  $\Delta J = 0, \pm 1$ ,  $\Delta L= 0$  et  $\Delta S = 0$ .

Les règles de sélection ci-dessus concernent les transitions radiatives. Nous présenterons ci-dessous quelques définitions de paramètres qui les caractérisent. Nous précisons également les conditions pouvant favoriser les transitions non radiatives.

## II. 1. Les transitions radiatives

### II. 1. 1. L'absorption

Lorsqu'un ion de terres rares est soumis à un rayonnement électromagnétique de fréquence  $\nu$ , il peut absorber un photon qui le fait passer de son état fondamental  $E_1$  vers un état de plus haute énergie  $E_2$ , appelé état excité, l'écart énergétique  $E_2-E_1$  étant égal à l'énergie du photon  $h\nu$ .

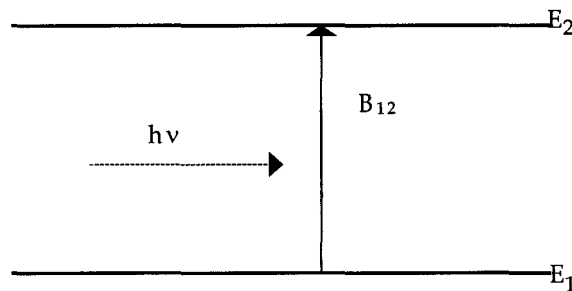


Figure I-III-3 : Processus d'absorption.

Si  $N_1$  représente la population du niveau fondamental et  $N_2$  la population du niveau excité, les variations de population des deux niveaux sont données par :

$$\frac{dN_1}{dt} = -B_{12}\rho(\nu)N_1 = -\frac{dN_2}{dt} \quad (\text{I-III-4})$$

La probabilité  $W_{12}$  (en  $s^{-1}$ ) pour qu'un ion passe de son niveau fondamental  $E_1$  vers un niveau excité  $E_2$  est égale au produit  $B_{12} \rho(\nu)$ , où  $B_{12}$  est le coefficient d'Einstein pour l'absorption et  $\rho(\nu)$  est la densité d'énergie par unité de fréquence du faisceau incident.  $W_{12}$  peut aussi s'écrire en fonction de la section efficace d'absorption ( $\sigma_{12}$  en  $cm^2$ ) et de l'intensité du faisceau incident ( $I_\nu$  en  $W/cm^2$ ) :

$$W_{12} = \frac{\sigma_{12}(\nu)I_\nu}{h\nu} \quad (I-III-5)$$

A partir de l'état excité  $E_2$ , l'ion peut retrouver son état fondamental en émettant un photon; il s'agit alors d'une transition radiative. Cette désexcitation peut se faire suivant deux processus : soit par l'émission spontanée d'un photon, soit par l'émission «stimulée» d'un photon.

### II. 1. 2. L'émission spontanée

Lorsque l'ion émet un photon sans aucune intervention extérieure, c'est l'émission spontanée.

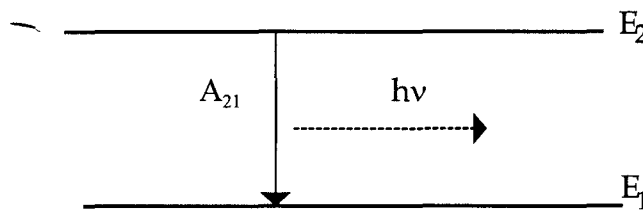


Figure I-III-4 : L'émission spontanée.

La variation de population des ions dans les niveaux  $E_1$  et  $E_2$  s'écrit :

$$\frac{dN_1}{dt} = A_{21}N_2 = -\frac{dN_2}{dt} \quad (I-III-6)$$

où  $A_{21}$  (en  $s^{-1}$ ) est le coefficient d'Einstein pour l'émission spontanée qui est inversement proportionnel à la durée de vie radiative ( $\tau_{rad}$ ) du niveau excité  $E_2$ .

$$A_{21} = \frac{1}{\tau_{rad}} \quad (I-III-7)$$

La durée de vie est un paramètre pertinent car elle rend compte de la population du niveau excité. Il est important de noter que l'inversion de population est d'autant plus facile à réaliser que la durée de vie radiative du niveau à peupler est longue.

### II. 1. 3. L'émission stimulée

L'émission du photon peut être stimulée par un autre photon incident dont l'énergie correspond à celle de la transition. Les caractéristiques du photon émis et du photon incident sont alors rigoureusement identiques : même fréquence, même direction, même phase et même polarisation.

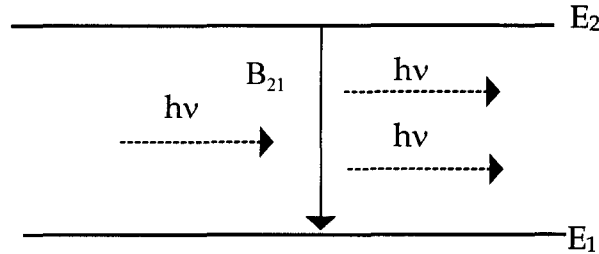


Figure I-III-5 : l'émission stimulée.

Dans ce cas, l'expression de la variation de population est donnée par :

$$\frac{dN_1}{dt} = B_{21}\rho(\nu)N_2 = -\frac{dN_2}{dt} \quad (\text{I-III-8})$$

et la probabilité d'émission stimulée vaut :

$$W_{21} = B_{21}\rho(\nu) = \frac{\sigma_{21}I_\nu}{h\nu} \quad (\text{I-III-9})$$

où  $\sigma_{21}$  (en  $\text{cm}^2$ ) est la section efficace d'émission stimulée et  $I_\nu$  (en  $\text{W}/\text{cm}^2$ ) l'intensité du faisceau incident.

### II. 2. Les transitions non radiatives

Lorsqu'un ion de terres rares est incorporé dans une matrice, l'électron excité dans un état  $E_2$  (par absorption d'un rayonnement électromagnétique) peut retrouver son état initial  $E_1$  de deux manières :

- la voie radiative décrite ci-dessus,

- la voie non radiative [15,16] où l'énergie de la transition  $E_2 - E_1$  est transférée à la matrice. Cette énergie est alors absorbée par une ou plusieurs vibrations des atomes, molécules ou agrégats constituant le milieu. Ces vibrations ont des énergies quantifiées et sont caractéristiques de la matrice hôte. Dans notre cas, nous considérerons

des matrices vitreuses. Celles-ci présentent des modes de vibrations liés à la structure et à la composition de nos matériaux et que nous appellerons «phonons de la matrice». En tenant compte de ces deux processus de désexcitation, la constante de temps du déclin de fluorescence, appelée durée de vie du niveau excité, s'écrit :

$$\frac{1}{\tau_{\text{fluo}}} = \frac{1}{\tau_{\text{rad}}} + \frac{1}{\tau_{\text{nrad}}} \quad (\text{I-III-10})$$

De même que pour les désexcitations radiatives, les transitions non radiatives entre deux états séparés d'une énergie  $\Delta E$ , sont caractérisées par leur probabilité de transition qui vaut [17] :

$$W_{\text{ph}} = C \left( \frac{e^{\frac{h\nu_{\text{ph}}}{kT}}}{e^{\frac{h\nu_{\text{ph}}}{kT}} - 1} \right)^p e^{-\alpha\Delta E} \quad (\text{I-III-11})$$

où  $C$  et  $\alpha$  sont des paramètres caractéristiques de la matrice et  $p$  représente le nombre de phonons nécessaires à la désexcitation non radiative :

$$p = \frac{\Delta E}{h\nu_{\text{ph}}} \quad (\text{I-III-12})$$

Pour les ions de terres rares, la probabilité de transition non radiative devient compétitive du processus radiatif lorsque le nombre de phonons nécessaire à la transition non radiative,  $p$ , est inférieur à 4. Ainsi, pour la transition à partir du niveau  $^4I_{13/2}$  vers le niveau  $^4I_{15/2}$  de l'ion erbium trivalent, l'écart énergétique vaut environ  $6500\text{cm}^{-1}$ . Pour que l'effet des désexcitations non radiatives à partir du niveau excité  $^4I_{13/2}$  soit négligeable, il convient de choisir une matrice dont les phonons présentent une énergie inférieure à  $1500\text{cm}^{-1}$  (ce qui est le cas des matrices silicates).

### III. Mécanismes d'interactions entre ions de terres rares

Pour les amplificateurs optiques à fibre dopée, les longueurs d'interaction entre le signal et le laser de pompe sont suffisamment longues pour qu'un faible dopage en ions actifs (quelques centaines de ppm) permette d'obtenir des gains élevés. En revanche, pour les amplificateurs optiques intégrés, les longueurs d'interaction sont beaucoup plus faibles et les performances exigées en terme de gain sont voisines de celles des amplificateurs à fibre. Pour résoudre ce problème, Il devient nécessaire d'augmenter la concentration d'ions de terres dans le milieu actif. Néanmoins, cette augmentation de la concentration ne se fait pas sans engendrer d'autres mécanismes d'interaction entre les ions de terres rares qui pourraient avoir l'effet inverse de celui recherché. En effet, une augmentation excessive du dopage en ions de terres rompt l'uniformité de la répartition des ions. Les distances inter-ioniques diminuent et les ions proches voisins peuvent alors interagir entre

eux. Il existe différentes interactions entre ions conduisant au dépeuplement d'un niveau excité lorsque la concentration en ions est élevée.

Nous nous limiterons, dans les paragraphes suivants, à la description de processus d'interactions qui peuvent se produire pour des fortes ou faibles concentrations en ions de terres rares. Ces processus peuvent conduire à une réduction des performances d'un composant amplificateur, en particulier l'amplificateur à 1,53  $\mu\text{m}$ .

### III. 1. Migration d'énergie

Lorsque deux ions proches voisins présentent des niveaux d'énergie identiques, la désexcitation d'un ion donneur D, dans un état excité, peut entraîner l'excitation d'un ion accepteur A, dans l'état fondamental. Au cours de cette transition schématisée ci-dessous, l'énergie est transférée entre les ions de terres rares de proche en proche jusqu'à la rencontre de centres pièges ou d'impuretés. Dans ce cas, elle est perdue et ne contribue plus à l'émission de photons. C'est une des causes de l'extinction de la fluorescence.

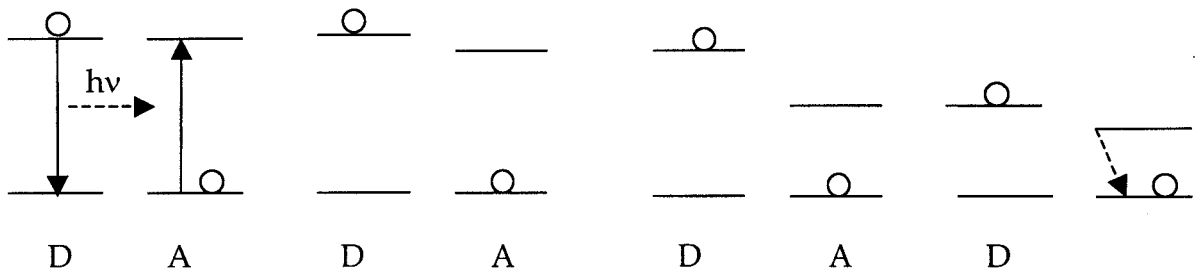


Figure I-III-6 : Transfert par migration d'énergie.

### III. 2. Transfert d'énergie assisté de phonons

Le transfert d'énergie peut avoir lieu entre deux ions ne faisant pas intervenir les mêmes états excités. Dans ce cas, l'écart entre les niveaux d'énergie est compensé par la création ou l'annihilation d'un phonon de la matrice.

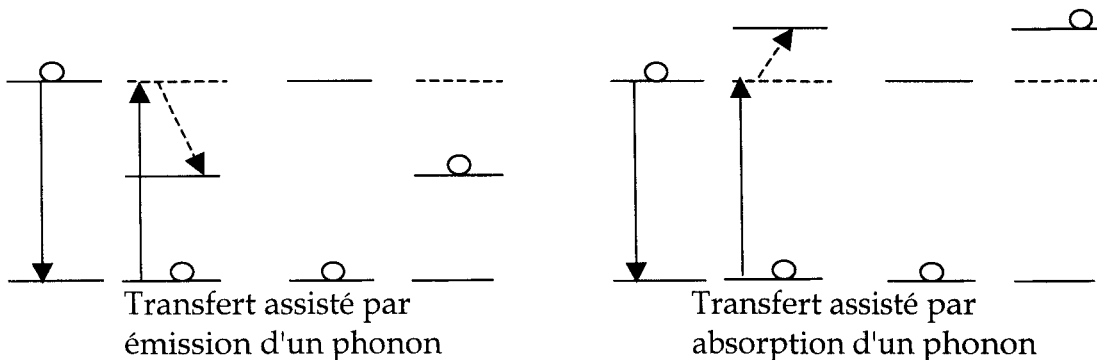


Figure I-III-7 : Transferts d'énergie assistés par des phonons.

### III. 3. Addition de photons par transfert d'énergie

Ce mécanisme fait intervenir deux ions excités simultanément dans leur état métastable. Si les ions sont suffisamment proches et que leur diagramme d'énergie le permet, ils relaxent tous deux vers leur état fondamental, mais leur énergie sert alors à exciter un troisième ion dans un niveau supérieur au niveau métastable. Ce dernier, comme le montre le schéma ci-dessous, peut alors retrouver son niveau fondamental soit par des relaxations non radiatives successives (a), soit directement en émettant un photon de plus haute énergie (b) ou éventuellement un photon à la longueur d'onde du signal (c). Par exemple, deux ions susceptibles d'émettre chacun un photon de longueur d'onde  $1,53 \mu\text{m}$  vont par ce processus émettre un seul photon dans le meilleur des cas.

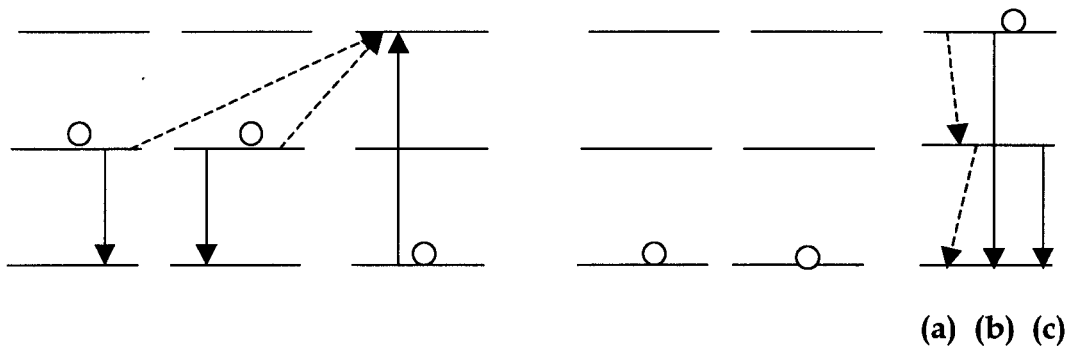


Figure I-III-10 : Addition de photons par transfert d'énergie.

Ces transferts d'énergie dépeuplent le niveau d'énergie métastable, conduisant ainsi à la réduction de sa durée de vie qui est un paramètre important pour la caractérisation des amplificateurs optiques. Nous étudierons, dans le chapitre consacré à l'amplification, l'effet de la variation de la durée de vie sur le gain optique.

### III. 4. Absorption dans l'état excité

Un atome peut, si son diagramme d'énergie le permet, absorber un rayonnement électromagnétique à partir de son niveau fondamental, mais également à partir d'un niveau excité [18-21]. Il se trouve alors dans un état excité de plus haute énergie et peut se désexciter de manière radiative en émettant un photon à une fréquence plus élevée (Up-conversion). L'efficacité de ce processus nécessite la coïncidence de l'énergie d'excitation avec les transitions possibles dans le diagramme des niveaux d'énergie de l'ion de terres rares.



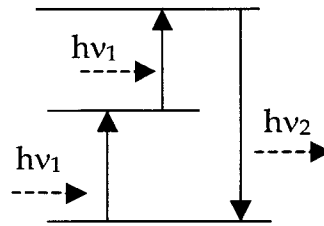


Figure I-III-8 : Absorption dans l'état excité.

Ce processus peut s'avérer intéressant pour l'obtention d'un effet laser [22,23] aux basses longueurs d'onde. En ce qui concerne les ions erbium et leur transition à  $1,53 \mu\text{m}$ , l'absorption dans l'état excité est un effet parasite car il tend à diminuer la population du niveau  $^4I_{13/2}$ .

#### IV. Codopage

Afin d'augmenter l'efficacité de la pompe, il est possible d'utiliser des ions de différentes natures. Dans notre cas la matrice peut être dopée à la fois avec des ions  $\text{Er}^{3+}$  et des ions  $\text{Yb}^{3+}$ . En effet, les ions  $\text{Yb}^{3+}$  présentent une section efficace d'absorption élevée à la longueur d'onde de la pompe (980 nm). Lorsque ces ions se trouvent dans leur état excité, ils transmettent leur énergie aux ions  $\text{Er}^{3+}$  pour les amener dans le niveau  $^4I_{11/2}$ . Une relaxation non radiative amène ces derniers dans le niveau métastable  $^4I_{13/2}$ , à partir duquel ils peuvent émettre des photons à la longueur d'onde du signal amplifié [24,25].

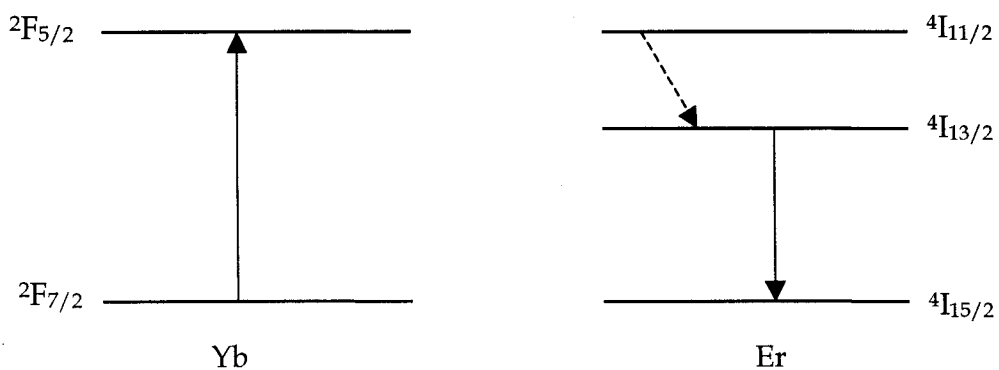


Figure I-III-11 : Transfert par codopage.

## Bibliographie

- [1] M. Le Flohic, Thèse de Doctorat, Univ. Rennes, France, (1991).
- [2] B.G. Wybourne, *Spectroscopic Properties of Rare Earth*, Interscience New- York, (1965).
- [3] J. M. Jouanno, Thèse de Doctorat, I.N.P. Grenoble, France, (1995).
- [4] P.C. Beker, Thèse de Doctorat, Laurence Berkeley Laboratory, LBL 22634, Univ. Californie, U.S.A., (1986).
- [5] S. Hüfner, K.L Andrew, R.D. Cowan, *Phys. Rev.*, **177**, (1969), 62.
- [6] B.R. Judd, *Phys. Rev.*, **127**, (1962), 750.
- [7] G.S. Ofelt, *J. Chem. Phys.*, **37**, (1962), 511.
- [8] F. E. Auzel, *Ann. Télécommun.*, **24**, (1969), 363.
- [9] W.T. Carnall, P.R. Felds, K. Rajinak, *J. Chem. Phys.*, **49**, (1968), 4424.
- [10] J.F Porter, *Bull. Am. Phys. Soc.*, **13**, (1968), 102.
- [11] B.R. Judd, D.R. Pooler, *J. Phys.*, **C15**, (1982), 591.
- [12] G. H. Dieke, *Spectra and energy levels of rare earth ions in crystals*, Ed. H.M. Crosswhite & H. Crosswhite (Interscience Publishers, Baltimore), (1968).
- [13] M.C. Downer, *Laser Spectroscopy of Solids II*, Ed. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, (1989).
- [14] J.C. Gâcon, Thèse de Doctorat d'Etat, Lyon, France, (1978)
- [15] M.J. Weber, *Phys. Rev.*, **171**, (1968), 283.
- [16] L.A. Riseberg, M.J. Weber, *Progress in Optics*, Ed. E. Wolf, North-Holland, Amsterdam, (1976), 90.
- [17] C. B. Layne, W.H. Lowdermilk, *Phys. Rev. B*, **16**, (1977), 10.
- [18] F.E. Auzel, *Proc. IEEE*, **61**, (1973), 758.
- [19] R. I. Laming, S.B. Poole, E.J. Tarbox, *Opt. Lett.*, **13**, (1988), 1084.
- [20] R. Wyatt, *Proc. SPIE*, **1171**, (1989), 54.
- [21] R. J. Quimby, *Proc. SPIE*, **1581**, (1991), 72.
- [22] R.G. Smart, D.C. Hanna, A.C. Tropper, *Electron. Lett.*, **27**, (1991), 1307.
- [23] S. G. Grubb, K.W. Bennett, R.S. Cannon, W.F. Humer, *Electron. Lett.*, **28**, (1992), 1243.
- [24] C. Lester, A. Bjarklev, T. Rasmussen, P.G. Dinesen, *J. Lighthwave Techn.*, **13**, (1995), 740.
- [25] F. Di Pasquale, M. Federighi, *IEEE J. Quantum Electron.*, **30**, (1994), 2127.



## Partie II :

Ch. II-I :Les guides d'ondes planaires germanosilicates

Ch. II-II :Les guides d'ondes planaires aluminosilicates

## Chapitre II-I

### Les guides d'ondes planaires germanosilicates

Ce chapitre est consacré à l'étude des guides germanosilicates. Dans un premier temps, nous nous intéresserons aux aspects chimiques en relation avec la préparation du sol, puis nous décrirons la méthode d'élaboration des guides d'ondes.

La caractérisation opto-géométrique de ces guides fera l'objet de la seconde partie. Nous détaillerons les techniques expérimentales utilisées et discuterons les résultats obtenus concernant la qualité optique des guides. L'évolution structurale du réseau gel de ces guides en fonction du traitement thermique est également abordée.

Les guides dopés aux ions erbium ont fait l'objet d'une étude particulière. Ainsi, nous avons caractérisé les émissions des ions erbium dans le domaine spectral visible et proche infrarouge. Ces résultats seront présentés dans la dernière partie.

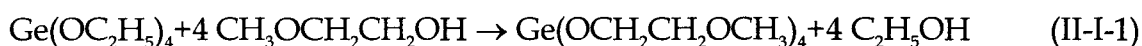
#### I. Elaboration de guides d'ondes germanosilicates

Les matrices que nous avons étudiées ont été préparées à partir d'alkoxydes métalliques. Dans le cas des guides germanosilicates, les précurseurs utilisés sont le TétréthylOrthoSilicate, T.E.O.S. (Aldrich), et le TétréthylOrthoGermanate, T.E.O.G. (Aldrich). Les alkoxydes métalliques sont très hygroscopiques. Ils doivent être dilués dans un solvant (généralement un alcool) avant leur hydrolyse.

La méthode de préparation des sols germanosilicates est identique à celle décrite par D. G. Chen [1]. Elle consiste à préparer un sol de silicium auquel on ajoute un alkoxyde de germanium modifié. En effet, à cause de son extrême sensibilité à l'eau, le T.E.O.G. de formule chimique  $\text{Ge}-(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  subit une préparation préalable qui consiste à substituer un radical de plus longue chaîne au radical organique  $(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$  afin de ralentir la réaction d'hydrolyse.

### I. 1. Préparation d'un alkoxyde de germanium modifié par échange d'alcool

Bradley *et al* [2] ont mis au point un procédé qui permet de transformer les alkoxydes métalliques en d'autres composés organiques de formule chimique  $M(OR)_4$ , R désignant un radical organique, plus stable vis-à-vis de l'hydrolyse. Dans notre cas, elle s'agit de préparer du méthoxyéthoxyde de germanium ( $Ge-(O-CH_2CH_2OCH_3)_4$ ) à partir de l'alkoxyde de germanium  $Ge-(OC_2H_5)_4$  suivant la réaction :



La technique expérimentale consiste à mélanger le T.E.O.G. avec du méthoxyéthanol ( $CH_3OCH_2CH_2OH$ ) et de l'hexane, dans des rapports molaires (1: 25: 60) et à chauffer la solution ainsi préparée jusqu'à ébullition. Une colonne de distillation permet d'évacuer l'azéotrope formé, constitué de 21 % d'éthanol et de 79 % d'hexane, en masse. Après évacuation du solvant, le produit final est distillé sous pression réduite afin de purifier l'alkoxyde (figure II-I-1).

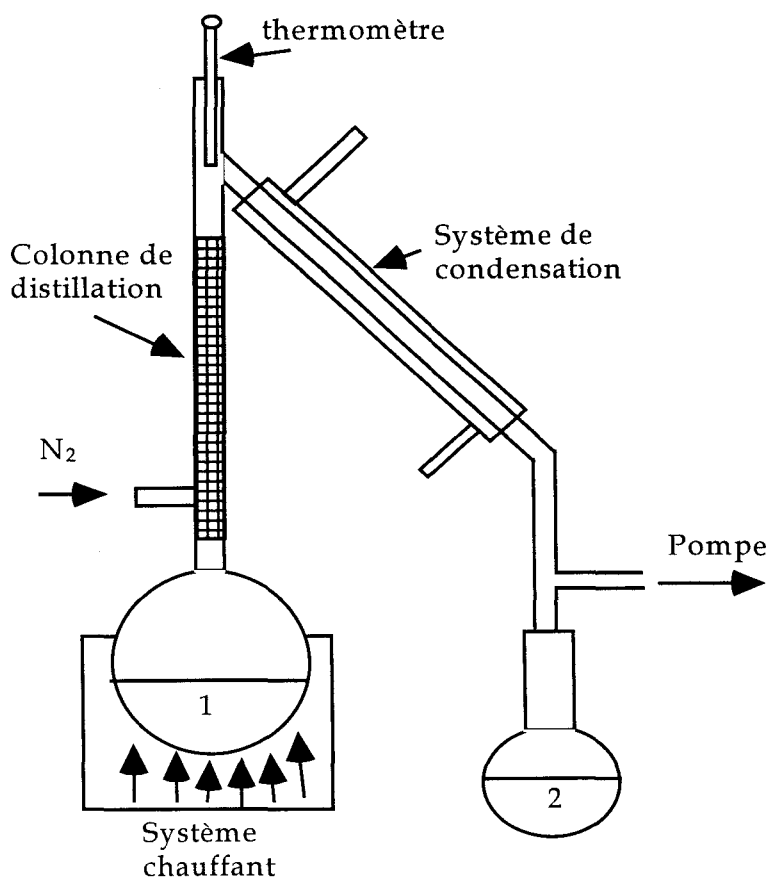
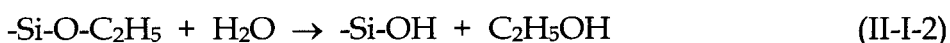


Figure II-I-1 : Montage expérimental d'échange d'alcool.

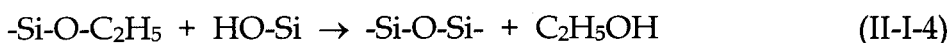
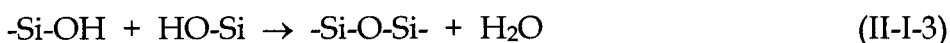
La substitution des groupements éthyle par des chaînes organiques plus longues permet d'augmenter la stabilité du sol. En effet, les atomes de germanium sont liés à des radicaux plus longs qui ralentissent les réactions d'hydrolyse et empêchent la formation d'un précipité.

### I. 2. Préparation du sol

La procédure suivie pour la préparation du sol est présentée sur le diagramme de la figure II-I-2. La solution de départ est constituée de l'alkoxyde de silicium, TEOS, dissout dans l'éthanol et préhydrolysé en utilisant un rapport molaire H<sub>2</sub>O/alkoxyde égal à 1. L'ajout d'acide chlorhydrique permet d'effectuer cette préhydrolyse en milieu acide (pH=2), suivant la réaction :



Il est important de noter que le rapport eau/alkoxyde doit être déterminé de manière très précise afin d'obtenir un sol clair et stable. Les réactions d'hydrolyse sont accompagnées par des réactions de condensation :



Ces réactions se poursuivent pendant environ 12 heures. Le méthoxyéthoxyde de germanium est ajouté au sol de silicium, en ajustant le volume en fonction du rapport final Ge/Si recherché. Une fois introduit dans la solution l'alkoxyde de germanium subit également des réactions d'hydrolyse et de condensation. Les réactions subies par les deux alkoxydes conduisent à la formation des liaisons T-O-T (T = Si ou Ge) qui constituent le squelette de base de la matrice germanosilicate. Le dopage avec des ions erbium est réalisé par l'ajout d'un sel de nitrate d'erbium Er(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> (Aldrich) dans le sol. Nous utilisons également un additif organique, l'hydroxypropocellulose (HPC, Aldrich), afin d'augmenter la viscosité du produit final et donc l'épaisseur des couches déposées. Le sol final ainsi obtenu doit être stable pendant une durée suffisamment longue pour permettre la réalisation de plusieurs dépôts dans des conditions identiques.

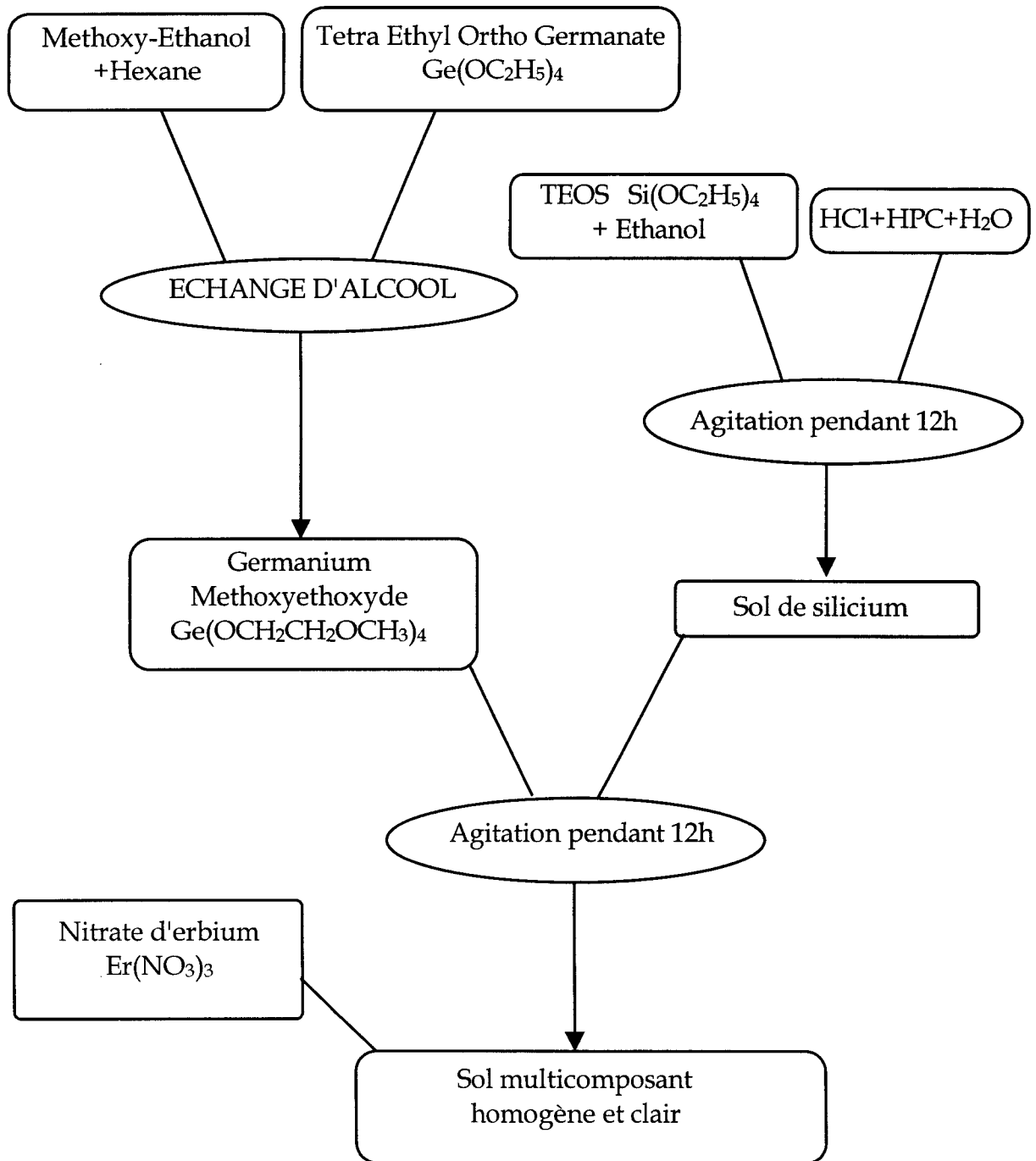


Figure II-I-2 : Préparation du sol germanosilicate.



### I. 3. Dépôts de films minces par la méthode de trempage

#### I. 3. 1. Les substrats

Les films sont déposés sur des substrats qui doivent présenter des caractéristiques bien définies:

- L'indice de réfraction du substrat doit évidemment être inférieur à celui du film déposé, pour répondre aux conditions de guidage.
- La surface du substrat doit être dépourvue de graisse ou de rayures et présenter une faible rugosité, pour permettre une bonne adhérence de la couche sur le substrat. Un polissage de la lame peut s'avérer utile, voire nécessaire.
- Le coefficient de dilatation thermique des lames doit être le plus proche possible de celui du film. En effet, lors des traitements thermiques, si des contraintes se créent entre le film et le substrat, elles favorisent l'apparition de craquelures. De plus les températures de recuit élevées ( $T_{max}=1200\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) imposent l'utilisation de substrats pouvant supporter de tels traitements sans modification de leur structure.

Nous avons choisi de déposer nos films sur des lames de silice pure ( $\text{SiO}_2$ ) ou des lames de Pyrex®. Une troisième option consiste à utiliser des substrats de Silicium, sur lesquels 1 ou 2  $\mu\text{m}$  de silice ont été préalablement déposés par P.E.C.V.D. Les caractéristiques de ces substrats sont données dans le tableau suivant:

Type de substrat	longueur (mm)	largeur (mm)	épaisseur (mm)	Température maximale de recuit ( $^{\circ}\text{C}$ )	indice de réfraction à 632,8 nm
Silice	75	25	1	900	1,46
Pyrex®	75	25	2	650	1,47
$\text{SiO}_2/\text{Si}$	75	25	0,5	1200	1,45

Tableau II-I-1 : Caractéristiques des substrats.

Avant la phase de dépôt de films minces, les substrats subissent plusieurs séquences de nettoyage. Un détergent chimique est tout d'abord utilisé pour éliminer les graisses en frottant légèrement la surface des lames à l'aide d'une brosse douce. Celles-ci sont ensuite rincées à l'eau distillée. Elles sont alors trempées dans un bain d'alcool où elles subissent un nettoyage de 15 minutes par ultrasons. Un second rinçage à l'eau distillée, puis à l'alcool est appliqué. Finalement, les lames sont nettoyées avec du papier optique et du méthanol afin d'éliminer les poussières résiduelles. Ce cycle est répété jusqu'à ce que la qualité des lames soit satisfaisante.

### I. 3. 2. Dépôt de films minces par trempage

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé, pour le dépôt de films minces est représenté sur la figure II-I-3a. Il comprend une potence sur laquelle est fixé un moteur continu permettant l'immersion et le retrait du substrat à vitesse constante (4 cm/min). Un récipient en téflon contient le sol, lequel est préalablement passé dans un filtre à membranes dont les pores ont un diamètre de 0,2  $\mu\text{m}$ . Tout le dispositif est fixé sur une table antivibration, dans une boîte en Plexiglas, pour éviter le contact avec les poussières présentes dans l'atmosphère environnante.

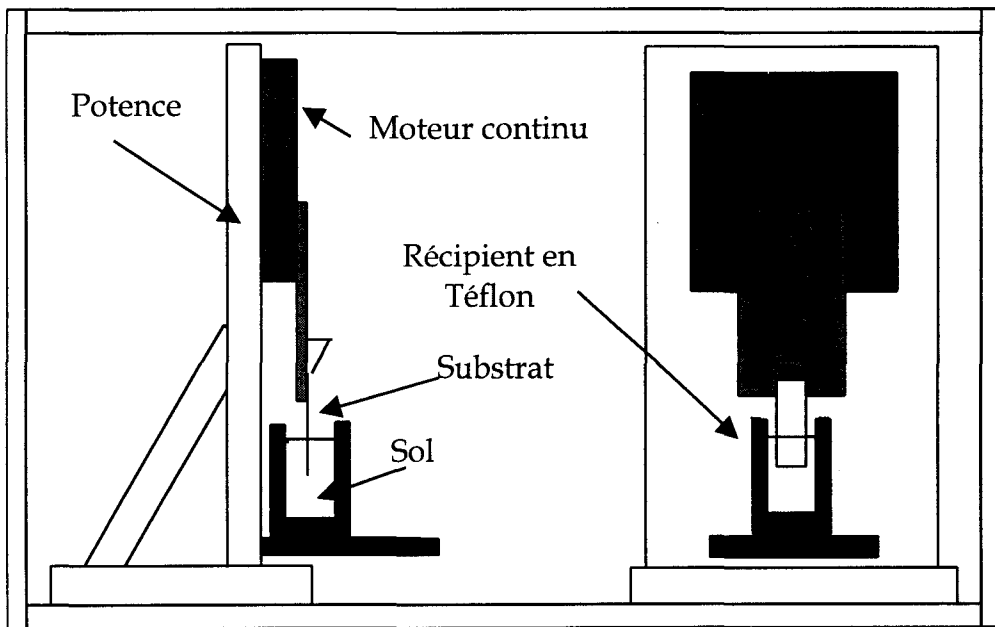


Figure II-I-3a : Dispositif de trempage.

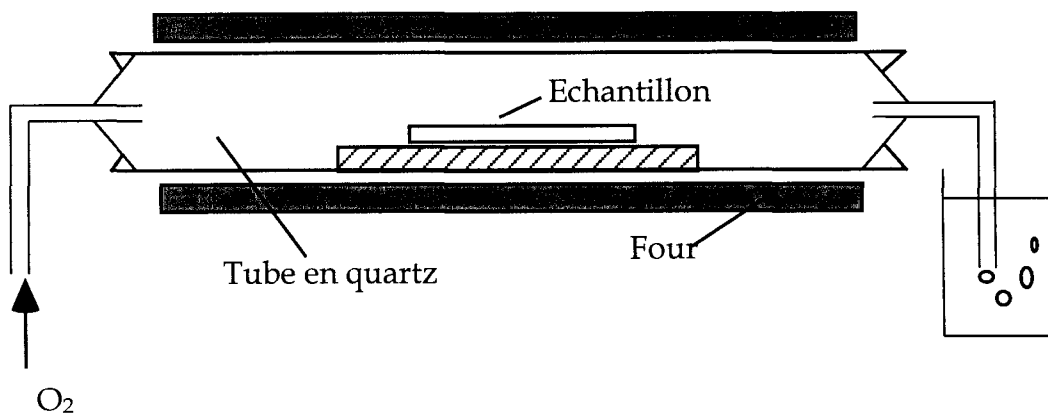


Figure II-I-3b : Dispositif pour le traitement thermique des échantillons.

### I. 3. 3. Traitements thermiques

Après chaque dépôt, la lame subit un traitement thermique à 500 °C pendant 2 à 3 minutes dans un four tubulaire sous flux d'oxygène (figure II-I-3b). Ce traitement a pour but d'éliminer les solvants organiques les plus volatils et d'assurer une meilleure adhérence pour un dépôt ultérieur. Après refroidissement, la lame est de nouveau plongée dans le sol afin de déposer une nouvelle couche. Après 12 cycles de dépôt-recuit, l'échantillon est placé dans le four à 500 °C pendant une heure afin d'évacuer la majorité des résidus organiques. Ce traitement permet également de densifier le réseau gel.

Il est important de noter que des paramètres tels que la vitesse de retrait, la température de recuit, le nombre de dépôts avant densification et la durée de densification ne sont pas choisis arbitrairement. Ils sont le résultat de très nombreux essais grâce auxquels nous avons pu optimiser ces paramètres. Cette optimisation est gouvernée par des contraintes liées à la qualité optique et aux propriétés structurales des films.

La première contrainte concerne l'état de surface des couches après traitement thermique. Cette surface doit être transparente et exempte de craquelures. Afin de s'affranchir des craquelures, dont l'apparition est liée à l'épaisseur des couches déposées et à la température de recuit, nous avons déterminé le nombre maximum de couches à déposer, la température et la durée du premier recuit.

Le deuxième paramètre pouvant modifier la qualité des films est la vitesse de retrait. Celle-ci a été ajustée pour l'obtention d'une épaisseur de couche maximale, tout en maintenant une homogénéité du film dans son intégralité.

Le traitement thermique des films après chaque cycle de 12 dépôts, est réalisable à une température supérieure à 500 °C. Dans ce cas, de multiples essais nous ont conduit à opter pour une vitesse de montée en température de 4 °C /min, assortie de paliers d'une heure à 600, 700, 800 ou 900 °C.

## II. Caractérisation optogéométrique des guides

### II. 1. Dispositif de mesure des indices effectifs

Afin de mesurer l'indice de réfraction et l'épaisseur totale des films minces, nous avons utilisé une méthode optique basée sur l'excitation sélective des modes de propagation. C'est la technique dite de spectroscopie des lignes noires (m-lines). Le dispositif expérimental utilisé est celui de la figure II-I-4.

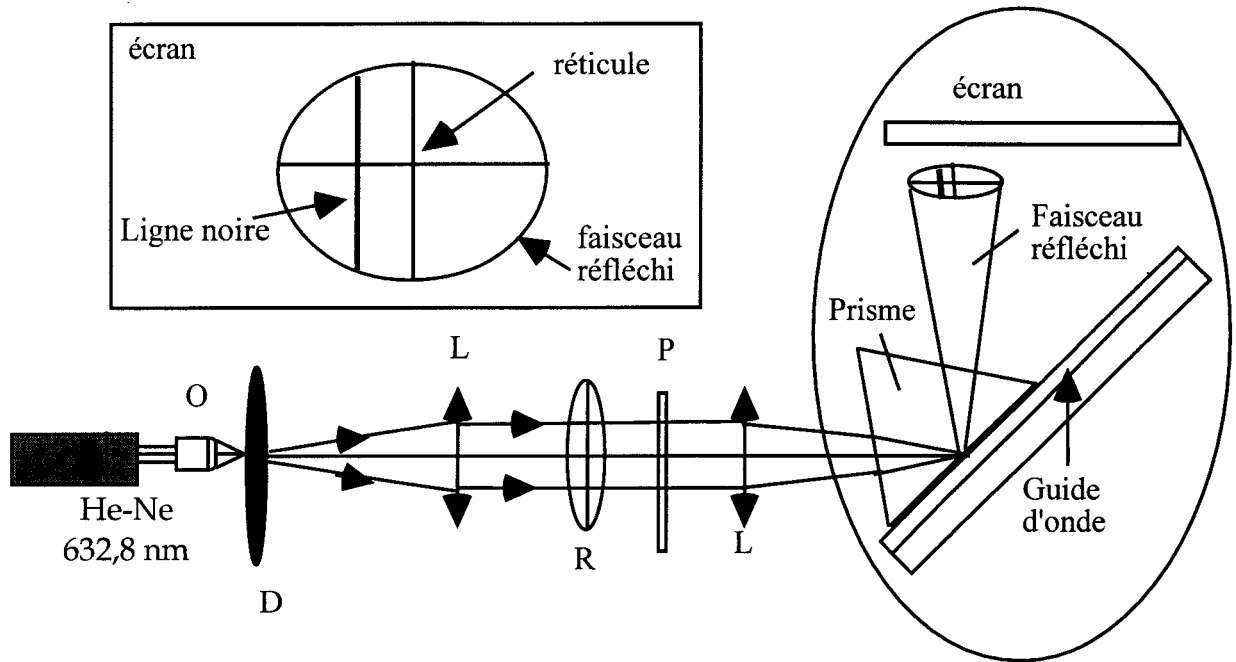


Figure II-I-4 : Dispositif expérimental de la technique M-line.

Le montage expérimental est constitué :

- d'un laser He-Ne à 632,8 nm qui délivre une puissance de 5 mW. Ce laser n'est pas polarisé. Ainsi nous pouvons exciter au choix les modes TE ou les modes TM en disposant un polariseur sur le trajet du faisceau laser.
- d'un objectif (O) qui permet d'élargir le faisceau en sortie,
- d'un disque diffuseur (D) tournant, utilisé pour obtenir un champ lumineux homogène,
- d'un système de lentilles (L) pour focaliser le faisceau sur la base du prisme,
- d'un réticule (R) qui permet de repérer la position de la ligne noire et donc de mesurer l'angle d'injection,
- d'un polariseur qui permet de choisir l'état de polarisation du mode à exciter,
- d'une platine de couplage qui permet un déplacement dans les trois directions de l'espace,
- d'une platine de rotation munie d'un goniomètre permettant de faire varier l'angle d'injection mesurable au centième de degré.

Le principe de mesure des indices effectifs a été présenté dans le chapitre II de la partie I. La lumière est couplée dans le guide au moyen d'un prisme rectangle et isocèle de rutile, dont les caractéristiques sont :

- Angle au sommet du prisme, mesuré,  $A_p=44,81^\circ$ ,
- indice ordinaire à 632,8 nm  $n_o=2,585$  ( $n_p=n_o$  pour les modes TM),
- indice extraordinaire à 632,8 nm  $n_e=2,866$  ( $n_p=n_e$  pour les modes TE).

### II. 2. Mesure de l'indice et de l'épaisseur des films

Les travaux de D.G. Chen [3], concernant les guides germanosilicates non dopés, ont montré qu'il est possible d'estimer l'indice de réfraction d'un film germanosilicate en fonction du rapport du rapport Ge/Si. Sur la figure II-I-5 ci-dessous sont représentés les résultats expérimentaux et ceux obtenus avec le modèle de l'équation de Lorentz-Lorenz.

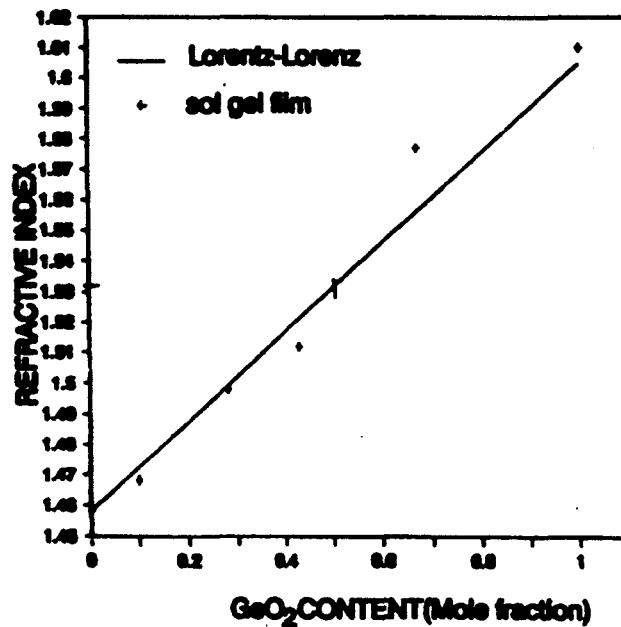


Figure II-I-5 : Variation de l'indice de réfraction des films de  $\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$  en fonction de la teneur en germanium [3].

Les guides que nous avons réalisés sont constitués d'une matrice contenant 50% d'oxyde de germanium. Le modèle de Lorentz-Lorenz donne une estimation de l'indice de réfraction de nos films à 632,8 nm. Celui-ci doit être proche de  $n=1,53$ . Cette valeur nous permet grâce aux équations de dispersion, de calculer l'épaisseur minimale à déposer pour pouvoir propager un mode dans la structure :

$$h_c = \frac{m\pi + \arctan\left(\frac{\sqrt{n_s^2 - n_0^2}}{\sqrt{n_f^2 - n_s^2}}\right)}{k\sqrt{n_f^2 - n_s^2}} \quad (\text{II - I - 4}) \quad \text{pour un mode polarisé TE,}$$

$$h_c = \frac{m\pi + \arctan\left(\frac{n_f^2}{n_0^2} \frac{\sqrt{n_s^2 - n_0^2}}{\sqrt{n_f^2 - n_s^2}}\right)}{k\sqrt{n_f^2 - n_s^2}} \quad (\text{II - I - 5}) \quad \text{pour un mode polarisé TM.}$$

Pour valider nos estimations, le guide doit pouvoir supporter deux modes de même polarisation, soit  $TE_0$  et  $TE_1$  ou  $TM_0$  et  $TM_1$ . A partir des deux équations précédentes, nous calculons les épaisseurs de coupure des quatre premiers modes. Les résultats sont donnés dans le tableau suivant :

Mode	0	1
Polarisation TE	$h_c=0,256 \mu\text{m}$	$h_c=0,948 \mu\text{m}$
Polarisation TM	$h_c=0,306 \mu\text{m}$	$h_c=0,997 \mu\text{m}$

Tableau II-I-2 : Epaisseurs de coupure des 2 premiers modes TE et des 2 premiers modes TM avec  $n_s=1,46$ ,  $n_0= 1$ ,  $n_f=1,53$  et  $\lambda= 632,8$  nm.

Les conditions de guidage du mode  $TE_1$  imposent donc une épaisseur supérieure à 1  $\mu\text{m}$ . L'élaboration d'un guide de 99 couches traitées à 700 °C, nous a permis de valider nos calculs. A 632,8 nm, ces guides sont bi-modes, leur indice de réfraction est  $n_f = 1,532 \pm 0,001$ , et leur épaisseur est  $e = 1024 \pm 10$  nm. Nous avons pu ainsi déterminer que l'épaisseur moyenne d'une couche est de  $10,3 \pm 0,1$  nm.

Le protocole expérimental que nous avons mis en place a permis d'optimiser tous les paramètres de l'élaboration pour préparer nos guides de manière reproductible. En effet, la variation de l'épaisseur sur toute la surface du guide ( $50 \times 25 \text{ mm}^2$ ) est de l'ordre de 2 % (mesurée par la méthode M-lines). De plus, ces guides sont parfaitement transparents et exempts de craquelures.

### II. 3. Mesure des pertes de propagation

Les mécanismes de pertes dans les guides d'ondes ont plusieurs origines :

- les pertes dues à l'absorption de l'énergie par la matrice ou par les impuretés.
- les pertes par radiation liées à un mauvais confinement de la lumière. Une partie de l'énergie fuit dans le substrat ou dans le superstrat.
- les pertes par diffusion causées par les craquelures, les poussières ou éventuellement les pores résiduels. Elles peuvent également se produire aux interfaces du guide, si la rugosité du substrat ou du film est élevée. Il faut noter que ces pertes peuvent être significatives en raison du nombre important de réflexions aux interfaces.

Les pertes de propagation peuvent être mesurées par diverses techniques [4-6]. La méthode que nous avons employée est basée sur l'analyse de la lumière diffusée perpendiculairement à la direction de propagation [7]. Elle consiste à collecter une partie de l'intensité de la lumière diffusée par le guide, le long de la direction de propagation. L'analyse de cette intensité en fonction de la distance permet d'obtenir le coefficient d'atténuation.

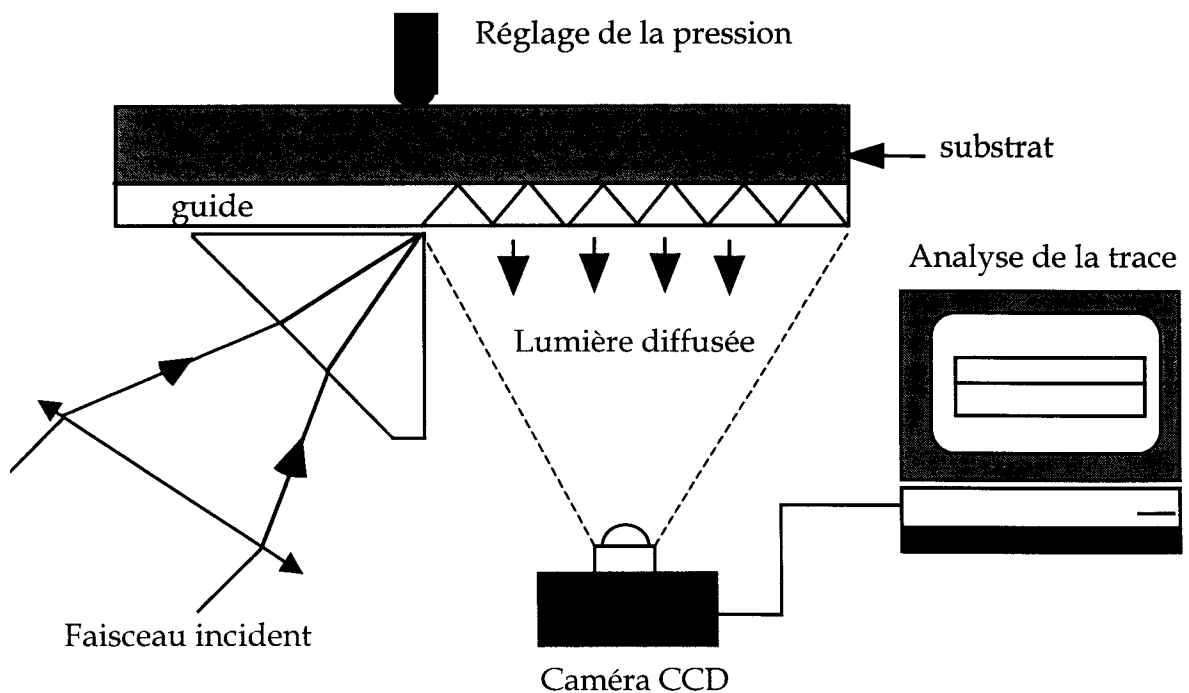


Figure II-I-6 : Dispositif expérimental de mesure de pertes de propagation à 632,8 nm.

Le dispositif expérimental (figure II-I-6) est constitué d'un laser He-Ne à 632,8 nm, d'une lentille de focalisation et d'un prisme en verre d'indice de réfraction égal à 1,8 à 632,8 nm. La lumière est collectée à l'aide d'une caméra C.C.D. (Hamamatsu) couvrant le domaine visible. Cette caméra est reliée à une carte vidéo asservie par un ordinateur. L'image numérisée est traitée par un programme que nous avons mis au point sous environnement « Mathcad ».

Nous avons caractérisé, grâce à ce dispositif, des guides monomodes d'épaisseur **362 nm** et d'indice de réfraction égal à **1,532**. Dans ces guides, la lumière se propage sur **4 cm**. L'atténuation mesurée est d'environ **2 dB/cm**.

Généralement, l'atténuation provient de l'absorption ou de la diffusion. Dans notre cas, la contribution de l'absorption est faible. En effet, les matériaux germanosilicates sont fortement transparents dans le visible et le proche infrarouge. De plus, les seules impuretés chimiques dont nous soupçonnons la présence sont les groupements hydroxyles ( $\text{OH}^-$ ). Leur contribution est minimisée par le fait que ces groupements n'absorbent pas à 632,8 nm. Les pertes par diffusion peuvent avoir deux origines :

- soit la diffusion Rayleigh intrinsèque (en  $1/\lambda^4$ ), qui diminue fortement aux plus grandes longueurs d'onde (notamment à 1,53  $\mu\text{m}$ ),
- soit les processus de diffusion liés aux inhomogénéités de la matrice.

Pour les guides que nous avons élaborés, nous pensons que la contribution majeure vient des poussières qui se déposent entre les couches lors des multiples dépôts.

Par la suite, nous avons eu accès à une salle blanche dans laquelle l'atmosphère est continuellement nettoyée afin d'éliminer les poussières. Nous avons ainsi pu réaliser de nouveaux guides présentant des atténuations plus faibles. En effet, la plus faible atténuation que nous avons mesurée, dans des guides germanosilicates non dopés, est de **0,5 ( $\pm 0,1$ ) dB/cm**.

### III. Fluorescence des ions erbium dans une matrice $\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$

L'étude des ions de terres rares a fait l'objet de nombreux travaux tant du point de vue théorique que du point de vue expérimental [8-12]. Pour une meilleure compréhension des différentes transitions entre les niveaux de l'ion erbium, un diagramme des niveaux d'énergie est représenté sur la figure II-I-8. Leurs positions énergétiques par rapport au niveau fondamental noté  $^4I_{15/2}$  sont reportées dans le tableau II-I-3.



Niveaux d'énergie	$^4I_{13/2}$	$^4I_{11/2}$	$^4I_{9/2}$	$^4F_{9/2}$	$^4S_{3/2}$	$^2H_{11/2}$	$^4F_{7/2}$
Energie (cm <sup>-1</sup> )	6600	10250	12515	15325	18325	19225	20505
$\lambda$ (nm)	1515	977	798	650	544	520	487

Tableau II-I-3 : Caractéristiques des ions erbium dans une matrice vitreuse [13].

Dans un premier temps, nous avons étudié les émissions de fluorescence de ces ions dans une matrice germanosilicate, dans le visible et le proche infrarouge, en fonction de la température de recuit du matériau.

### III. 1. Dispositif expérimental

Compte tenu de la faible épaisseur des guides, il n'est pas possible d'analyser les émissions des ions erbium par un dispositif expérimental en transmission. Pour augmenter la longueur d'interaction entre les ions et le faisceau de pompe, nous avons adopté une solution qui consiste à injecter le faisceau dans le guide, au moyen d'un prisme de couplage et à analyser la lumière émise par le guide perpendiculairement à la direction de propagation.

Le dispositif utilisé est représenté sur la figure II-I-7. Il permet l'enregistrement des spectres d'émission dans le domaine spectral visible ou proche infrarouge. Il comprend une source laser excitatrice : un laser à argon ionisé Cohérent-Innova 400-20. Le faisceau laser couplé dans le guide par l'intermédiaire d'un prisme d'indice élevé ( $n=2$ ), permet de promouvoir les ions erbium dans leurs états excités. Lors des désexcitations radiatives, une partie de l'énergie émise par les ions  $Er^{3+}$  est diffusée hors du guide. Elle est ensuite collectée par un jeu de lentilles, puis analysée au moyen d'un monochromateur Jobin-Yvon U1000 à double réseau.

Dans le domaine spectral visible, les réseaux sont blazés à 500 nm et comportent 1800 traits. Dans l'infrarouge, nous utilisons des réseaux de 600 traits blazés à 1500 nm. Suivant la gamme de fréquence à explorer le détecteur est soit un photomultiplicateur (dans le visible), EMI 9863B, refroidi par effet Peltier à  $-30^{\circ}C$ , soit un détecteur au germanium (dans le domaine I.R.), North Coast 403 L, refroidi à l'azote liquide. Afin d'augmenter le rapport signal sur bruit, lors de l'acquisition des spectres dans l'infrarouge, nous utilisons un amplificateur à détection synchrone. Le dispositif est asservi par un P.C. qui assure également l'acquisition des données.

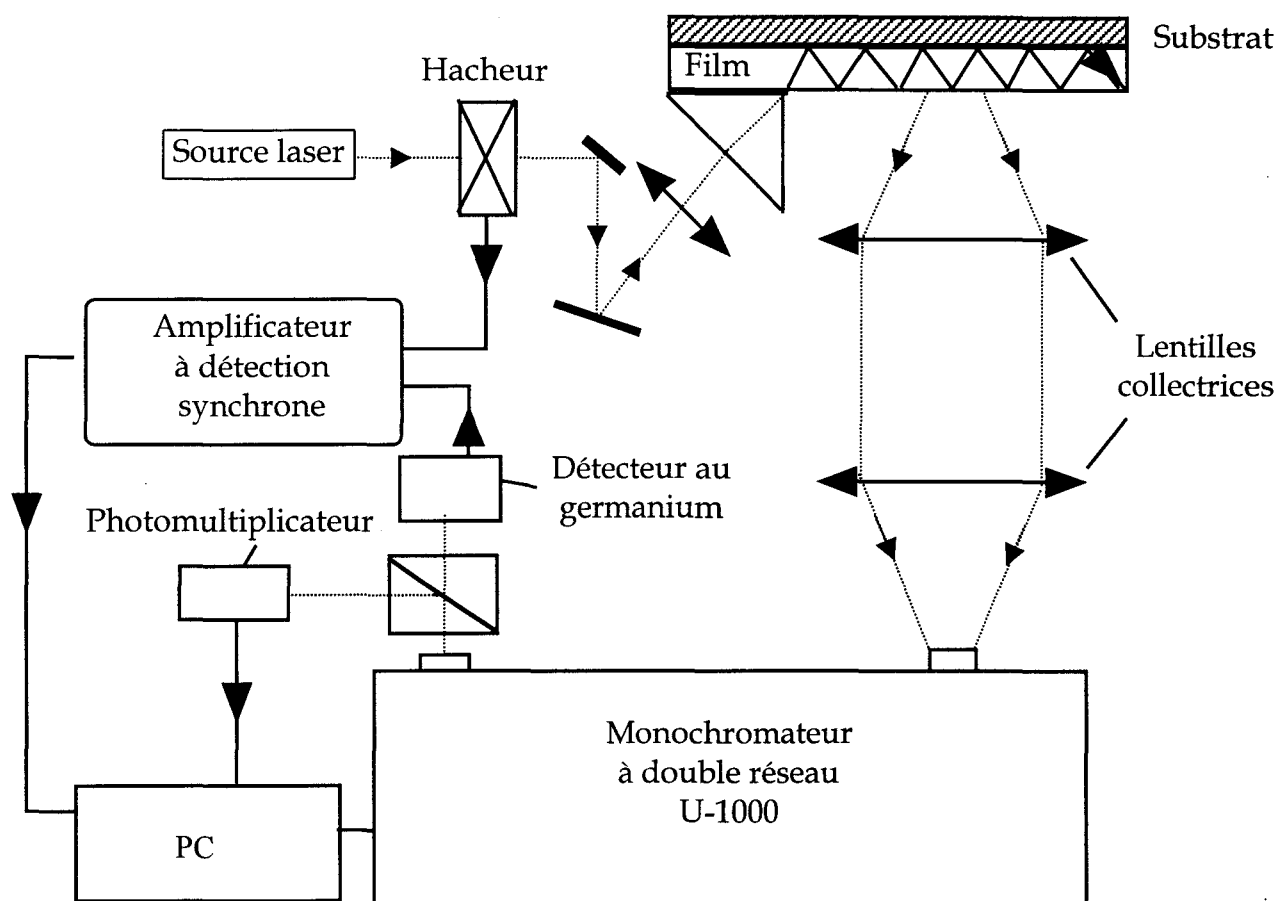


Figure II-I-7 : Dispositif expérimental pour l'acquisition des spectres d'émission dans le domaine spectral visible et proche infrarouge.

### III. 2. Emission autour de 1500 nm

Dans l'infrarouge, nous nous intéressons particulièrement à la transition radiative  ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$  pour la réalisation d'amplificateurs optiques opérant dans la troisième fenêtre des télécommunications optiques. En effet, la désexcitation du niveau  ${}^4I_{13/2}$  conduit à l'émission de photons autour de 1500 nm. Le principe de peuplement des niveaux excités est décrit sur la figure II-I-8. Dans un premier temps, les ions erbium dans leur état fondamental absorbent le rayonnement laser émis à 488 nm. Cette absorption les amène dans le niveau excité  ${}^4F_{7/2}$ . Par suite de transitions non radiatives multiphonons, les ions se retrouvent dans le niveau métastable  ${}^4I_{13/2}$ , à partir duquel ils se désexcitent de manière radiative vers le niveau fondamental.

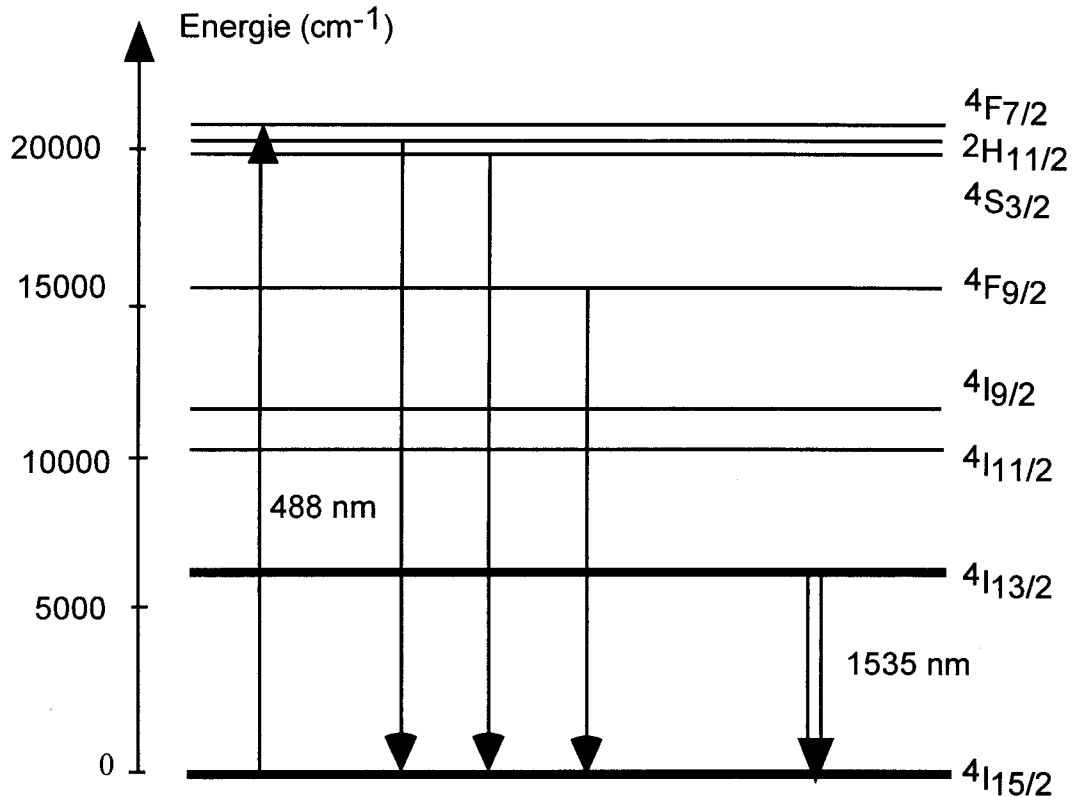


Figure II-I-8 : Processus de désexcitation des ions erbium. ( $\lambda_p=488$  nm).

La figure II-I-9 montre les spectres d'émission dans l'infrarouge des guides d'ondes germanosilicates (Si/Ge=1) dopés à 0,25 at.% en erbium. Les guides sont composés de 36 couches, déposées sur un substrat de silice. Ils ont été recuits à une température de 500 °C et densifiés à 700 °C ou à 900 °C. L'enregistrement des spectres se fait à température ambiante.

Ces spectres sont caractérisés par la présence de deux pics à 1533 nm et à 1545 nm et par une bande d'émission large. La largeur à mi-hauteur de cette bande vaut 36 nm à 700 °C tandis qu'à 900 °C, elle est de 27 nm. Cette dernière valeur est voisine de celle mesurée dans des fibres germanosilicates dopées aux ions erbium [14]. La température de traitement des films minces est un paramètre déterminant dans leur densification, mais également pour la présence de groupements organiques ou hydroxyles résiduels, et pour la structure amorphe ou cristalline du réseau de la matrice. Les différentes largeurs de la bande d'émission entre 700 °C et 900 °C s'expliquent par une modification de l'environnement des ions erbium. En effet, après le second recuit, la matrice beaucoup plus dense offre aux ions erbium des sites de plus en plus semblables les uns par rapport aux autres. Cela a pour effet de réduire la largeur inhomogène de chaque composante Stark et par conséquent de la bande d'émission dans sa totalité.

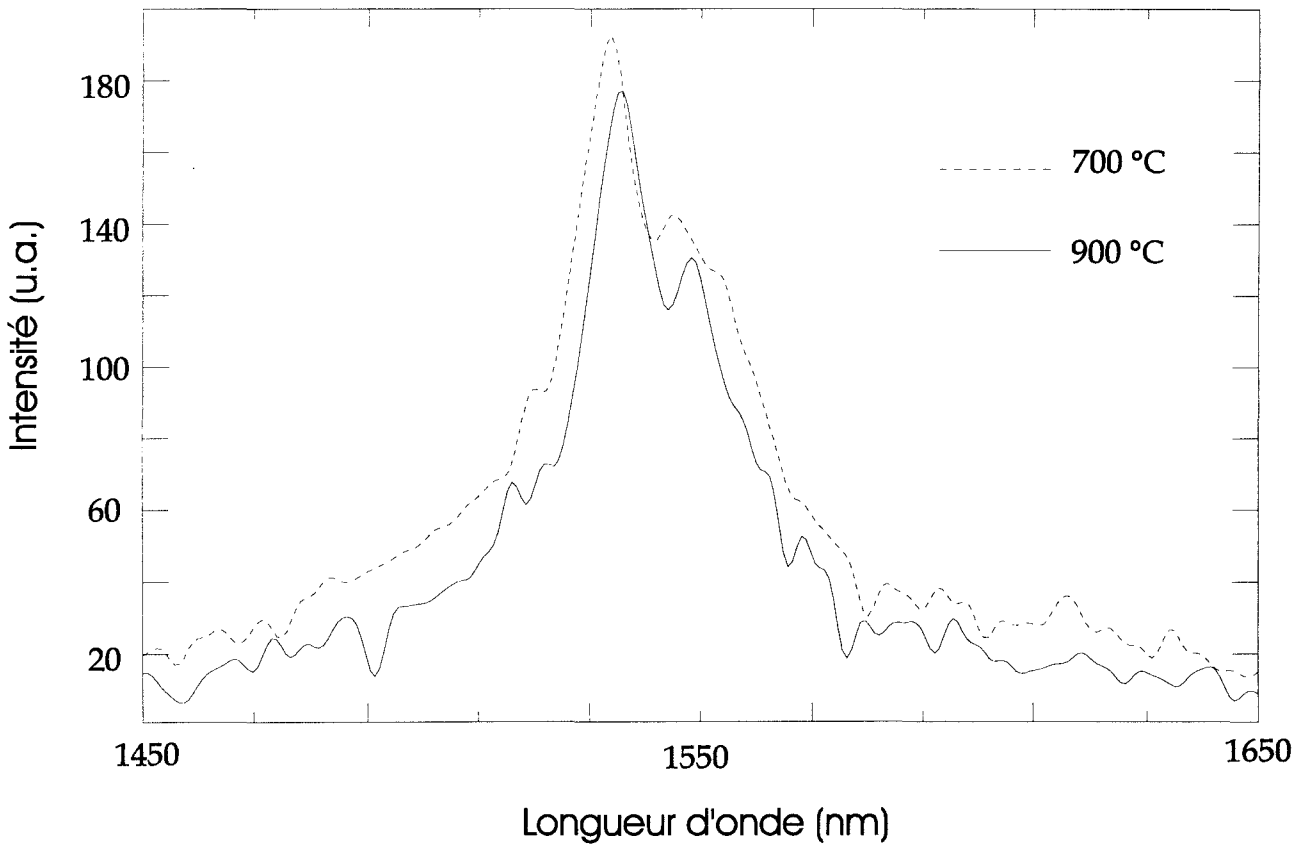


Figure II-I-9 : Spectres d'émission dans l'infrarouge des ions erbium dans une matrice germanosilicate à température ambiante.

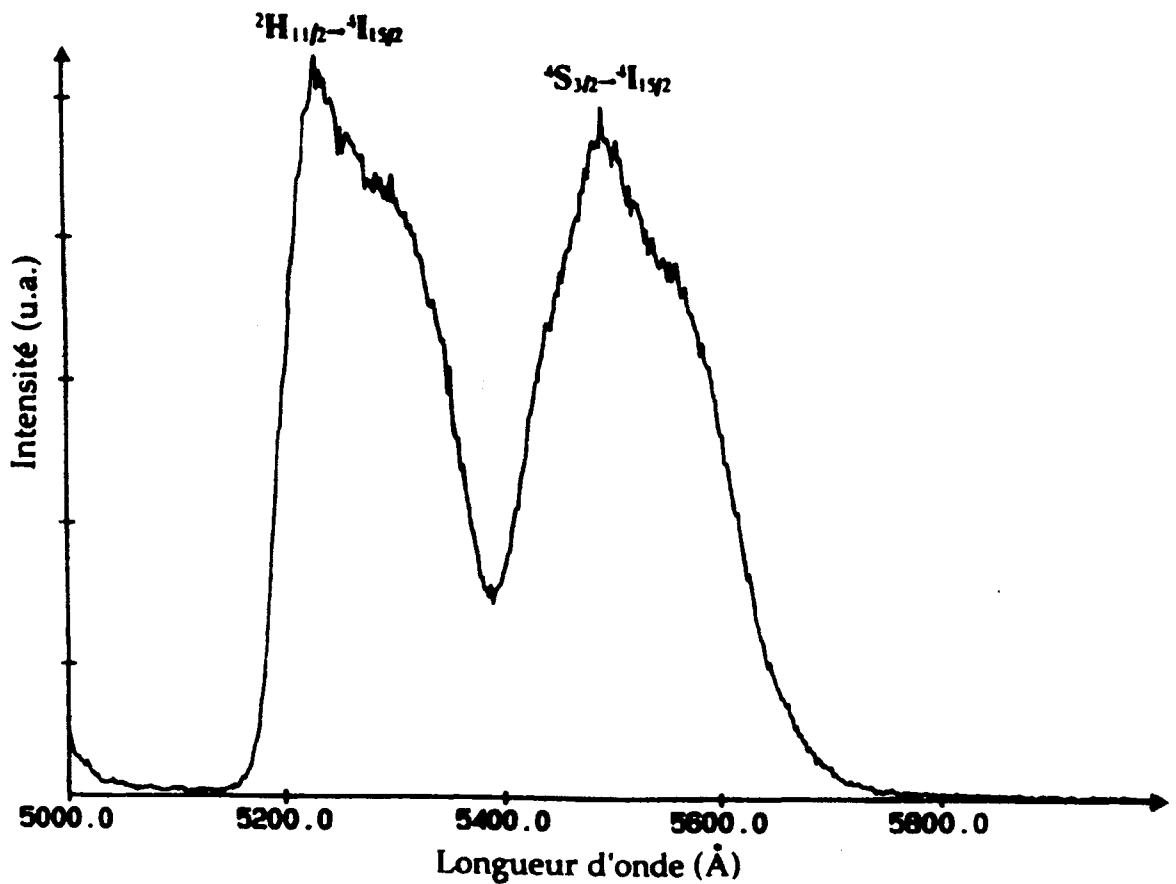
Les deux spectres présentés ci-dessus font apparaître également une légère différence quant aux longueurs d'ondes des pics d'émission. Cet écart trouve son origine dans l'influence du champ cristallin des ions environnant sur les positions des niveaux d'énergie  ${}^4I_{13/2}$  et  ${}^4I_{15/2}$ . Ce déplacement vers les grandes longueurs d'ondes avec l'accroissement de la température de recuit, traduit une augmentation de la force de champ cristallin.

Cette figure nous apprend également que l'amplification sera maximale autour de 1533 nm et nous pouvons amplifier le signal sur une bande large de 30 nm.

### III. 3. Emissions dans le visible

Nous avons également observé les émissions de fluorescence des ions erbium pour les mêmes échantillons, dans le domaine visible. Les résultats sont présentés sur la figure II-I-10. Ces spectres sont caractérisés par la présence de deux bandes d'émission intenses autour de 530 nm et 550 nm et une bande de faible intensité vers 650 nm.

Nous pouvons observer que ces raies larges sont caractéristiques des émissions de l'ion erbium trivalent dans une matrice germanosilicate amorphe. Ces bandes d'émissions ont été attribuées aux transitions radiatives des niveaux d'énergie successivement peuplés vers le niveau fondamental. Le processus est représenté sur la figure II-I-8. Les ions erbium absorbent le rayonnement de pompe ( $\lambda=488$  nm) et se retrouvent alors dans le niveau excité  $^4F_{7/2}$ . Par suite de désexcitations non radiatives rapides, les niveaux  $^2H_{11/2}$ ,  $^4S_{3/2}$ ,  $^4F_{9/2}$  sont peuplés et peuvent se désexciter de manière radiative vers le niveau fondamental  $^4I_{15/2}$ .



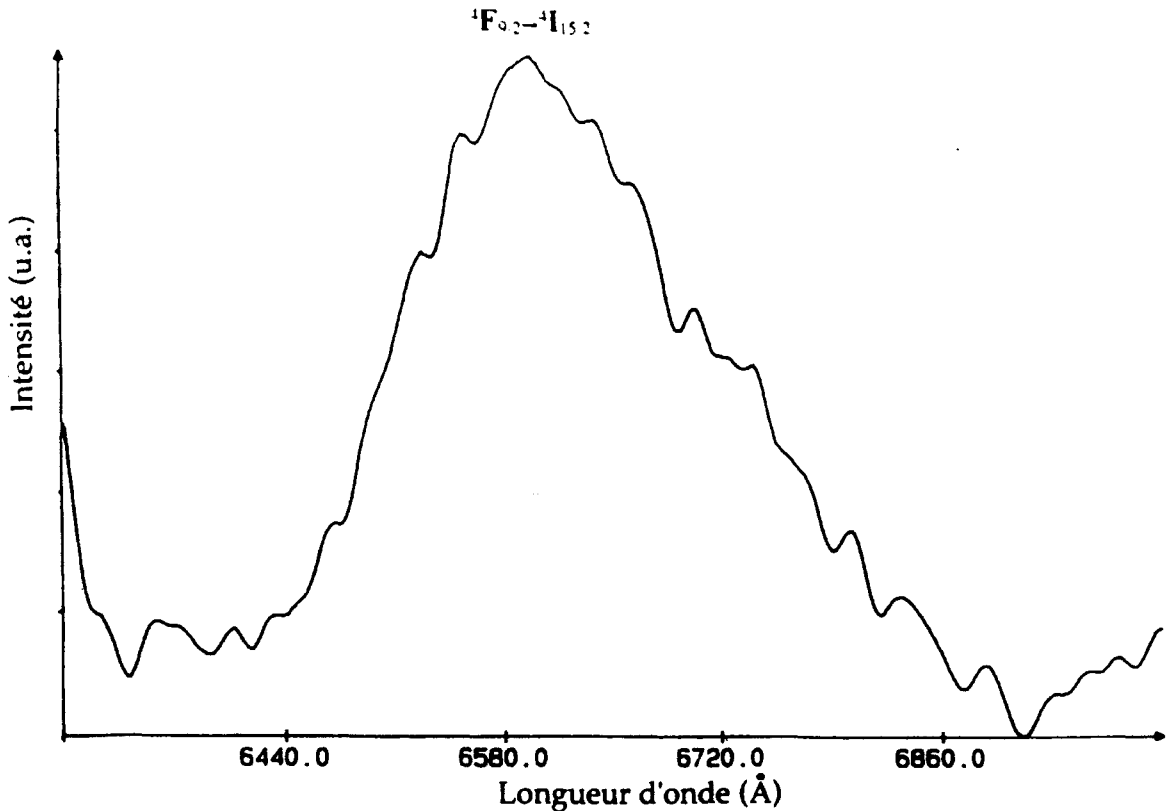


Figure II-I-10 : Spectres d'émission dans le visible des ions erbium dans une matrice germanosilicate, enregistrés à température ambiante.

Les largeurs des bandes d'émission des ions erbium, tant dans le visible que dans l'infrarouge, confortent l'hypothèse selon laquelle la matrice germanosilicate est amorphe. Afin d'étudier l'évolution de la structure de la matrice en fonction de la température de densification, nous avons mené une étude en spectroscopie Raman par ondes guidées.

## IV. Analyse de la structure des films par Spectroscopie Raman

### IV. 1. Principe de la diffusion Raman

Le principe de la diffusion des ondes électromagnétiques par les vibrations d'un matériau a été mis en évidence par C.V. Raman, qui a donné son nom à la méthode de spectroscopie optique permettant d'analyser ces vibrations.

Dans une expérience de diffusion Raman, un faisceau de lumière monochromatique, de fréquence  $\nu_0$ , traverse le milieu diffusant à analyser. Une partie des photons de ce faisceau est diffusée dans toutes les directions de l'espace. Une analyse spectroscopique de la lumière diffusée permet de mettre en évidence deux processus de diffusion.

La majeure partie des photons diffusés ne subit pas de changement de fréquence. C'est le processus élastique encore appelé diffusion Rayleigh. Dans le cas du processus inélastique, une faible partie des photons subit un changement de fréquence. Si l'écart entre  $\nu_0$ , la fréquence des photons incidents, et  $\nu_p$ , celle des photons diffusés, correspond à une énergie de rotation, de vibration ou à une transition entre états électroniques du matériau, on parle de diffusion Raman. La diffusion Raman peut se produire suivant deux processus (figure II-I-11) :

- si  $\nu_p < \nu_0$ , le processus est appelé diffusion Raman Stokes.
- si  $\nu_0 > \nu_p$ , c'est la diffusion Raman anti-Stokes.

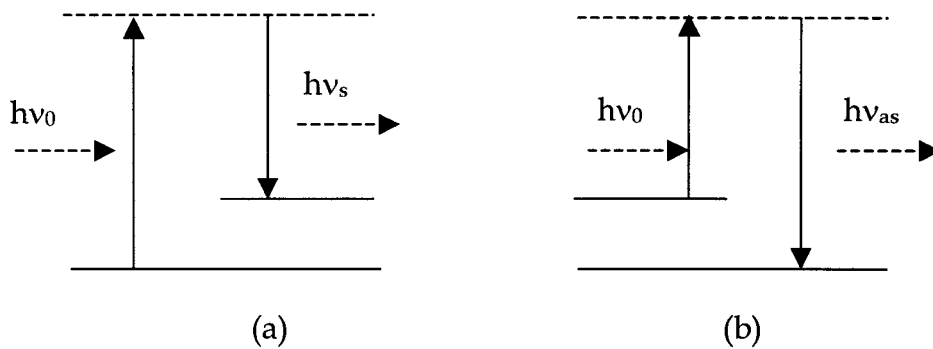


Figure II-I-11 : Processus de diffusion Raman: (a) Stokes, (b) anti-Stokes.

La diffusion de la lumière est liée aux variations locales de la polarisabilité. Dans le cas d'une molécule isolée irradiée par une onde électromagnétique, le moment dipolaire  $\vec{\mu}$  peut s'écrire :

$$\vec{\mu}(\vec{r}, t) = \vec{\mu}_p(\vec{r}) + \vec{\mu}_i(\vec{r}, t) \quad (\text{II-I-6})$$

où  $\vec{\mu}_i$  et  $\vec{\mu}_p$  désignent respectivement le moment dipolaire induit par le champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  de l'onde de pompe, et le moment dipolaire permanent.

Les variations du moment dipolaire étant équivalentes aux fluctuations de la susceptibilité diélectrique  $\chi$ , Komarov et Fisher [15] ont montré que l'intensité de la lumière diffusée dépend de la fonction de corrélation de ces fluctuations. L'intensité Raman est alors définie comme la Transformée de Fourier de la fonction de corrélation.

Dans le cas d'un cristal, la symétrie de translation impose une allure sinusoïdale pour la fonction de corrélation :

$$C(\vec{r}, \Delta\nu_\alpha) = \cos(\vec{q}_\alpha \cdot \vec{r}) \quad (\text{II-I-7})$$

où  $\Delta\nu_\alpha$  représente l'écart avec la fréquence de l'onde incidente et  $q_\alpha$  le vecteur de transfert pour un mode  $\alpha$ .

Sa transformée de Fourier (TF) se résume à une somme de fonctions de Dirac :

$$\text{TF}(C(\vec{r}, \Delta v_\alpha)) = \delta(\bar{q}_\alpha - \bar{q}) + \delta(\bar{q}_\alpha + \bar{q}) \quad (\text{II-I-8})$$

Le premier terme correspond à la diffusion Raman Stokes, le second à la diffusion Raman anti-Stokes. Ces modes sont caractérisés par des raies fines.

Dans le cas des matériaux amorphes, la disparition de l'ordre à grande distance se traduit par une forte localisation de la fonction de corrélation et par une diminution importante de l'étendue des modes de vibrations [16]. La caractérisation de ces modes par un vecteur d'onde unique devient impossible et la TF conduit à des bandes larges et aplaties. Shuker et Gammon [17] ont montré que la forme des bandes de vibrations trouve son origine dans une destruction des modes de sélection provoquée par le désordre spatial. Leurs calculs aboutissent à une expression de l'intensité  $I(\omega)$  directement reliée à la densité d'état de vibration  $g(\omega)$  et au coefficient de couplage entre les modes de vibration et la lumière diffusée à la fréquence  $\omega$ .

$$I(\omega) = \sum g(\omega)C(\omega) \frac{P(\omega)}{\omega} \quad (\text{II-I-9})$$

où  $P(\omega)$  indique le peuplement des niveaux :

$$P(\omega) = n(\omega) + 1 \quad \text{pour la composante Stokes,}$$

$$P(\omega) = n(\omega) \quad \text{pour la composante anti-Stokes,}$$

où  $n(\omega) = \left[ \exp\left(\frac{\hbar\omega}{kT}\right) - 1 \right]^{-1}$  correspond au facteur de population de Bose-Einstein.

## IV. 2. Analyse et interprétation des spectres Raman

L'acquisition des spectres Raman utilise le dispositif expérimental présenté sur la figure II-I-7. La lumière diffusée perpendiculairement à la direction de propagation est analysée par le double monochromateur avec une résolution de  $0,12 \text{ cm}^{-1}$  et un taux de réjection de  $10^{-14}$  à  $20 \text{ cm}^{-1}$ . Nous pouvons ainsi nous approcher à quelques  $\text{cm}^{-1}$  de la raie Rayleigh et étudier les vibrations à basses fréquences.

L'analyse des spectres, a pour objectif d'étudier la structure des films germanosilicates en fonction de la température finale de densification. Le choix de ce paramètre de contrôle est justifié par la relation directe entre les pertes optiques et la structure de la matrice. Les composants que nous voulons réaliser doivent présenter les pertes les plus faibles possibles. Pour respecter cette condition, les guides doivent présenter une structure amorphe afin de limiter les pertes par diffusion.



IV. 2. 1. La matrice vitreuse de silice pure

Afin de permettre une meilleure compréhension de l'attribution des raies dans une matrice germanosilicate, nous présentons tout d'abord les spectres Raman caractéristiques d'une matrice de silice pure. Les spectres présentés sur la figure II-I-12, ont été enregistrés à partir : d'une lame de silice pure (Suprasil 1) (a) et d'un xérogel de  $\text{SiO}_2$  élaboré par voie sol-gel et recuit à  $940^\circ\text{C}$  (b). Ces spectres présentent des caractéristiques similaires et peuvent être décomposés en plusieurs régions.

Dans la région des basses fréquences, entre  $0$  et  $200\text{ cm}^{-1}$ , nous pouvons observer une bande asymétrique située vers  $50\text{ cm}^{-1}$ . Cette bande caractéristique des systèmes amorphes est appelée "pic de Boson" [18]. Elle rend compte du désordre de la matrice et du mouvement des molécules qui la constituent. Duval *et al.* [19] ont établi un modèle dans lequel la matrice est assimilée à un système discontinu composé d'entités cohésives ayant des dimensions de l'ordre du nanomètre. L'apparition de cette bande à basse fréquence est liée aux modes de vibration de ces entités.

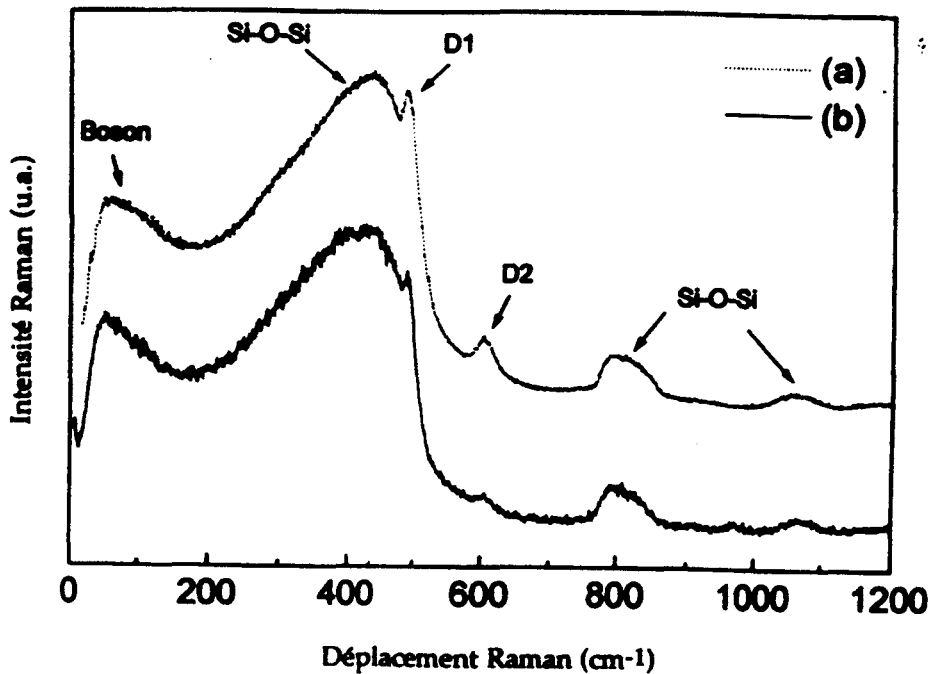


Figure II-I-12 : Spectres Raman à température ambiante : (a) d'un verre Suprasil, (b) d'un verre de silice élaboré par voie sol-gel.

La seconde zone montre une bande intense, avec un maximum vers  $430\text{ cm}^{-1}$ . Cette bande large rend compte des vibrations des atomes d'oxygène pontants suivant la bissectrice de l'angle Si-O-Si [20].

Les deux pics fins, situés respectivement à  $490\text{ cm}^{-1}$  et à  $606\text{ cm}^{-1}$  correspondent à des bandes de défauts appelées  $D_1$  et  $D_2$ . Le défaut  $D_1$  est attribué à un mode respiratoire des atomes d'oxygène dans les anneaux plans formés par quatre tétraèdres  $\text{Si-O}_{4/2}$ , tandis que le défaut  $D_2$  est associé à une vibration similaire mais pour des anneaux formés de trois tétraèdres [20-24].

La dernière zone caractéristique se situe autour de  $800\text{ cm}^{-1}$ . Cette bande est attribuée à une vibration complexe du motif  $\text{SiO}_2$  [25,26].

### IV. 2. 2. La matrice germanosilicate

Les résultats que nous présentons dans ce paragraphe concernent des guides germanosilicates non dopés. La composition de la matrice est telle que le rapport molaire  $\text{Si/Ge}$  est égal à 1. Ces guides sont composés de 36 couches, déposées par trempage en suivant le protocole décrit dans le paragraphe I. L'épaisseur des films est d'environ 370 nm et l'indice de réfraction à 632,8 nm vaut 1,530.

La figure II-I-13 présente les spectres de la diffusion Raman Stokes d'un guide recuit à  $500\text{ °C}$  (a) puis à  $700\text{ °C}$  (b), et finalement à  $900\text{ °C}$  (c). Ces spectres ont été volontairement décalés les uns par rapport aux autres pour une meilleure lisibilité.

Ces trois spectres sont proches des spectres de la silice pure (figure II-I-12). Leur allure générale nous indique que la matrice étudiée est amorphe. En effet, nous pouvons observer à basse fréquence la présence du "pic de boson" autour de  $40\text{ cm}^{-1}$ , ce qui est une caractéristique de l'état vitreux. Cette position en fréquence du pic de boson semble indiquer que les entités cohésives, dans un verre germanosilicate obtenu par voie sol-gel sont légèrement plus larges que dans un verre de silice obtenu par fusion.

La bande intense observée à  $425\text{ cm}^{-1}$  est attribuée aux vibrations des oxygènes pontants à la fois dans le motif T-O-T (T = Si ou Ge) suivant la bissectrice de l'angle T-O-T [27,28].

La différence la plus notable est la disparition des défauts  $D_1$  (à  $485\text{ cm}^{-1}$ ) et  $D_2$  (à  $606\text{ cm}^{-1}$ ) de la silice et l'apparition d'un épaulement à  $570\text{ cm}^{-1}$ . Cet épaulement est attribué à un mode de vibration du motif Ge-O-Ge [27]. D'autres bandes autour de 650, 760 et  $3400\text{ cm}^{-1}$  sont également observables, ainsi qu'un pic fin à  $2900\text{ cm}^{-1}$ . La bande à  $760\text{ cm}^{-1}$  correspond à un mode de vibration des groupements Ge-OH [29]. La composante à  $3400\text{ cm}^{-1}$  est attribuée au mode de vibration des groupes hydroxyles présents dans la matrice, soit sous forme d'eau adsorbée, soit sous forme de groupements OH faiblement liés par les atomes d'hydrogène [30-32]. En ce qui concerne les bandes à  $650\text{ cm}^{-1}$  et à  $2900\text{ cm}^{-1}$ , elles sont attribuées aux groupements organiques résiduels, qui disparaissent pour des températures de recuit supérieures à  $500\text{ °C}$  (figure II-I-13 b, c).

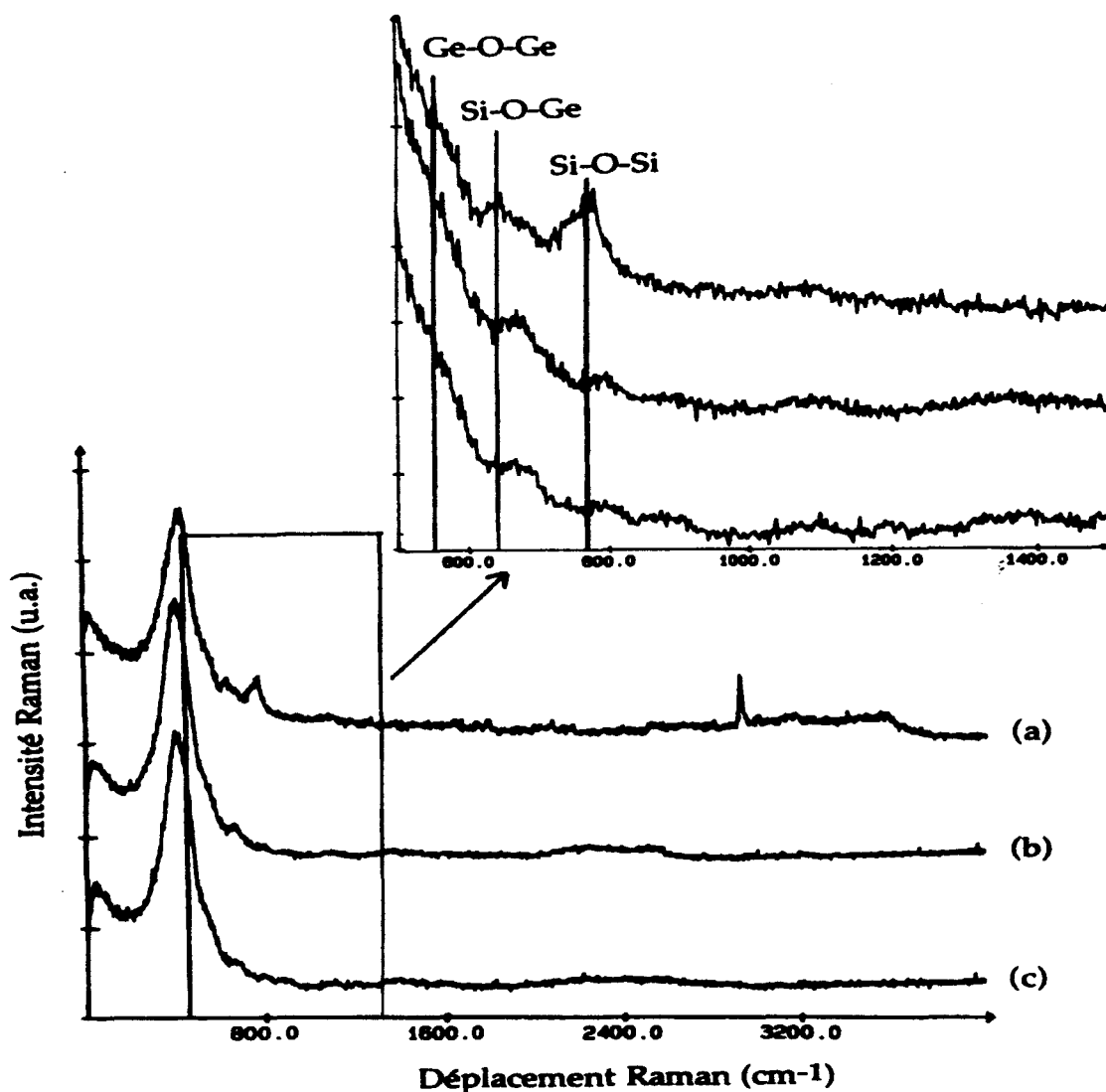


Figure II-I-13 : Spectres Raman à température ambiante de films germanosilicate (Si/Ge=1) élaborés par voie sol-gel et recuits à : (a) 500 °C, (b) 700 °C, (c) 900°C.

Lorsque la température de recuit atteint 700 °C, les pics liés à la présence des groupements OH disparaissent et d'autres bandes, qui étaient initialement masquées, apparaissent autour de 680, 790, 880, et 1090  $\text{cm}^{-1}$ . La bande à 680  $\text{cm}^{-1}$  est associée à une vibration des atomes d'oxygène dans le système mixte Si-O-Ge [26,33,34] et la vibration à 790  $\text{cm}^{-1}$  est attribuée à la structure du réseau  $\text{SiO}_2$  [27]. Les bandes à 880 et à 1090  $\text{cm}^{-1}$  sont attribuées aux modes de vibration du motif Si-O-Si et Ge-O-Ge, respectivement [35]. L'enregistrement des spectres en polarisation VH (Fig.II-I-13bis) permet de mettre en évidence de manière plus claire l'apparition des bandes attribuées aux motifs contenant du germanium notamment autour de 570  $\text{cm}^{-1}$  et 680  $\text{cm}^{-1}$ . Le spectre à 900 °C est identique à celui enregistré sur le film recuit à 700 °C. Cette observation semble indiquer que le film présente essentiellement une structure amorphe après un traitement thermique à 900 °C.

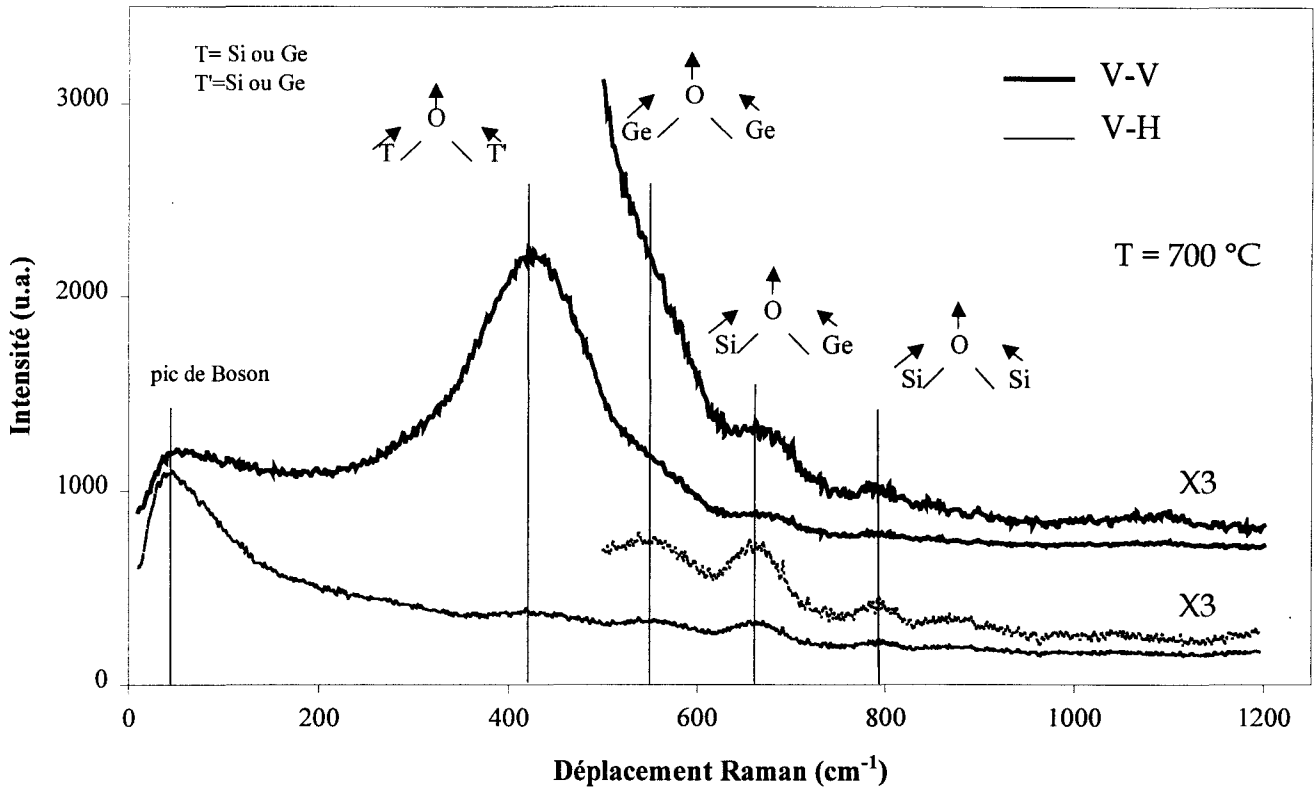


Figure II-I-13.bis : Spectres Raman à température ambiante de films germanosilicate (Si/Ge=1) élaborés par voie sol-gel et recuits à 700 °C en polarisation VV et VH.

Finalement, l'étude par spectroscopie Raman de la structure des films germanosilicates élaborés par voie sol-gel, a montré que nos matériaux ont des structures similaires aux verres massifs  $\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$  préparés par d'autres techniques d'élaboration [35].

### V. Durée de vie de fluorescence du niveau ${}^4I_{13/2}$

L'amplification optique est basée sur le principe de l'inversion de population. Dans le cas des ions erbium, le niveau à peupler est le niveau métastable  ${}^4I_{13/2}$ . Comme nous l'avons présenté dans le chapitre I-III, la promotion des ions erbium vers un troisième niveau, d'énergie  $E_3$  supérieure à celle du niveau  ${}^4I_{13/2}$ , permet d'obtenir l'inversion de population. Cependant, afin de réaliser l'amplification optique, une seconde condition doit être satisfaite. En effet, lorsque les ions sont dans le niveau excité métastable  ${}^4I_{13/2}$ , ils peuvent retrouver le niveau fondamental par divers processus : émission stimulée, émission spontanée, désexcitation multiphonon, autoextinction. Ainsi, pour obtenir un gain d'amplification maximum, il faut favoriser la désexcitation par émission stimulée et limiter tous les autres processus.

Afin de caractériser chaque processus "parasite", nous avons mené une étude de l'influence de divers paramètres sur la durée de vie de fluorescence des ions erbium lorsqu'ils sont incorporés dans la matrice vitreuse germanosilicate.

### V. 1. Principe de mesure de la durée de vie

Le dispositif expérimental, utilisé pour mesurer la durée des déclin de fluorescence autour de  $1,54 \mu\text{m}$ , est présenté sur la figure II-I-14.

Les ions erbium sont excités par absorption de la pompe à  $488 \text{ nm}$ , suivie de désexcitations non radiatives rapides vers le niveau  $^4I_{13/2}$ . Le faisceau de pompe passe au travers d'un hacheur qui permet d'obtenir des créneaux lumineux avec une période bien supérieure à la durée de vie à mesurer. Par ailleurs les temps de montée et de descente d'un créneau sont de l'ordre de  $50 \mu\text{s}$ . La fluorescence est détectée perpendiculairement à la direction de propagation pour éviter les effets de réabsorption à  $1,54 \mu\text{m}$ . Le signal de fluorescence est focalisé sur un détecteur au germanium, North Coast 403 L, refroidi à l'azote liquide. Ce détecteur possède un temps de réponse d'environ  $1 \mu\text{s}$ . Le signal issu du détecteur est envoyé vers un amplificateur bas bruit, Princeton Applied Research CR-4, et analysé par un oscilloscope numérique Lecroy 9400 dual  $125 \text{ MHz}$ , dont la vitesse de balayage est synchronisée avec la fréquence du hacheur.

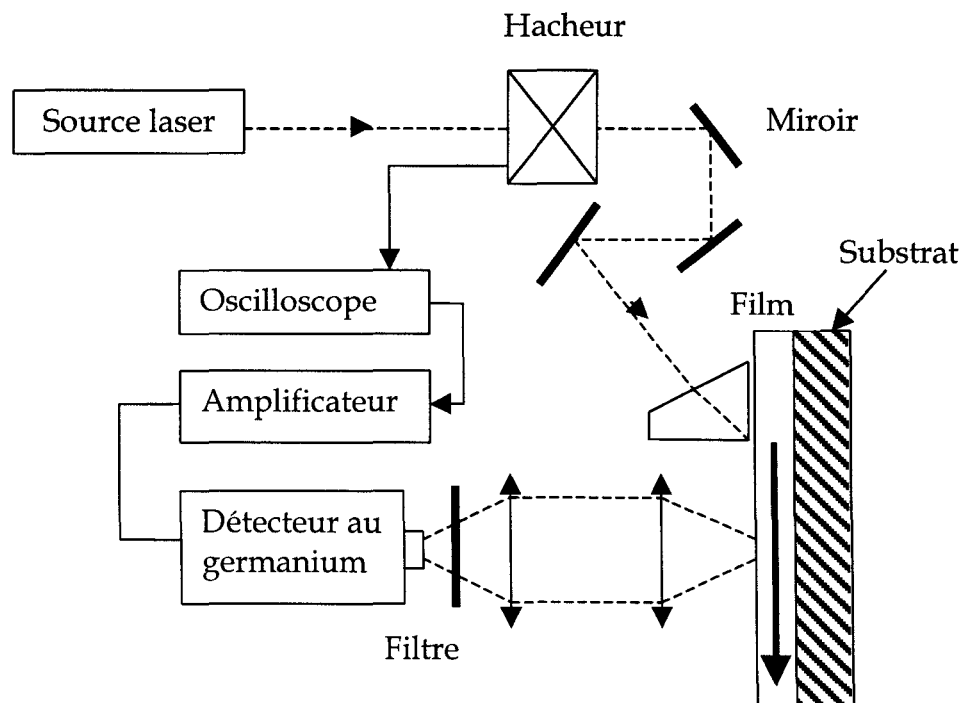


Figure II-I-14 : Montage expérimental pour la mesure des déclin de fluorescence.

L'intensité de fluorescence enregistrée montre une décroissance exponentielle simple. La durée de vie est alors obtenue en ajustant la courbe expérimentale par une exponentielle pure.

### V. 2. Optimisation de la concentration en ions erbium

Les guides d'ondes planaires présentent, contrairement aux fibres optiques, de faibles longueurs d'interaction. Pour compenser cet inconvénient, les guides planaires peuvent supporter des concentrations en ions de terres rares beaucoup plus élevées. Cependant, comme nous l'avons décrit auparavant (Chap.I-III), lorsque la concentration est trop élevée, les ions de terres rares ont tendance à former des agrégats. Cette proximité leur permet alors de dissiper de l'énergie par des mécanismes de transfert d'énergie tels que ceux décrits dans le chapitre I-III. Ces processus de transfert d'énergie, entre les ions les plus proches, diminuent le rendement de fluorescence et affectent de manière importante la durée de vie [36-39].

Afin de déterminer la concentration optimale d'ions que nous pouvons incorporer dans la matrice germanosilicate sans générer de processus « parasites », nous avons mené une étude sur des poudres germanosilicates dopées à diverses concentrations en erbium. Dans un premier temps, nous avons étudié des poudres dopées à 0,25, 0,5 et 1 at.%, obtenues à partir d'un sol classique que nous laissons se transformer en gel par un chauffage léger à 100 °C. Lorsque le gel est formé, nous le broyons pour obtenir une poudre.

Dans le cas des poudres, la mesure des durées de vie de fluorescence consiste à focaliser le faisceau de pompe sur l'échantillon et à analyser la fluorescence à 1,54  $\mu\text{m}$  diffusée par celui-ci, de la même manière que pour les guides. Les mesures, que nous avons réalisées sur ces poudres ont montré que les échantillons dopés à 0,25 at.% présentent les plus longues durées de vie, à savoir 4,8 ms pour une température de recuit de 900 °C.

A partir de ces résultats, nous avons élaboré des guides d'ondes germanosilicates (Si/Ge=1) dopés 0,25 at.% en erbium. Les durées de vie mesurées sur ces guides d'onde sont légèrement inférieures à celles que nous avons obtenues dans les poudres (fig. II-I-15). Pour des guides recuits à 700 °C, 800 °C, et 900°C, les valeurs respectives sont : 3,36 ms, 3,5 ms et 2,8 ms. En dessous de 800 °C, la durée de vie croît lorsque l'on augmente la température de recuit, comme dans le cas des poudres. Au-delà de 800 °C, le comportement est inversé. Ce phénomène peut s'expliquer par l'évolution de la matrice vers une structure cristalline à partir de 800 °C. Cette hypothèse est confortée par une transition de la largeur de la bande de fluorescence autour de 1530 nm : celle passe de 35 nm à 27 nm entre 800 °C et 900 °C.

Cependant en comparaison de résultats obtenus à partir d'autres matrices, élaborées par d'autres techniques, les valeurs que nous avons mesurées restent faibles. Afin de nous assurer que nous n'avons pas dopé nos échantillons au-delà de la concentration d'autoextinction, liée à la formation d'agrégats d'ions erbium, nous avons

élaboré des guides dopés à 0,125 at.%. Les durées de vie alors mesurées sont très peu différentes ( $\tau=3,5$  ms en moyenne) des valeurs obtenues pour des guides dopés à 0,25 at.%. Ce résultat nous amène à conclure que le phénomène d'autoextinction lié à la concentration n'est pas responsable des faibles durées de vie que nous avons mesurées.

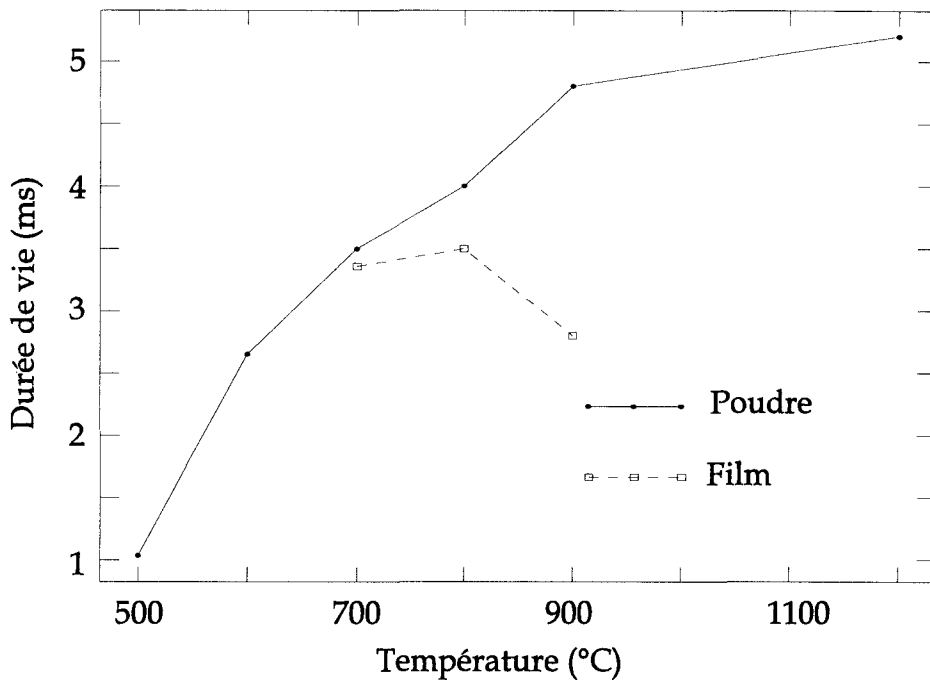


Figure II-I-15 : Durée de vie de fluorescence du niveau  ${}^4I_{13/2}$  : dans un guide germanosilicate dopé à 0,25 at.%  $Er^{3+}$ , dans une poudre germanosilicate dopée à 0,25 at.%  $Er^{3+}$  en fonction de la température de recuit.

### V. 3. Influence des groupements hydroxyles OH

Le second processus potentiellement responsable de la diminution de la durée de vie est celui des désexcitations non radiatives. Cependant, les phonons de la matrice ne sont pas responsables de cet effet car leur énergie est  $1100\text{ cm}^{-1}$  dans le cas d'une matrice vitreuse silicate et  $950\text{ cm}^{-1}$  dans le cas d'une matrice germanate ( $GeO_2$ ) [40]. Ces phonons présentent des énergies trop faibles pour intervenir dans le processus de désexcitation non radiative entre le niveau métastable  ${}^4I_{13/2}$  et le niveau fondamental  ${}^4I_{15/2}$ . Cependant, le procédé sol-gel, de par son principe chimique (notamment l'hydrolyse), autorise la présence de groupements hydroxyles OH. Ces derniers existent soit sous forme d'eau adsorbée, soit sous forme de groupements SiOH et GeOH. Leur énergie de phonons élevée, de l'ordre de  $3600\text{ cm}^{-1}$ , leur permet d'intervenir de manière efficace dans les processus de désexcitations non radiatives même s'ils sont en faible quantité dans la matrice.

### V. 3. 1. Acquisition des spectres FTIR

Nous avons pu mettre en évidence la présence des groupements hydroxyles et avons étudié l'évolution de leur concentration avec la température de recuit, au moyen de la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (F.T.I.R.) qui est une technique plus sensible que la spectroscopie Raman.

Dans un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier, une lumière blanche traverse l'échantillon à analyser. La lumière transmise est traitée par un interféromètre de Michelson, puis envoyée vers le détecteur. L'avantage de la technique interférométrique réside dans la résolution élevée ( $1 \text{ cm}^{-1}$ ) qui peut être atteinte.

Nous avons enregistré les spectres FTIR à travers des guides d'ondes (Si/Ge=1) dopés à 0,25 at.% en erbium. Ces enregistrements ont été obtenus à l'aide d'un spectromètre BOMEM MB 100, au Laboratoire de Spectroscopie Infrarouge et Raman (LASIR) de Lille. La gamme spectrale couverte par ce spectromètre s'étend de  $5000$  à  $400 \text{ cm}^{-1}$ . L'asservissement et l'acquisition sont assurés par un P.C. .

### V. 3. 2. Analyse des spectres

La figure II-I-16 présente les spectres d'absorption I.R. dans un guide germanosilicate d'épaisseur égale à  $0,36 \mu\text{m}$  déposé sur un substrat de silice (transparent dans la gamme de fréquences étudiées) et recuit à  $500$ ,  $700$  et  $900 \text{ }^\circ\text{C}$ .

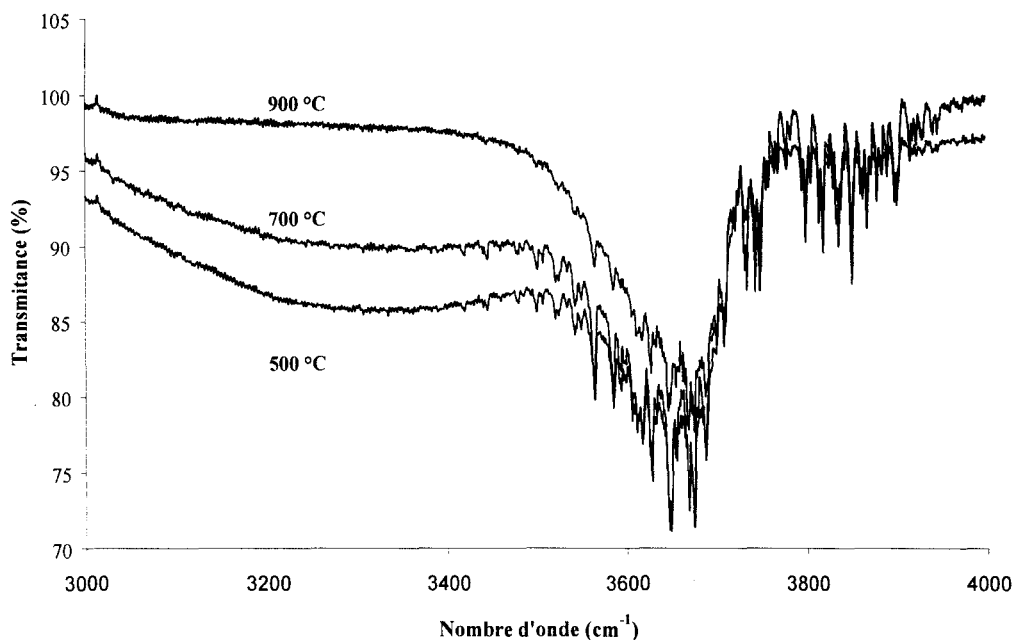


Figure II-I-16: Spectres d'absorption infrarouge FTIR, enregistrés à température ambiante, dans des guides Si/Ge=1 dopés 0,25 at.%  $\text{Er}^{3+}$ , recuits à  $500$ ,  $700$  et  $900^\circ\text{C}$ .



A  $T = 500\text{ °C}$ , nous pouvons observer deux bandes larges d'absorption, dont les maxima sont situés vers  $3400\text{ cm}^{-1}$  et  $3650\text{ cm}^{-1}$ . La bande à  $3400\text{ cm}^{-1}$  peut être attribuée à l'eau adsorbée et/ou aux groupements hydroxyles faiblement liés [29-31]. Son intensité diminue avec l'augmentation de la température de recuit et disparaît à  $900\text{ °C}$ . La bande à  $3650\text{ cm}^{-1}$ , quant à elle, est liée à la contribution des modes de vibrations des motifs SiOH ( $3700$  et  $3650\text{ cm}^{-1}$ ) et de ceux du motif GeOH ( $3600\text{ cm}^{-1}$ ) [28]. L'intensité de cette bande diminue avec l'augmentation de la température de recuit, mais elle est toujours présente même à  $900\text{ °C}$ . Ces groupements SiOH et GeOH sont piégés dans la matrice, et nous expliquons par leur présence les faibles durées de vie mesurées. Cette idée est confortée par la constatation que dans les poudres, un recuit à  $1200\text{ °C}$  permet d'augmenter la durée de vie jusqu'à une valeur de  $5,2\text{ ms}$ .

## VI. Conclusion

Nous avons montré dans cette étude, que la méthode sol-gel permet l'élaboration de guides d'ondes optiques germanosilicates dopés par des ions erbium. Grâce à la structure amorphe de la matrice, ces guides présentent de bonnes qualités optiques et notamment de faibles pertes (de l'ordre de  $0,5\text{ dB/cm}$  à  $632,8\text{ nm}$ ).

La spectroscopie Raman nous a permis de suivre l'évolution structurale de la matrice germanosilicate en fonction de la température de recuit. Ainsi, nous avons observé que les films germanosilicates traités jusqu'à  $900\text{ °C}$  présentent une structure amorphe et nous avons mis en évidence la présence de motifs Si-O-Ge. L'observation de ces liaisons indique que la matrice germanosilicate obtenue par voie sol-gel est homogène.

La fluorescence des ions erbium dans cette matrice a été caractérisée à la fois dans le domaine spectral visible et infrarouge. Dans la région spectrale proche de  $1530\text{ nm}$ , nous avons montré l'influence de la température de recuit sur la largeur de la bande d'émission et mesuré une largeur à mi-hauteur de  $26\text{ nm}$  à  $900\text{ °C}$ .

En vue de l'utilisation de ces guides actifs comme amplificateurs optiques autour de  $1500\text{ nm}$ , le déclin de fluorescence du niveau  $^4I_{13/2}$  des ions erbium a été étudié. Nous avons ainsi pu déterminer la concentration optimale d'ions dans la matrice ( $0,25\text{ at.}\%$ ), et avons montré l'existence d'un processus de désexcitation non radiative, lié à la présence de groupements OH<sup>-</sup>. Il apparaît qu'un traitement thermique à haute température permet de réduire cet effet. Malheureusement, nous n'avons pas réussi à éliminer complètement ces groupements OH<sup>-</sup> et leur présence contribue à diminuer la durée de vie : celle-ci ne dépasse pas  $3,5\text{ ms}$  dans nos guides.

Une technique qui permettrait l'élimination des groupements hydroxyles consisterait en un traitement thermique à haute température suivi d'un traitement sous flux de gaz chlorés ou fluorés. Par ailleurs, nous verrons dans le chapitre suivant que la solubilité des ions de terres rares est nettement améliorée dans une matrice contenant de l'aluminium.

## Bibliographie

- [1] D.G. Chen, PhD Dissertation, Univ. Florida, Gainesville, Fl., (1991).
- [2] D.C. Bradley, L.J. Kay, W. Wardlaw, J. Chem. Soc., (1956), 4916.
- [3] D.G. Chen, PhD Dissertation, Univ. Florida, Gainesville, Fl., (1991), 124.
- [4] M. Olivier, I.C. Peuzin, J.S. Danel, D. Challeton, Appl. Phys. Lett., **38**, (1981), 79.
- [5] M. Haruna, Y. Sega, H. Nishihara, Electron. Lett., **28**, (1992), 1612.
- [6] A. Boudrioua, J.C. Loulergue, Opt. Commun., **137**, (1997), 37.
- [7] Y. Okamura, S. Sato, S. Yamamoto, Appl. Opt., **24**, (1985), 57.
- [8] B.R. Judd, Phys. Rev., **127**, (1962), 750.
- [9] R.P. Tuminelli, B.C. McCollum, E. Snitzer, J. Lightwave. Techn., **8**, (1990), 1680.
- [10] W.J. Miniscalco, R.S. Quimby, Opt. Lett., **16**, (1991), 258.
- [11] F. Sanchez, P. Le Boudec, P.L. François, G. Stephan, Phys. Rev. A, **48**, (1993), 2220.
- [12] Y. Zhou, Y.L. Lam, S.S. Wang, Appl. Phys. Lett., **71**, (1997), 587.
- [13] M.P. Hehlen, N.G. Cockroft, T.R. Gosnell, A.J. Bruce, Phys. Rev. A, **56**, (1997), 9302.
- [14] B.J. Ainslie, J. Lightwave Techn., **9**, (1991), 220.
- [15] L.I. Komarov, I.Z. Fisher, J.E.T.P., **16**, (1963), 1358.
- [16] A. Bahtat, Thèse de Doctorat, Univ. Lyon, France, (1996), 73.
- [17] R. Shuker, R.W. Gammon, Phys. Rev. Lett., **25**, (1970), 222.
- [18] A.J. Martin, N. Brenig, Phys. Stat. Solid., **B64**, (1974), 163.
- [19] E. Duval, A. Boukenter, T. Achibat, J. Phys. : Cond. Matt., **2**, (1990), 10227.
- [20] F.L. Galeener, Phys. Rev. B, **19**, (1979), 4292.
- [21] F.L. Galeener, Solid State Commun., **44**, (1982), 1037.
- [22] F.L. Galeener, J.C. Mikkelsen, Jr., Phys. Rev. B, **23**, (1981), 5527.
- [23] R.A. Barrio, F.L. Galeener, E. Martinez, R.J. Elliot, Phys. Rev. B, **48**, (1993), 15672.
- [24] R.J. Bell, Rep. Prog. Phys., **25**, (1972), 1315.
- [25] P. Dean, Rev. Mod. Phys., **44**, (1972), 127.
- [26] F.L. Galeener, A.E. Geissberger, G.W. Ogar, Jr., R.E. Lochman, Phys. Rev. B, **28**, (1983), 4768.
- [27] F.L. Galeener, A.E. Geissberger, Phys. Rev. B, **27**, (1983), 6199.
- [28] F.L. Galeener, R.H. Geils, *The Structure of Non-Crystalline Materials*, Ed. P.H. Gaskell, (Taylor and Francis, London), (1997), 223.
- [29] Y. Kanno, J. Nishino, J. Mat. Sci. Lett., **12**, (1993), 110.
- [30] S. Wallace, J.K. West, L.L. Hench, J. Non-Cryst. Solids, **152**, (1993), 101.
- [31] A. Bertoluzza, C. Fagnano, M.A. Morelli, V. Gottardi, M. Guglielmi, J. Non-Cryst. Solids, **48**, (1982), 117.
- [32] N.F. Borelli, Phys. Chem. Glass, **10**, (1969), 43.
- [33] X. Nian, X. Zhisian, T. Decheng, J. Phys.: Cond. Matt., **1**, (1989), 6343.
- [34] S.K. Sharma, D.W. Matson, J.A. Philipotts, T.L. Roush, J. Non-Cryst. Solids, **68**, (1984), 99.
- [35] M.D. Shinn, W.A. Sibley, M.G. Drexhage, R.N. Brown, Phys. Rev. B, **27**, (1983), 6635.
- [36] W.J. Miniscalco, *Rare earth doped lasers and amplifiers*, Ed. M.J.F Digonnet, Marcel Dekker, New-York, (1994), 19.
- [37] E. Maurice, G. Monnom, B. Dussardier, D.B. Ostrowsky, J. Opt. Soc. Am. B, **13**, (1996), 693.

- [38] A. Bahtat, M. Bouazaoui, M. Bahtat, C. Garapon, B. Jacquier, J. Mugnier, *J. Non-Cryst. Solids*, **202**, (1996), 16.
- [39] Y. Kurokawa, T. Ishizaka, T. Ikoma, S. Tero-Kubota, **287**, (1998), 737.
- [40] S. Bruynooge, Thèse de Doctorat, Univ. Grenoble, (1998).





### Chapitre II-II

#### Les guides d'ondes planaires aluminosilicates

L'étude que nous avons menée sur les guides d'ondes planaires germanosilicates, a permis de valider notre technique d'élaboration de films minces dopés. Elle nous a également conduit à mieux cerner les avantages et les limites de la méthode sol-gel [1]. En effet, nous avons montré que la présence des groupements hydroxyles et la formation d'agrégats d'ions erbium, à l'intérieur de la matrice germanosilicate, sont responsables de la faiblesse des valeurs mesurées pour la durée de vie du niveau métastable  $^4I_{13/2}$  de l'ion  $Er^{3+}$ .

Pour s'affranchir des problèmes mentionnés ci-dessus, nous avons décidé de changer les constituants de la matrice vitreuse. En effet, de nombreux auteurs [2-10] ont montré que l'introduction d'éléments, tels que l'aluminium ou le phosphore, dans une matrice silicate conduit à une meilleure dispersion des ions de terres rares. A cette fin, nous avons choisi d'élaborer des guides d'ondes à partir d'une matrice aluminosilicate et de les étudier.

Dans ce chapitre, nous traiterons tout d'abord de la préparation des sols aluminosilicates utilisés pour l'élaboration des guides d'ondes. Nous présenterons ensuite les caractéristiques optiques de ces films. Une étude détaillée de l'évolution structurale de la matrice aluminosilicate en fonction de la température de recuit sera présentée dans la seconde partie. Enfin, nous analyserons les émissions des ions erbium dans le visible et dans l'infrarouge, en portant une attention particulière à l'optimisation de la durée de vie du niveau métastable.

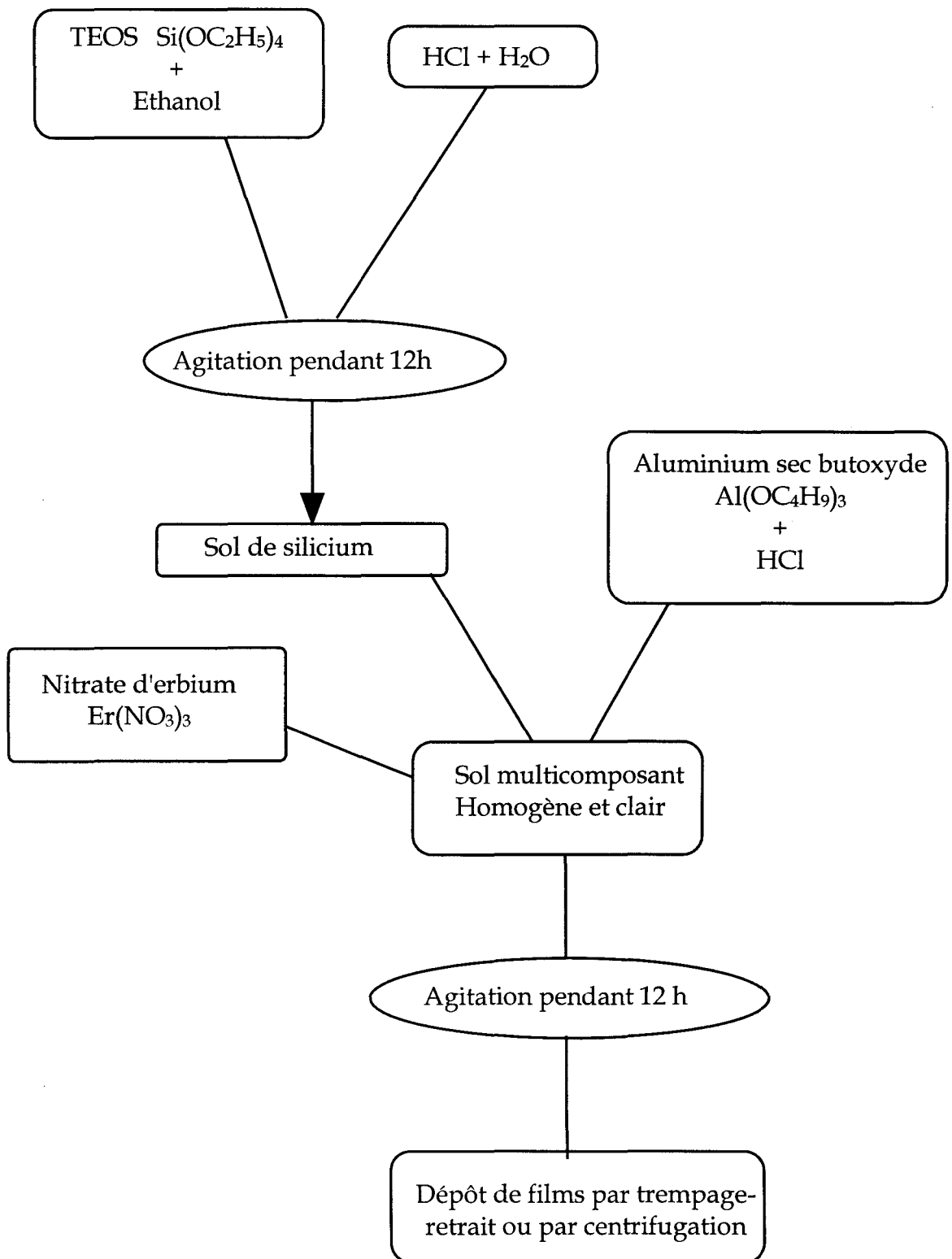


Figure II-II-1 : Elaboration des films aluminosilicates par voie sol-gel.

### I. Elaboration des guides d'ondes planaires aluminosilicates



#### I. 1. Préparation du sol

Les matrices aluminosilicates élaborées par voie sol-gel ont fait l'objet de nombreux travaux. Trois principales techniques de préparation des sols ont été développées. Elles se distinguent essentiellement par le type de précurseur d'aluminium employé : celui-ci peut être choisi parmi le di-s-butoxyaluminoxytriéthoxysilane  $[(Bu^sO)_2Al-O-Si(OEt)_3]$  [11-12], l'aluminium sec-butoxyde  $[Al-(OC_4H_9^{sec})_3]$  [12-18] ou le nitrate d'aluminium [19-21]. Dans notre cas, nous avons choisi l'aluminium sec-butoxyde.

La procédure de préparation du sol aluminosilicate est similaire à celle employée pour élaborer les sols germanosilicates. Dans un premier temps, nous préparons le sol de silicium, à partir de l'alkoxyde de silicium (TEOS) dilué dans l'éthanol et partiellement hydrolysé avec une mole d'eau par mole de silicium à un pH voisin de 2. Les réactions d'hydrolyse se déroulent pendant une période de douze heures après laquelle on incorpore l'alkoxyde d'aluminium. Une quantité d'acide chlorhydrique est ensuite ajoutée pour obtenir une solution limpide et claire. Le dopage par les ions erbium est réalisé en fin de préparation, par dilution d'un sel de nitrate d'erbium (figure II-II-1). Les sols sont dopés à différentes concentrations : 0,25, 0,5 et 1 at.%. Le sol obtenu est stable pendant plusieurs mois lorsqu'il est maintenu à l'abri de l'humidité.

#### I. 2. Caractéristiques des guides d'ondes $Al_2O_3 - SiO_2$

Les matrices élaborées à partir du sol décrit ci-dessus, présentent une composition deux fois plus riche en aluminium qu'en silicium (rapport molaire  $Al/Si=2$ ). Ce rapport a été choisi pour permettre la préparation de films aluminosilicates avec un indice de réfraction élevé. Ainsi, des films ayant des épaisseurs voisines de 1  $\mu m$  permettraient de propager la lumière avec un confinement satisfaisant.

Les guides sont constitués de plusieurs couches déposées sur des substrats de silice pure ou de silice sur silicium, soit par la technique de trempage-retrait (dipping) avec une vitesse de trempage et de retrait égale à 40 mm/min, soit par la technique de centrifugation (spinning). Les films déposés par trempage et recuits à 900 °C présentent un indice de réfraction de 1,55 à 632,8 nm, et l'épaisseur de chaque couche vaut environ 40 nm. Dans le cas des guides élaborés par centrifugation, l'indice est également de 1,55 et chaque couche déposée a une épaisseur moyenne de 100 nm. Ces valeurs ont été obtenues après optimisation des paramètres tels que la vitesse de rotation (2500 tr./min), l'accélération (2000 tr./min<sup>2</sup>), et la durée de rotation à vitesse maximale (5 sec).

Pour les deux techniques de dépôt, les traitements thermiques ont été optimisés afin d'obtenir des films exempts de craquelures. Les couches sont recuites à la température de 650 °C pendant 2 minutes sous flux d'oxygène entre chaque dépôt. De la même manière que pour la matrice germanosilicate, nous avons été amenés à préparer un grand nombre d'échantillons afin d'optimiser les paramètres d'élaboration. Ce travail a consisté en l'étude



structurale de la matrice et en l'analyse de sa concentration en groupement hydroxyles résiduels. Nous avons ainsi déterminé une température de densification optimale de **900 °C** et une rampe de **3 °C/min** assortie d'un pallier d'une heure à la température finale. Nous avons également étudié l'influence, sur la durée de vie, du nombre de cycles de dépôts avant le recuit final à 900 °C. Une étude systématique a montré que la durée de vie est maximale lorsque le nombre de couches déposées avant le traitement à 900°C ne dépasse pas 5.

Ainsi il a été possible de réaliser des guides d'ondes présentant de bonnes qualités optiques et exempts de craquelures. Leur épaisseur varie entre **0,905** et **2 μm**. Les pertes de propagation ont été mesurées sur des guides dopés 0,5 at.% en erbium élaborés en atmosphère "ouverte" (**~ 1 dB/cm**) ou élaborés en salle blanche (entre **0,2** et **0,5 dB/cm**) (figure II-II-2). Dans le cas des guides dopés 1 at.% en erbium, les pertes sont plus élevées (**>2 dB/cm<sup>-1</sup>**).

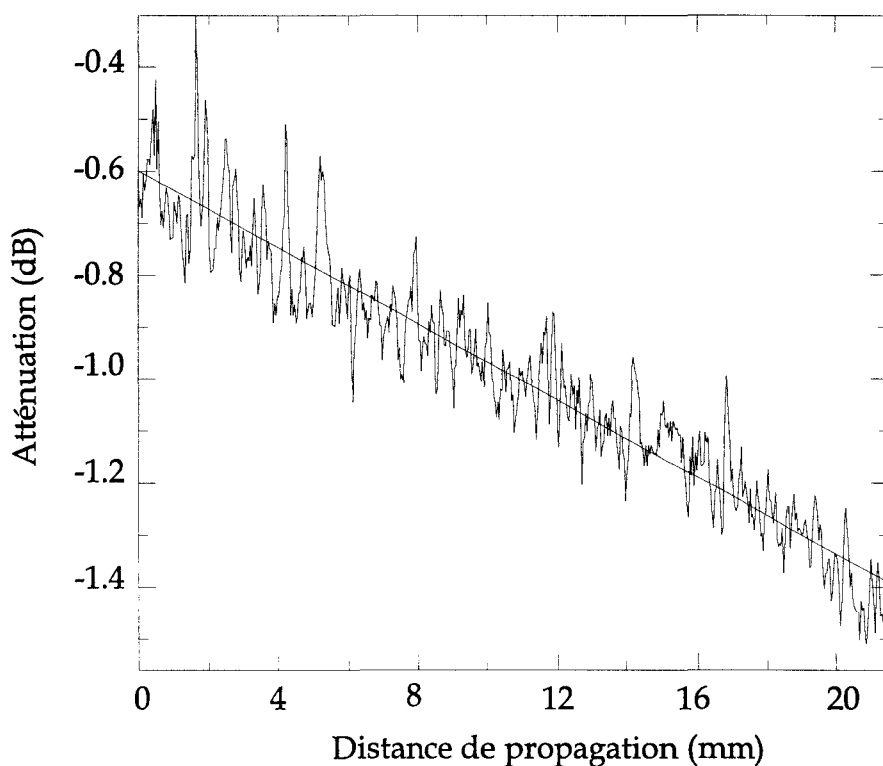


Figure II-II-2 : Atténuation dans un guide d'onde aluminosilicate (Al/Si=2) dopé à 0,5 at.% erbium. (pertes estimées : 0,36 dB/cm à  $\lambda=632,8$  nm).

## II. Etude structurale de la matrice aluminosilicate

Un paramètre important, lors de l'élaboration des guides, est la température de densification. En effet, les composants que nous voulons réaliser doivent présenter à la fois des pertes faibles, un indice de réfraction élevé et une concentration en groupements hydroxyles la plus faible possible. Afin de diminuer la teneur en OH<sup>-</sup>, un traitement à haute température est nécessaire. Cependant, pour limiter les pertes de propagation, cette température doit être inférieure à la température de cristallisation de la matrice aluminosilicate, puisque celle-ci doit rester amorphe. Pour déterminer l'influence de la température de densification sur la structure de nos matériaux, nous avons mené une étude en spectroscopie Raman par ondes guidées. Par ailleurs, l'état de surface des films a été caractérisée par microscopie à effet de force atomique (A.F.M.). L'analyse conjuguée des résultats issus des deux techniques a permis de mettre en évidence l'évolution de la structure amorphe vers une structure cristalline lorsque la température de recuit est augmentée. Lorsque la matrice présente des zones cristallisées, il a été possible d'estimer la taille des nanocristaux.

### II. 1. Analyse des spectres Raman

#### II. 1. 1. La matrice aluminosilicate non dopée

Le dispositif expérimental ainsi que la méthode d'acquisition des spectres Raman à température ambiante, ont été présentés dans le chapitre précédent. La figure II-II-3 présente les spectres Raman Stokes et anti-Stokes de films minces aluminosilicates (Al/Si=2) non dopés, recuits à 900 °C (a), 1000 °C (b) et 1100 °C (c).

##### a. Film recuit à 900 °C

Dans le cas du film traité à 900 °C on observe une bande à basse fréquence. Cette bande appelée "pic de boson", située aux environs de 80 cm<sup>-1</sup>, est caractéristique d'un système vitreux aluminosilicate. L'origine de ce pic est expliquée par la présence dans le verre d'agrégats ou d'amas, de taille moyenne égale à 2R, où R est généralement compris entre 10 et 20 Å [22-24]. Selon le modèle développé par Duval et al. [22,23], on peut considérer que la matrice vitreuse est inhomogène à l'échelle nanométrique. Le verre est composé d'entités cohésives, dans lesquelles les excitations vibrationnelles sont localisées. Selon ce modèle, la fréquence fondamentale  $\nu$  du mode de vibration est reliée à la taille (2R) du domaine concerné :

$$2R = \frac{S\nu}{c\nu} \quad (\text{II-II-1})$$

où S est le facteur de forme du domaine,  $\nu$  représente la vitesse du son dans le matériau et c la vitesse de la lumière dans le vide. A partir de ce modèle, il est donc possible de déterminer la taille moyenne des amas constituant la matrice. De plus, la largeur de la

bande basse fréquence permet d'obtenir une indication sur la distribution en taille des domaines cohésifs. La comparaison du spectre de la silice pure ( $\nu=48 \text{ cm}^{-1}$ ) et de celui de la matrice aluminosilicate ( $\nu=80 \text{ cm}^{-1}$ ) révèle que cette dernière est constituée d'amas de taille plus petite.

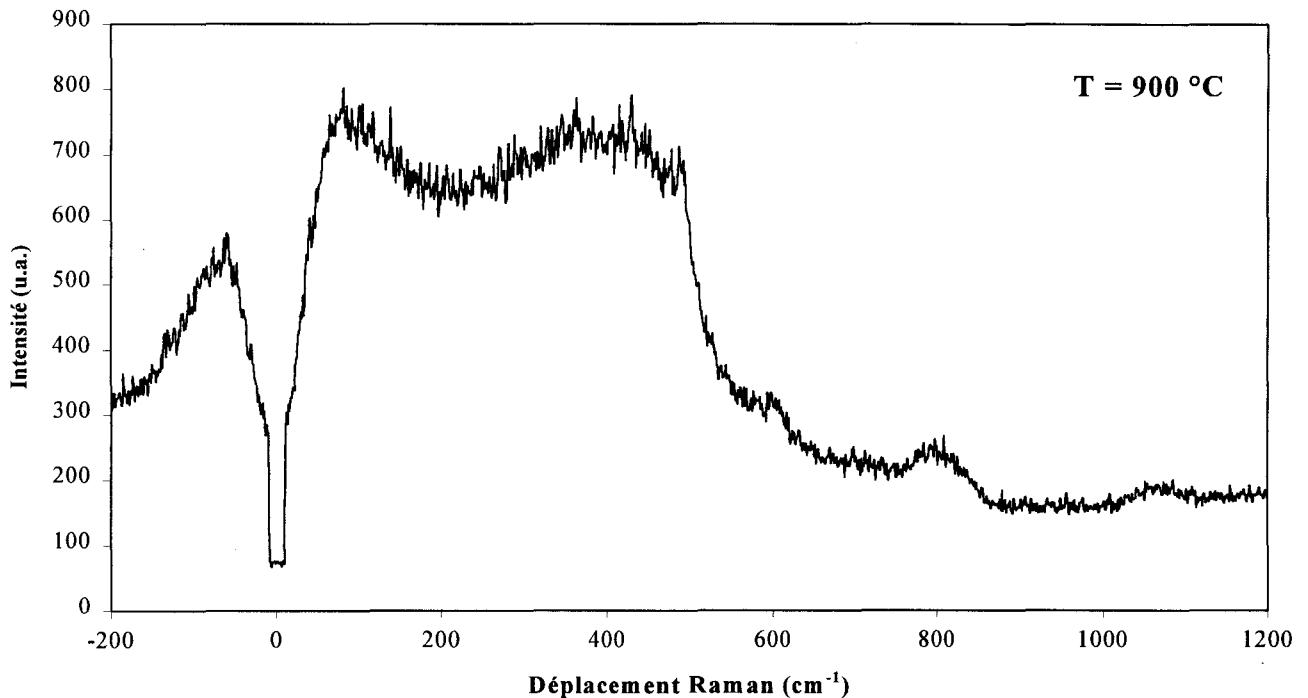


Figure II-II-3a : Spectre Raman à température ambiante d'un film aluminosilicate recuit à 900 °C.

De même que sur les spectres Raman de la matrice germanosilicate, on observe sur la figure II-II-3a une bande située vers  $400 \text{ cm}^{-1}$ . Sa largeur est plus importante que celle relevée sur les spectres d'une matrice silicate. Cette bande est attribuée aux vibrations des atomes d'oxygène dans les plans bissecteurs des liaisons Si-O-Si et Si-O-Al. En effet, les atomes d'oxygène dans le motif Si-O-Al vibrent à des fréquences plus élevées que ceux du motif Si-O-Si [25]. La combinaison de ces deux modes de vibration conduit à l'élargissement spectral de la bande en question.

Les bandes autour de  $500$  et  $600 \text{ cm}^{-1}$  sont généralement attribuées aux vibrations du motif Al-O dans lequel l'oxygène est pontant [26]. Plus particulièrement, la bande à  $600 \text{ cm}^{-1}$  rend compte des défauts de structure dans le verre, impliquant des vibrations dans les motifs Si(Al)-O (oxygène non pontant) [27]. Cependant, ces bandes existent aussi dans la matrice silicate, où elles sont attribuées aux défauts  $D_1$  et  $D_2$  des structures en anneaux du réseau [28-29]. Cette observation suggère que les anneaux en question sont moins perturbés par la présence de l'aluminium que par celle du germanium.

La bande à  $800\text{ cm}^{-1}$  est attribuée à une vibration complexe des atomes d'oxygène et de silicium dans le réseau vitreux  $\text{SiO}_2$ . A plus haute fréquence, la bande large, qui s'étend de  $880$  à  $1200\text{ cm}^{-1}$  avec un maximum à  $1050\text{ cm}^{-1}$ , a pour origine la vibration d'élongation de la liaison Si-O des tétraèdres de silice, impliquant entre un et quatre atomes d'oxygène non pontants [26].

### b. Film recuit à $1000\text{ °C}$

Lorsque la température de traitement augmente jusqu'à  $1000\text{ °C}$  (figure II-II-3b), le matériau se densifie. L'indice de réfraction évolue entre  $1,548$  à  $900\text{ °C}$  et  $1,576$  à  $1000\text{ °C}$  et l'intensité des bandes de défauts ( $\nu=480\text{ cm}^{-1}$  et  $\nu=606\text{ cm}^{-1}$ ) diminue fortement. Cela indique que la densification du système s'accompagne d'une destruction des anneaux constitués de 3 et 4 tétraèdres. Le fait que la bande  $D_2$  ( $\nu=606\text{ cm}^{-1}$ ) disparaisse presque totalement atteste que les anneaux d'ordre 3 sont les plus fragiles. La diminution d'intensité de la bande à  $1050\text{ cm}^{-1}$  indique, quant à elle, un réarrangement des pontages dans les structures polyédriques.

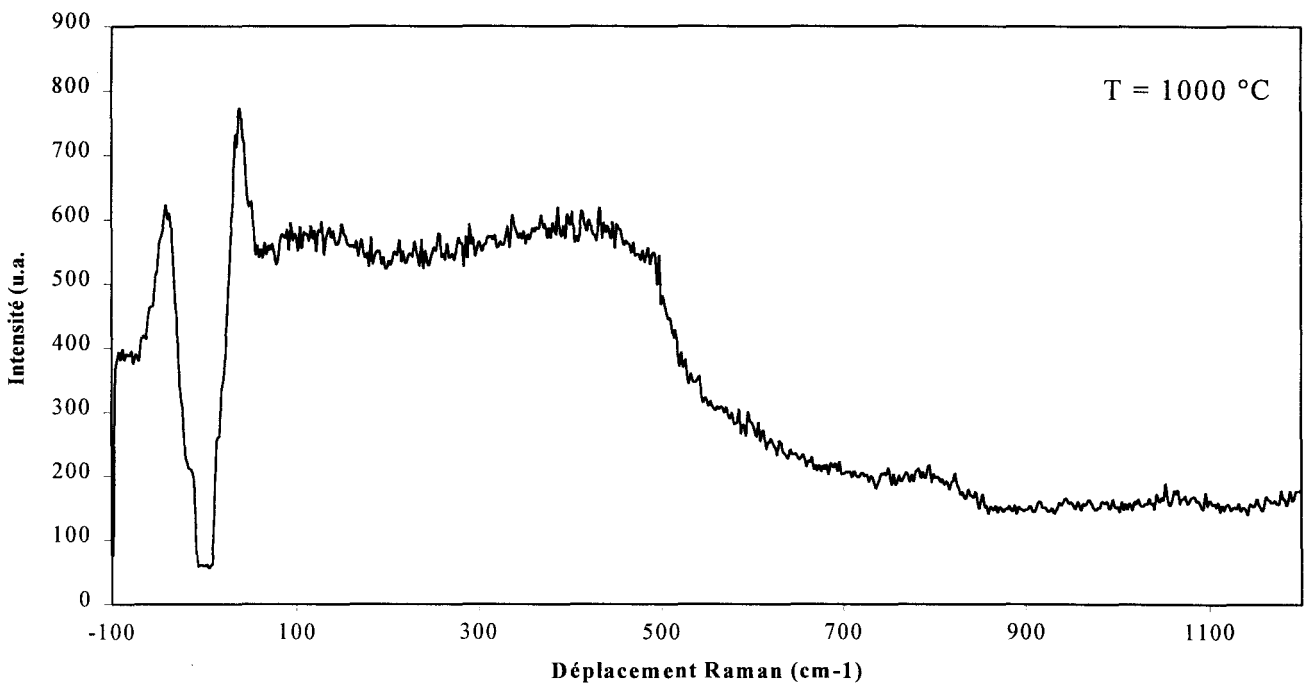


Figure II-II-3b : Spectre Raman à température ambiante d'un film aluminosilicate recuit à  $1000\text{ °C}$ .

La bande de vibration des motifs T-O-T (T=Al ou Si) autour de  $450\text{ cm}^{-1}$  n'évolue pas de façon significative, tandis que le pic de boson se déplace vers une fréquence plus élevée ( $\sim 100\text{ cm}^{-1}$ ) et qu'un pic très fin apparaît vers  $30\text{ cm}^{-1}$ . L'apparition de ce dernier, appelé pic de taille, montre une évolution structurale de la matrice vers un réseau cristallin. Néanmoins, la coexistence du pic de taille et du pic de boson dénote la présence

simultanée de zones cristallisées et d'une matrice amorphe. La position du pic de Boson nous renseigne également sur la densification de la matrice. En effet, le déplacement du pic de boson vers les hautes fréquences indique une diminution de la taille moyenne des domaines cohésifs traduisant un état de densification plus avancé. Dans notre groupe de recherche, Nedelec et al. [30] ont également observé et analysé ce processus dans des silicates massifs.

### c. Film recuit à 1100 °C

Les modes de vibration T-O-T sont découplés et deux bandes distinctes à 320 et à 420  $\text{cm}^{-1}$  apparaissent sur le spectre du film recuit à 1100 °C (figure II-II-3c). Cette observation suggère une séparation de phase. Nous observons également la réapparition des modes de défauts ainsi que la croissance d'une bande à 980  $\text{cm}^{-1}$ . Ces bandes, caractéristiques de la silice, confirment l'hypothèse d'une séparation de phase. De plus, le pic de boson n'apparaît plus et le pic de taille s'est déplacé vers les basses fréquences et se situe autour de 16  $\text{cm}^{-1}$ . Ces observations montrent clairement que la structure amorphe disparaît au profit d'une structure cristallisée.

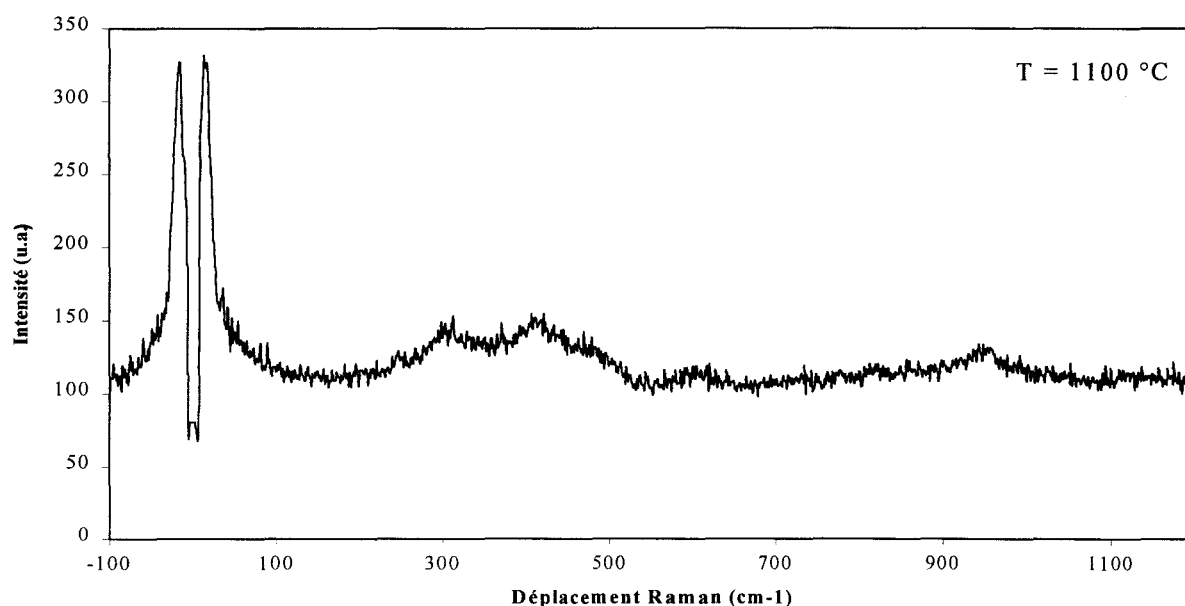


Figure II-II-3c : Spectre Raman à température ambiante d'un film aluminosilicate recuit à 1100 °C.

Dans le cadre du modèle de Duval *et al.* [22,23], le pic à très basse fréquence peut être interprété comme une caractéristique de la taille des nanocristaux. Dans la relation (II-II-1), nous prenons  $S = 0.7$  (forme sphérique) et  $v = 7020 \text{ m/s}$ , la vitesse du son dans un verre dont la composition est proche de la cordiérite minérale (52%  $\text{SiO}_2$ - 35%  $\text{Al}_2\text{O}_3$  en masse) [22]. Nous calculons ainsi, la taille moyenne des particules cristallisées qui augmente de 4,7 nm à 11,7 nm lorsque la température de traitement passe de 1000 °C à 1100 °C.

Grâce aux expériences de spectroscopie Raman, nous avons pu mettre en évidence l'évolution structurale de la matrice amorphe vers une structure cristalline lorsque la température de recuit est supérieure à 900 °C. L'augmentation de la température de traitement thermique, au-delà de 900 °C, mène à un état de cristallisation avancé et à la formation de cristallites de tailles croissantes.

### II. 1. 2. Influence du dopage

La matrice finale, utilisée pour l'étude de l'amplification optique, est une matrice aluminosilicate (Al/Si=2) dopée à 0,5 at. % en erbium. Bien que la concentration en dopant soit faible, celui-ci peut jouer un rôle dans les processus de densification et de cristallisation des films [30]. Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons étudié le cas d'une matrice dopée.

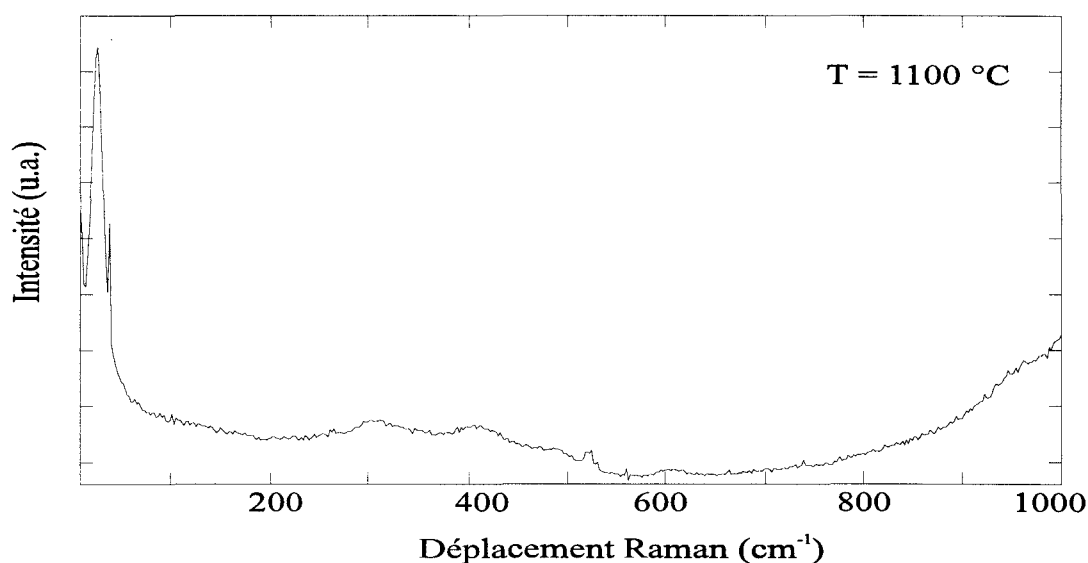


Figure II-II-4 : Spectre Raman d'un guide (Al/Si=2) dopé 0,5 at.% erbium traité à 1100 °C.

Pour les températures de traitement comprises entre 900 °C et 1000 °C, nous n'avons pas observé de variations significatives des indices de réfraction ou de la structure de la matrice. Pour des températures supérieures, allant jusqu'à 1100 °C, l'influence des ions erbium est observable, notamment sur le pic de taille (figure II-II-4). Dans le cas de la matrice non dopée, traitée à 1100 °C, le pic de taille se trouve à la fréquence de 16 cm<sup>-1</sup>, tandis que celui de la matrice dopée est situé à 25 cm<sup>-1</sup>. Cette observation nous laisse penser que les cristallites formés sont de plus petite taille dans la matrice dopée. Ainsi, le rôle des ions erbium est de retarder la cristallisation. En effet, après un traitement à 1200 °C, la mesure de l'indice de réfraction nous informe que la densification du matériau se poursuit (n=1,61 à 1200 °C et n=1,585 à 1100 °C). Cependant à cette température, les pertes de propagation sont trop élevées pour enregistrer le spectre Raman par ondes guidées qui aurait pu confirmer ou infirmer la poursuite de la cristallisation.

## II. 2. Etude de la structure des films par des techniques de microscopie

L'étude de la structure de nos matériaux a été complétée par des expériences de microscopie à effet de force atomique (A.F.M.) et par Microscopie électronique à balayage (M.E.B.). Les analyses A.F.M. ont été menées au Laboratoire de Structure et Propriétés de l'Etat Solide (L.S.P.E.S.) de l'Université des Sciences et technologies de Lille. L'étude par M.E.B a pu être réalisée au Centre Régional d'Innovations et Transfert de Technologie (C.R.I.T.T.) de Maubeuge et à l'Institut d'Electronique et de Micro-électronique du Nord (I.E.M.N.). Une brève description des techniques et des dispositifs expérimentaux est présentée dans l'annexe II.

### II. 2. 1. Analyse par microscopie A.F.M.

La qualité des films peut être caractérisée par l'observation de la surface et la mesure de la rugosité des couches. Les figures II-II-5 présentent des photographies A.F.M. de la surface de guides non dopés traités à : 900 °C (a), 1000 °C (b), et 1100 °C (c).

Ces clichés nous montrent qu'à 900 °C, la surface du guide est homogène et dense. La rugosité moyenne vaut 0,173 nm.

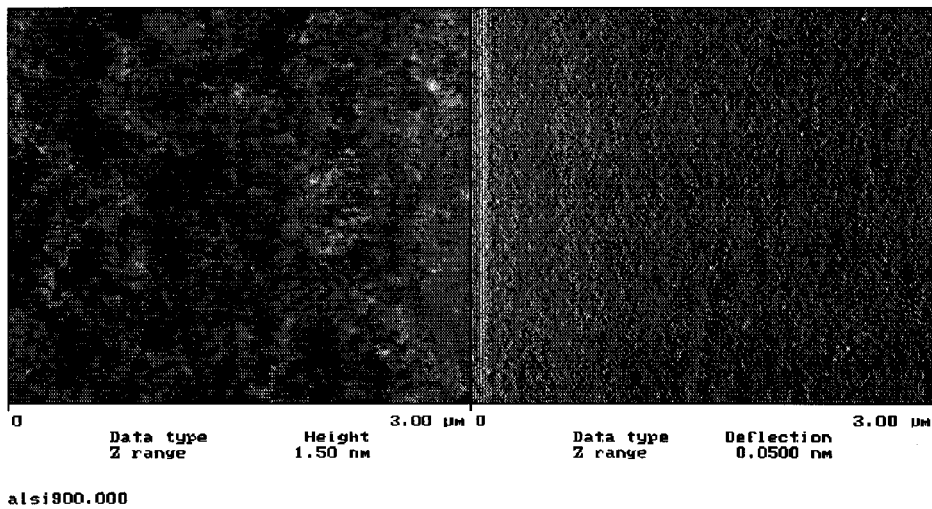


Figure II-II-5a : Photographie A.F.M. de la surface d'un guide (Al/Si=2) traité à 900 °C.

Note : La photographie de gauche est la surface réelle de l'échantillon, celle de droite est le résultat d'une transformation numérique qui augmente le contraste en relief.

A 1000 °C, la surface est toujours homogène mais la présence de nanocristaux au milieu de zones amorphes nous indique un début de cristallisation. Cette observation est conforme aux informations obtenues par spectroscopie Raman. En effet, à 1000 °C, les spectres Raman présentent à la fois le pic de boson et le pic de taille. Ces deux observations permettent de décrire la structure comme un mélange de domaines cristallisés et de domaines amorphes. La rugosité de la surface augmente jusqu'à une valeur moyenne de **0,897 nm**.

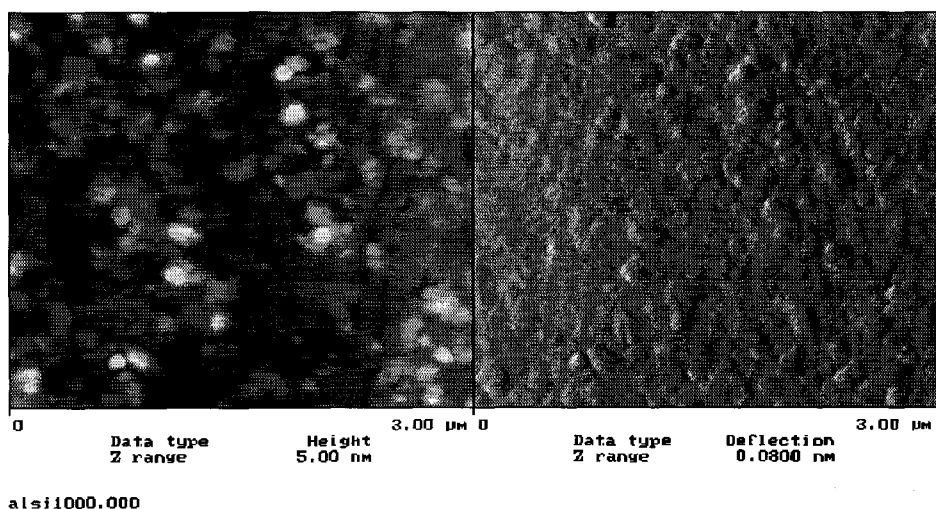


Figure II-II-5b : Photographie A.F.M. de la surface d'un guide (Al/Si=2) traité à 1000 °C.

Lorsque le film est traité à 1100 °C puis à 1200 °C, la cristallisation se poursuit et nous observons un recouvrement de la surface du film par les nanocristaux dont la taille varie entre 10 à 50 nm. De même que précédemment, nous pouvons comparer ces résultats aux données issues de la spectroscopie Raman. A 1100 °C, la structure est presque totalement cristallisée. L'estimation de la taille des cristaux à partir des spectres Raman nous fournit un diamètre moyen de 11,7 nm, ce qui est en bon accord avec la taille des plus petites particules observées par A.F.M. et M.E.B.. A ces températures, la rugosité continue de croître : elle vaut **1,047 nm** à 1100 °C et **3,960 nm** à 1200°C.



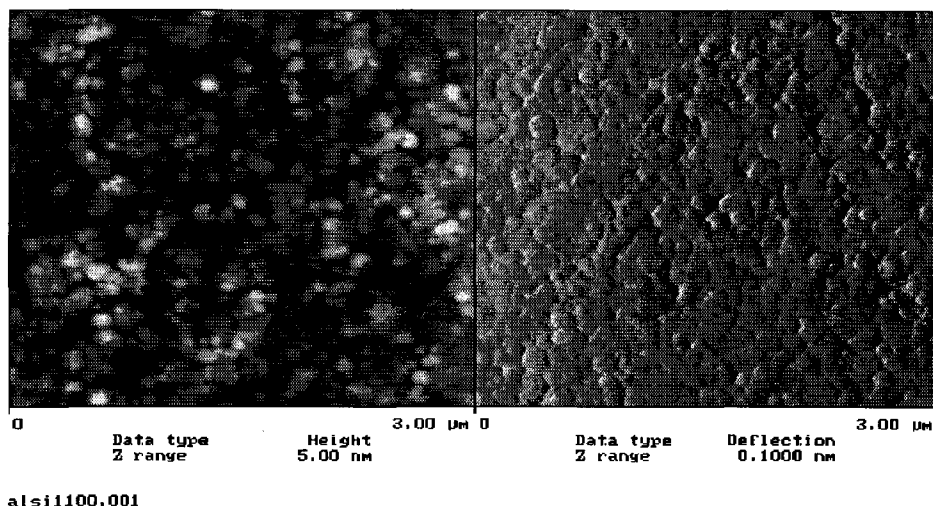


Figure II-II-5c : Photographie A.F.M. de la surface d'un guide (Al/Si=2) traité à 1100 °C.

### II. 2. 2. Analyse au M.E.B.

Nous avons également observé la surface et la tranche de nos guides par la technique de Microscopie Electronique à Balayage. La figure II-II-6 représente la surface d'un film aluminosilicate recuit à 900°C. La surface est parfaitement homogène et dense (pas de porosité visible). La qualité de surface de ces films (absence de grains et de craquelures) est en bon accord avec les faibles pertes de propagation que nous avons mesurées (de l'ordre de 0,2 dB/cm). L'observation de la tranche des guides nous a permis de confirmer les épaisseurs mesurées par la méthode M-line.

A l'aide de la microscopie électronique à balayage, nous avons également tenté une analyse de l'évolution structurale pour différentes températures de recuit. Malheureusement, nous avons été confrontés à des problèmes techniques liés à la nature du matériau. En effet, pour des films traités à plus de 900 °C, les enregistrements ne présentent pas une résolution suffisante à une interprétation claire. Le matériau se charge électriquement lorsqu'il est bombardé par les électrons, ce qui contribue à détériorer la qualité de l'image.



Figure II-II-6 : Photographie M.E.B. de la surface d'un guide aluminosilicate recuit à 900 °C.

### III. Fluorescence des ions erbium dans une matrice aluminosilicate

#### III. 1. Fluorescence Up-conversion

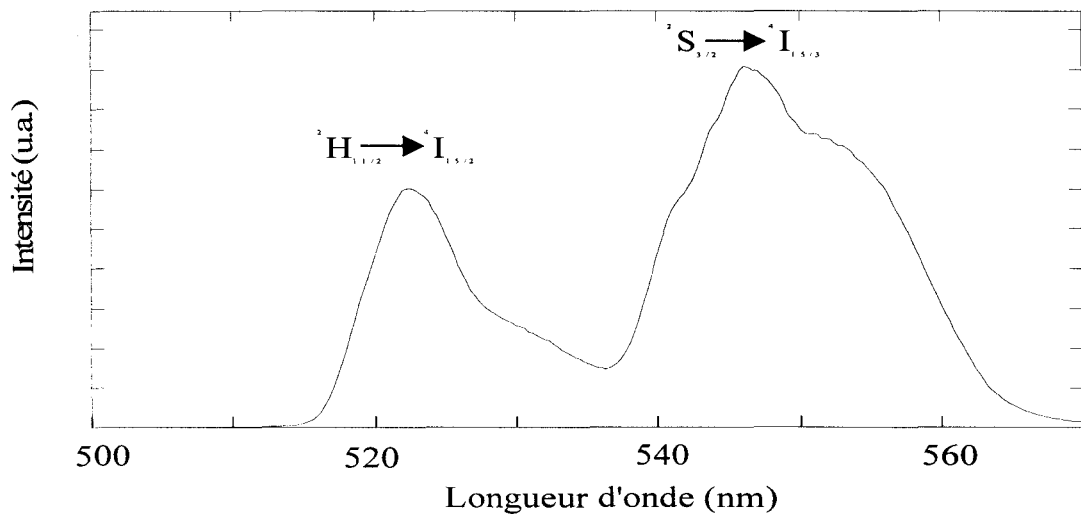
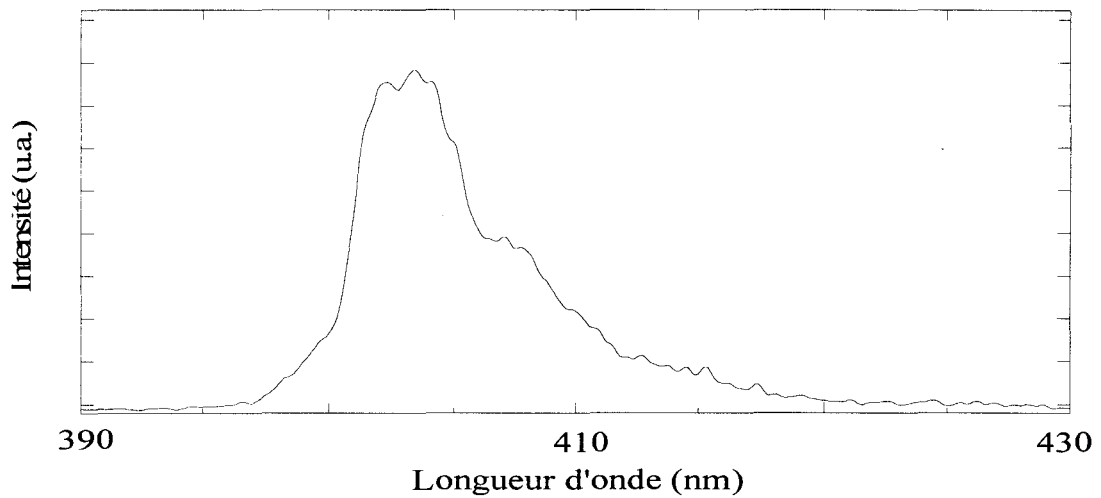
##### III. 1. 1. Analyse des émissions de fluorescence dans le visible

L'analyse de la fluorescence Up-conversion fait toujours l'objet de nombreux travaux. Ce phénomène de conversion de la lumière vers les hautes énergies autorise la production de sources émettrices dans le domaine spectral visible et UV à partir d'un pompage dans le rouge ou dans le proche infrarouge. Des études ont été réalisées dans des cristaux [31-35], des fibres dopées [36-40] et des verres massifs [41-43]. L'intérêt est actuellement porté sur les guides planaires, en vue de la réalisation de sources compactes [44,45].

L'étude que nous présentons dans ce paragraphe a pour but de caractériser l'émission Up-conversion dans des guides aluminosilicates et d'en comprendre les mécanismes.

La méthode et le dispositif expérimental pour l'acquisition des spectres de fluorescence des ions erbium ont été présentés dans le chapitre précédent. La source permettant d'exciter les ions en vue d'étudier le phénomène d'Up-conversion est un laser Saphir-Titane émettant un rayonnement à 800 nm. La figure II-II-7 présente les spectres

d'émission, dans le bleu, le vert et le rouge, de guides d'onde dopés à 1 at.% en ions erbium et recuits à 900 °C. Ces spectres sont enregistrés à température ambiante, dans une gamme de fréquence qui correspond au domaine visible (de 390 nm à 700 nm). Dans cette zone, des bandes larges sont observées autour de 405 nm, 525 nm, 550 nm, et 650 nm, caractéristiques des émissions de l'ion erbium dans une matrice amorphe.



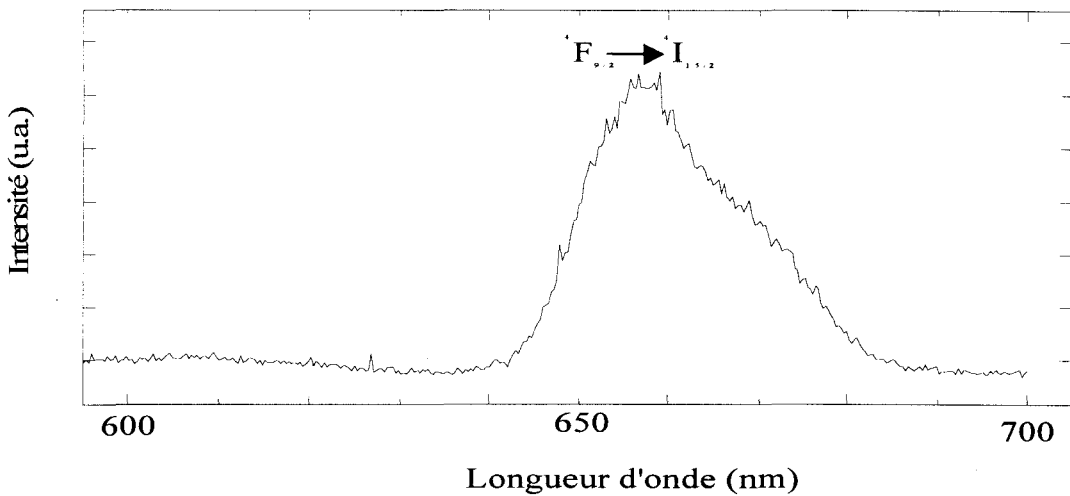


Figure II-II-7 : Fluorescence Up-conversion des ions erbium dans un guide aluminosilicate dopé 1 at.% en erbium. ( $\lambda_p=800$  nm).

Les mécanismes de population des niveaux intervenant dans le processus de conversion sont présentés sur la figure II-II-8. Dans un premier temps, les ions erbium, dans leur état fondamental  $^4I_{15/2}$ , absorbent le rayonnement de pompe à 800 nm et sont excités dans le niveau  $^4I_{9/2}$ . A partir de ce niveau, les ions peuvent subir deux processus : soit l'absorption d'un photon de pompe qui va les exciter dans le niveau  $^2H_{9/2}$ , soit des désexcitations non radiatives rapides qui les amènent dans le niveau  $^4I_{11/2}$ , puis dans le niveau métastable  $^4I_{13/2}$ . L'absorption de la pompe est de nouveau permise à partir de ces deux niveaux et contribue à peupler les niveaux d'énergies supérieures ( $^2H_{11/2}+^4S_{3/2}$ ) et  $^4F_{5/2}$ . Les ions dans le niveau  $^4F_{5/2}$  se désexcitent rapidement de manière non radiative vers les niveaux inférieurs ( $^2H_{11/2}+^4S_{3/2}$ ). Une partie des ions se trouvant dans ces deux niveaux peut se désexciter de manière non radiative vers le niveau  $^4F_{9/2}$ . A partir des niveaux  $^2H_{9/2}$ ,  $^2H_{11/2}$ ,  $^4S_{3/2}$  et  $^4F_{9/2}$ , les ions relaxent vers le niveau fondamental  $^4I_{15/2}$  de manière radiative générant des émissions de fluorescence respectivement à 405 nm, 525 nm, 550 nm et 650 nm. La fluorescence verte (525-550 nm) est la plus intense et il est possible de la voir à l'œil nu sur toute la longueur de la propagation (4 cm).

Nous avons voulu montrer la présence de ce phénomène dans nos composants, car il joue un rôle parasite important au niveau des mécanismes de l'amplification. En effet, comme le montre le diagramme de la figure II-II-8, les désexcitations non radiatives successives à partir du niveau  $^4I_{9/2}$  peuplent le niveau métastable  $^4I_{13/2}$ . C'est la désexcitation radiative à partir de ce niveau qui permet l'amplification. Ainsi, le gain d'amplification peut être diminué par l'absorption à partir du niveau excité  $^4I_{9/2}$  ou  $^4I_{13/2}$ . Ces processus devront donc être pris en compte par le modèle d'amplification que nous développerons dans la troisième partie de cette thèse.

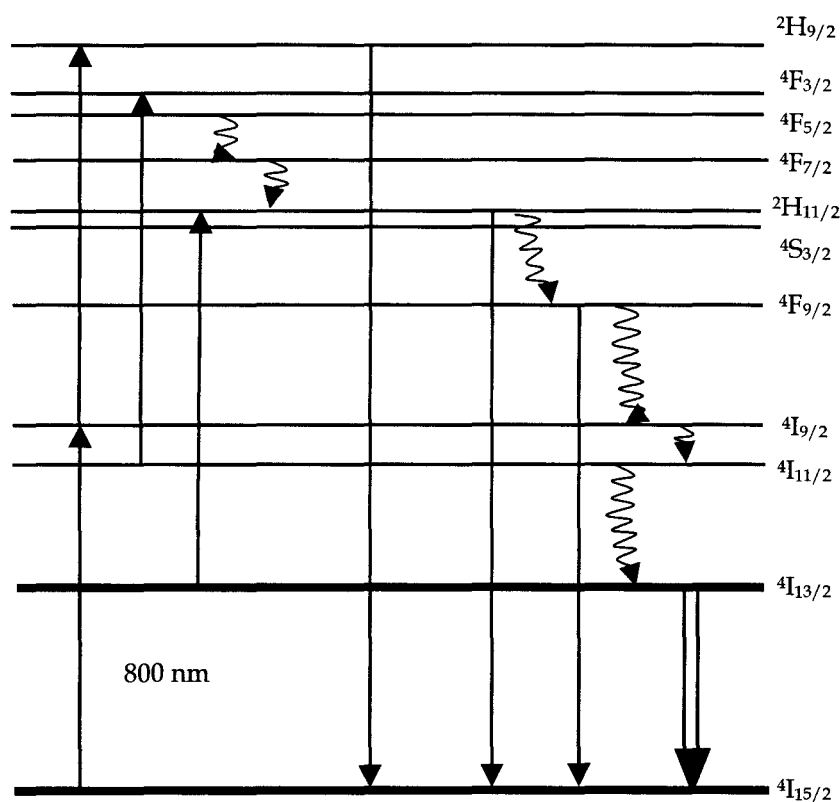
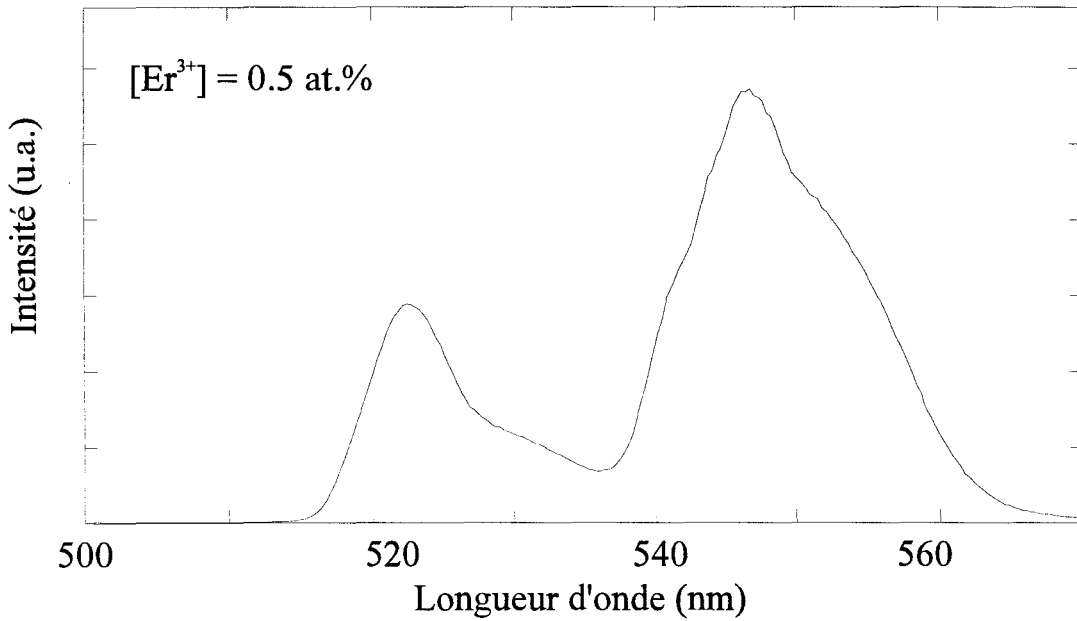
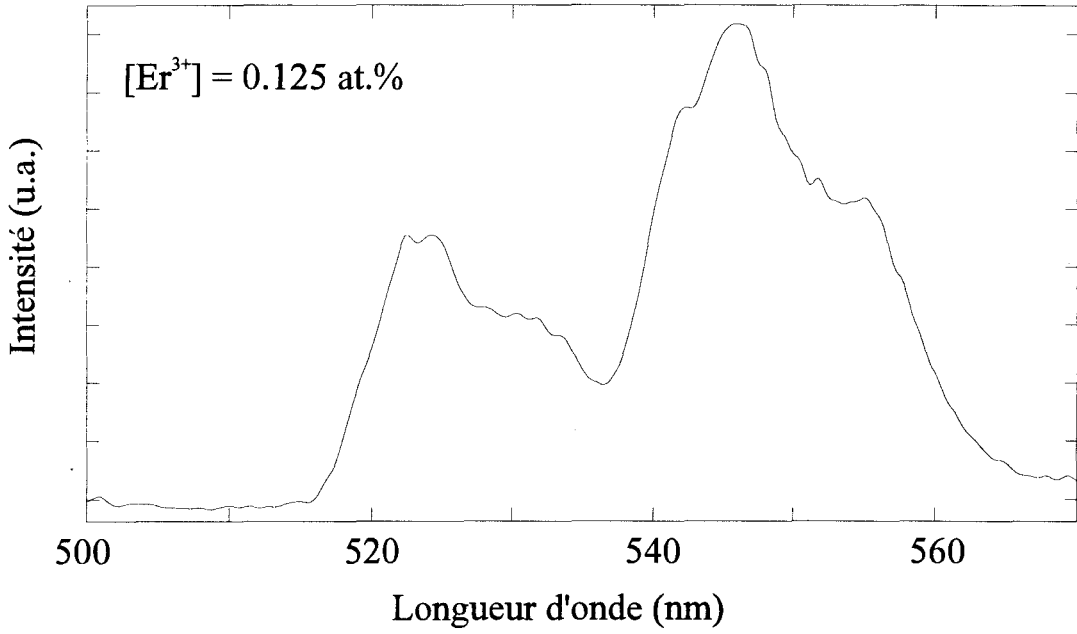


Figure II-II-8: Mécanismes de la fluorescence Up-conversion pour les ions erbium pompés à 800 nm.

### III. 1. 2. Influence de la concentration

Nos travaux sur les fluorescences Up-conversion ont été complétés par une étude de l'influence de la concentration en ions erbium. L'investigation a été menée sur des guides recuits à 900 °C ou à 1100 °C, et sur la désexcitation des niveaux ( $2H_{11/2} + 4S_{3/2}$ ) vers le fondamental  $4I_{15/2}$ . Les résultats expérimentaux sont présentés sur les figures II-II-9 et II-II-10.

L'observation des spectres de la figure II-II-9 montre qu'après un recuit à 900 °C, les bandes d'émissions sont larges, quelle que soit la concentration. Cette observation est fondamentale car elle nous apprend que le dopage ne modifie pas la matrice. Cela indique que la matrice aluminosilicate offre une grande diversité de sites aux ions erbium. Ainsi, jusqu'à une concentration de 1 at.%, les ions de terres rares occupent les différents sites offerts par la matrice aluminosilicate sans la perturber. La solubilité des ions erbium dans un verre aluminosilicate semble donc meilleure que dans une matrice silicate. D'autre part, la grande diversité d'environnements des ions erbium se traduit par une augmentation de la largeur inhomogène et par conséquent de la largeur totale des bandes d'émission.



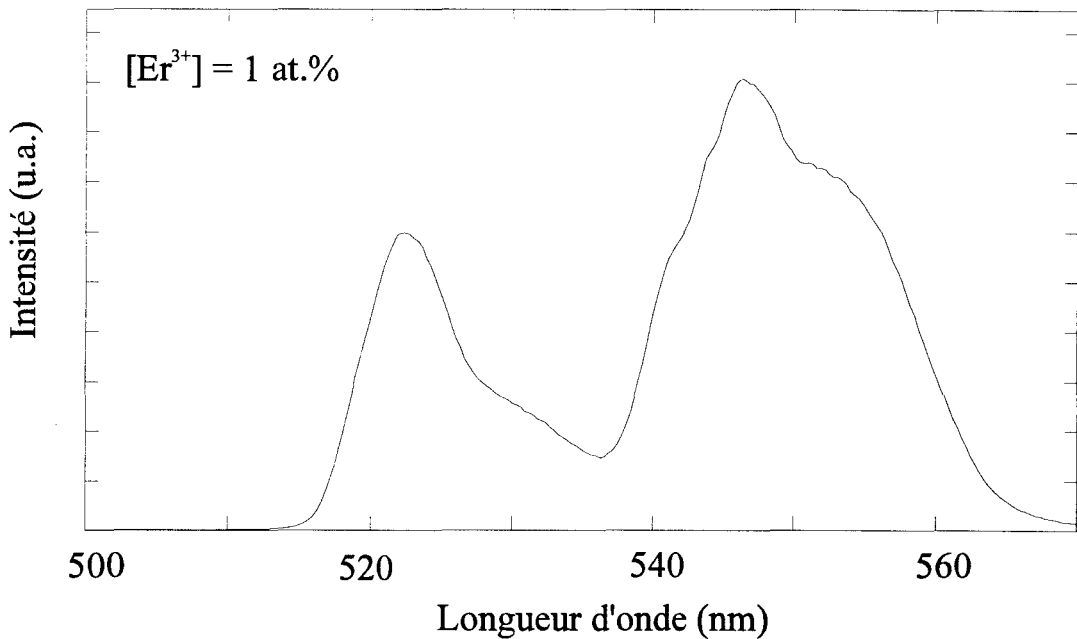


Figure II-II-9 : Emissions de fluorescence des ions erbium à température ambiante dans une matrice aluminosilicate dopée à (a) 0,125 at. %, (b) 0,5 at.%, et (c) 1 at. % , traitée à 900 °C.

Lorsque les films sont traités à 1100 °C (figure II-II-10), les bandes d'émission s'affinent et se décomposent en plusieurs raies pour les trois concentrations. La cristallisation de la matrice modifie l'environnement des ions erbium, ce qui a pour conséquence une diminution de la largeur inhomogène conduisant à une décomposition des bandes d'émission. La séparation et l'affinement des structures au sein d'une bande de fluorescence indiquent plus particulièrement une évolution de la matrice vers une phase cristalline [45]. Ces résultats, concernant l'évolution structurale de la matrice avec l'augmentation de la température de recuit, sont en bon accord avec ceux obtenus par spectroscopie Raman et par microscopie A.F.M. .

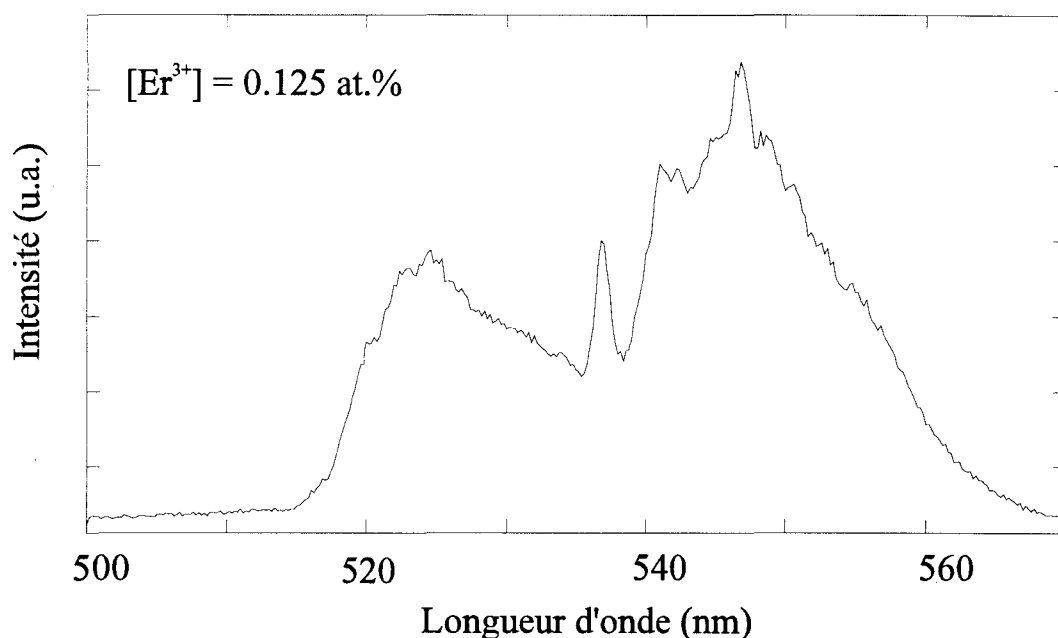


Figure II-II-10a : Emissions de fluorescence à température ambiante des ions erbium dans une matrice aluminosilicate dopée 0,125 at.% recuite à 1100 °C.

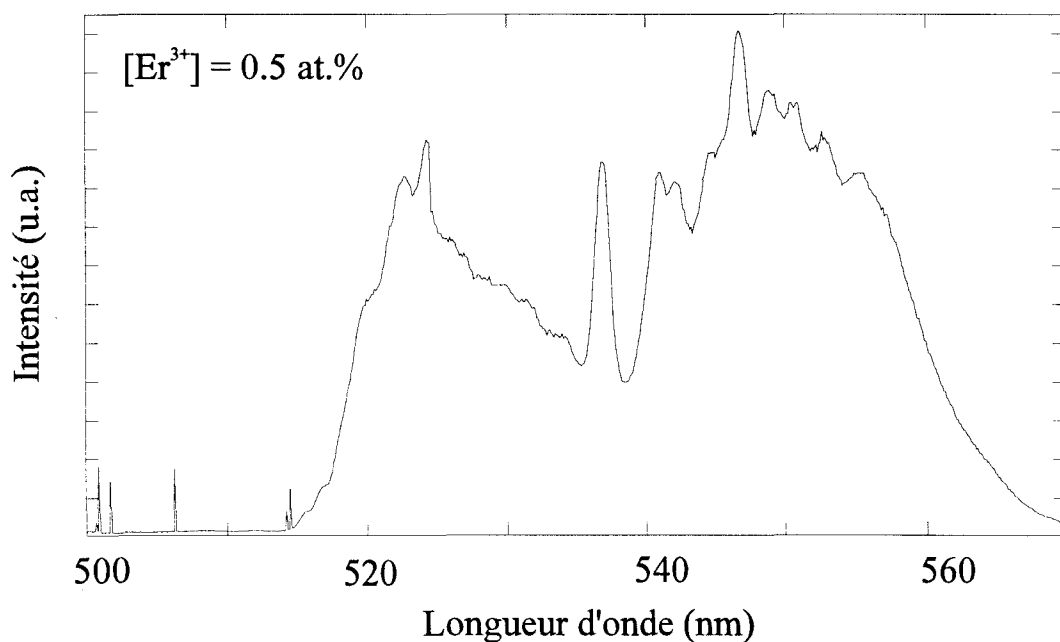


Figure II-II-10b : Emissions de fluorescence à température ambiante des ions erbium dans une matrice aluminosilicate dopée 0,5 at.% recuite à 1100 °C.



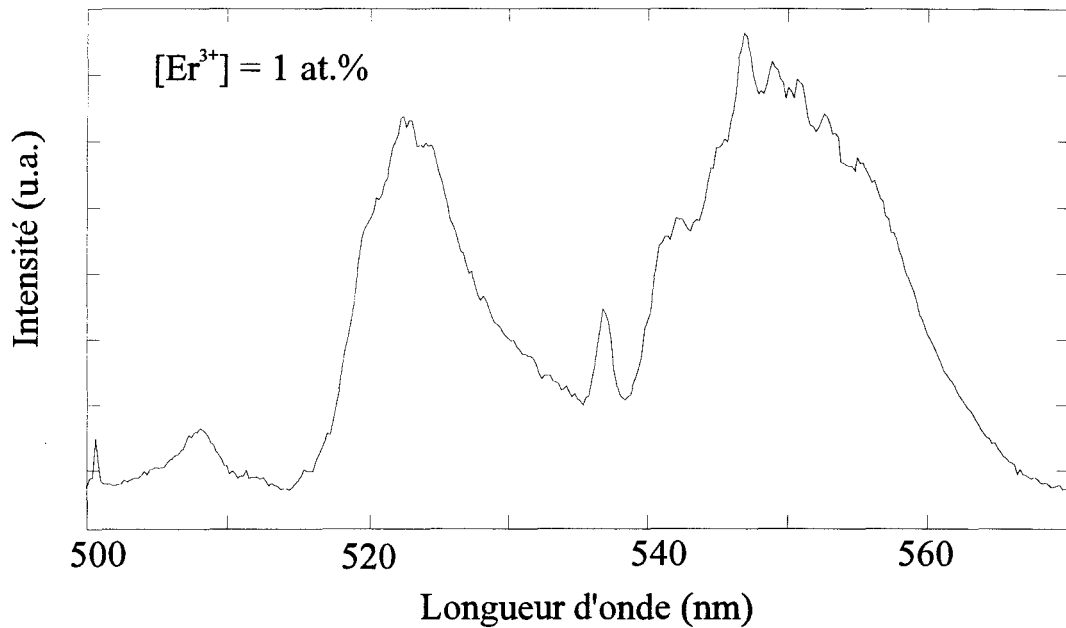


Figure II-II-10c : Emissions de fluorescence à température ambiante des ions erbium dans une matrice aluminosilicate dopée 1 at.% recuite à 1100 °C.

### III. 2. Analyse de la fluorescence autour de 1,53 $\mu\text{m}$

L'amplification optique par émission stimulée, est étroitement liée à la fluorescence des ions erbium autour de 1,5  $\mu\text{m}$ . Dans le chapitre II-I, nous avons défini les caractéristiques principales de la désexcitation radiative du niveau métastable  $^4I_{13/2}$  vers le niveau fondamental  $^4I_{15/2}$  : la durée de vie de fluorescence du niveau métastable et la largeur de la bande d'émission centrée à 1,53  $\mu\text{m}$ .

#### III. 2. 1. Etude des déclins de fluorescence

Le dispositif expérimental utilisé pour l'enregistrement des déclins de fluorescence est le même que celui utilisé pour les guides d'ondes germanosilicates. Les mesures que nous présentons sur la figure II-II-11 ont été réalisées à partir des guides aluminosilicates (Al/Si=2) dopés à 0,5 at.% et à 1 at.% en erbium. Les durées de vie mesurées sont  $\tau = 4.9$  ms pour le guide dopé à 0,5 at.% et  $\tau = 4.3$  ms pour le guide dopé à 1 at.%.

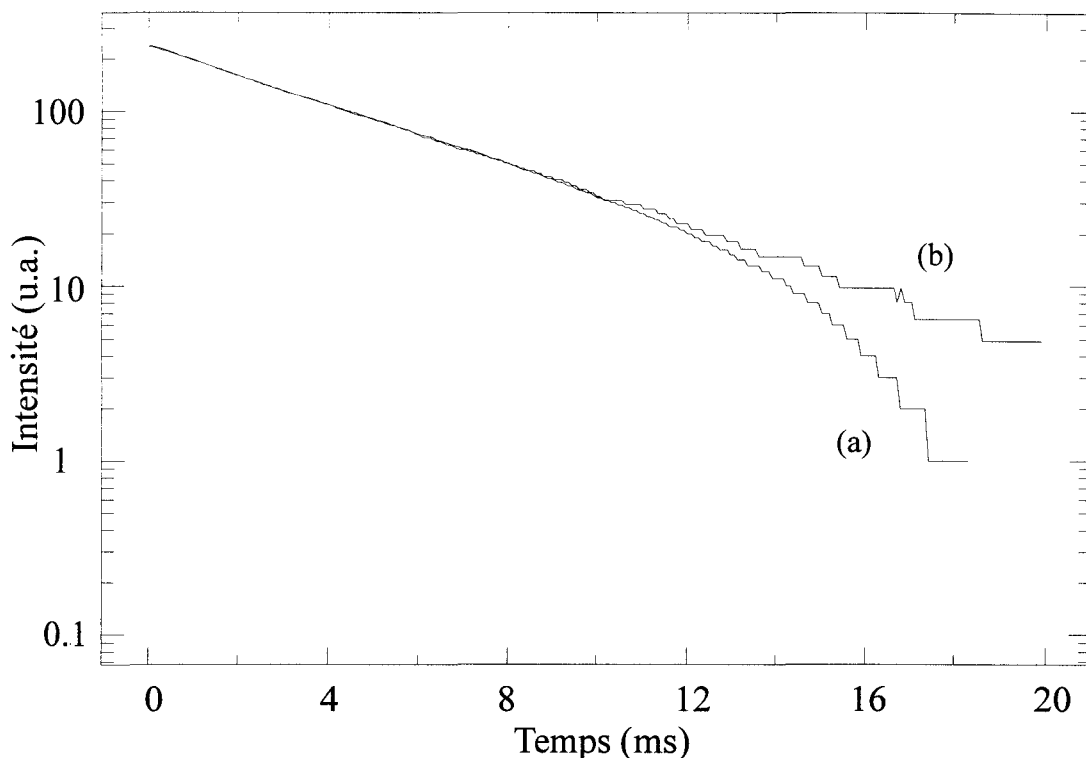


Figure II-II-11 : Déclins de fluorescence du niveau  $4I_{13/2}$  des ions erbium dans une matrice aluminosilicate traitée à 900 °C et dopée (a) à 1 at.%, et (b) à 0,5 at.% en ions erbium.

Les déclins de fluorescence peuvent être modélisés par des décroissances exponentielles avec un facteur de corrélation supérieur à 0,99. Les durées de vie obtenues dans nos échantillons sont faibles en comparaison de celles mesurées dans des matériaux aluminosilicates dopés erbium élaborés par d'autres techniques [46]. Deux processus peuvent contribuer à diminuer la durée de vie du niveau métastable : l'autoextinction (liée à la concentration) et la présence de groupements hydroxyles  $\text{OH}^-$ . Or les mesures utilisant des échantillons dopés à 0,5 et 1 at.% sont comparables. On peut donc supposer que l'effet de concentration n'est pas le phénomène dominant. La seconde hypothèse nous a menés à étudier la teneur en groupements  $\text{OH}^-$  présents dans nos films. Nous avons, pour cela, analysé les spectres infrarouge par Transformée de Fourier (F.T.I.R.) enregistrés sur des guides dopés à 0,5 at.% en erbium. La méthode et le dispositif expérimental ont été décrits dans le chapitre précédent. Les expériences ont été menées sur des guides d'épaisseur 0,905  $\mu\text{m}$ , déposés sur des substrats de silice et recuits à 500, 600, 700, 800 ou 900 °C. La région spectrale étudiée s'étend de 4000 à 3000  $\text{cm}^{-1}$  et couvre la bande dans laquelle sont localisées les vibrations d'élongation du motif O-H.

Les spectres de la figure II-II-12 montrent l'évolution de la teneur en  $\text{OH}^-$  en fonction de la température de recuit. (Note : les spectres à 800 °C et à 900 °C sont rigoureusement identiques ; c'est pourquoi nous ne présentons que le spectre à 900 °C.)

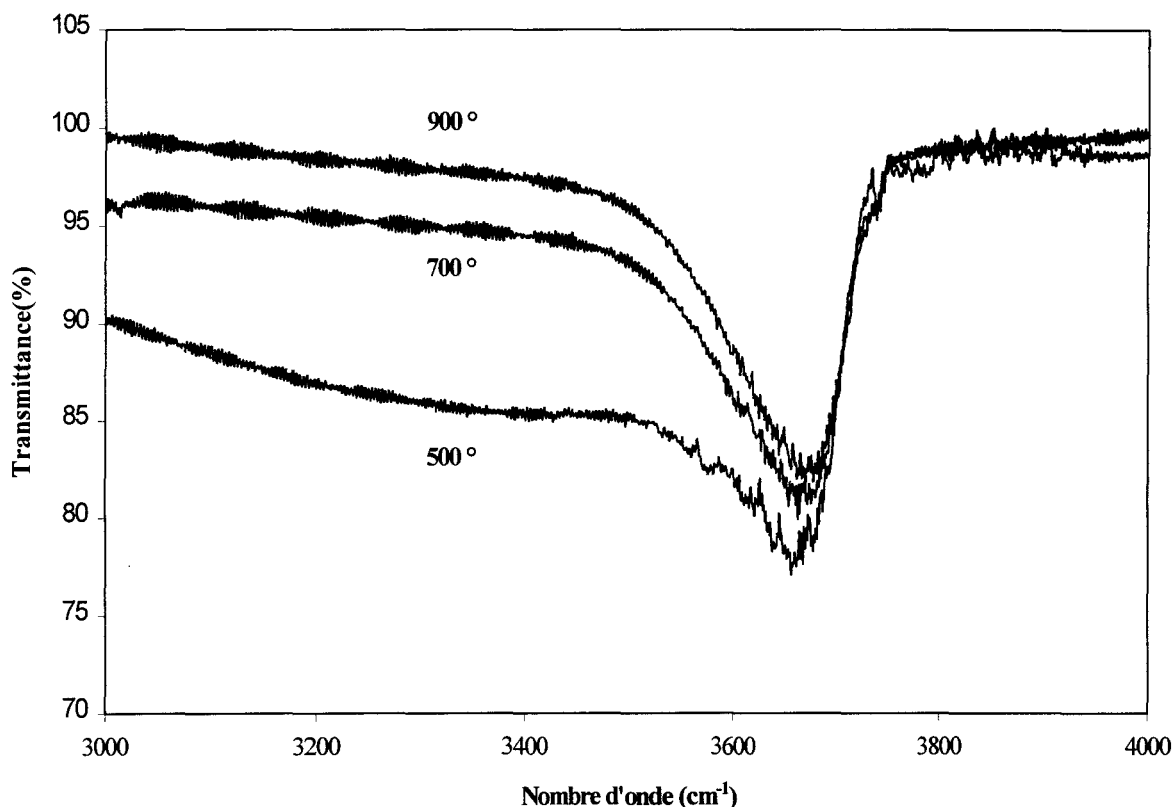


Figure II-II-12 : Spectres F.T.I.R. enregistrés dans un guide aluminosilicate (Al/Si=2) dopé à 0,5 at. % en erbium élaboré par voie sol-gel et recuit à différentes températures.

A 500 °C, deux bandes larges centrées vers 3400  $\text{cm}^{-1}$  et 3650  $\text{cm}^{-1}$  sont observables. La première, généralement attribuée à l'eau adsorbée et/ou aux groupes OH liés par leur atome d'hydrogène [47-50], décroît de manière significative lorsque la température de traitement augmente. Cependant la bande autour de 3650  $\text{cm}^{-1}$ , attribuée aux modes d'élongation des motifs Si-OH et Al-OH, montre peu de variation avec le traitement thermique. Ces spectres montrent clairement que les groupements OH liés aux atomes de silicium et d'aluminium sont présents, même à des températures de traitement élevées (900°C). Leur présence est responsable des faibles valeurs de durée de vie mesurées.

### III. 2. 2. Influence du dopage sur la largeur de la bande d'émission infrarouge

Le second paramètre important auquel nous nous sommes intéressés est la largeur de l'émission de fluorescence. Cette caractéristique est fondamentale du point de vue de l'amplification. En effet, elle détermine d'une part la gamme de fréquences à l'intérieur de laquelle l'amplification est optimale et d'autre part le domaine spectral sur lequel l'amplification optique peut être effectuée. Or la largeur spectrale d'émission dépend fortement de l'environnement des ions erbium.

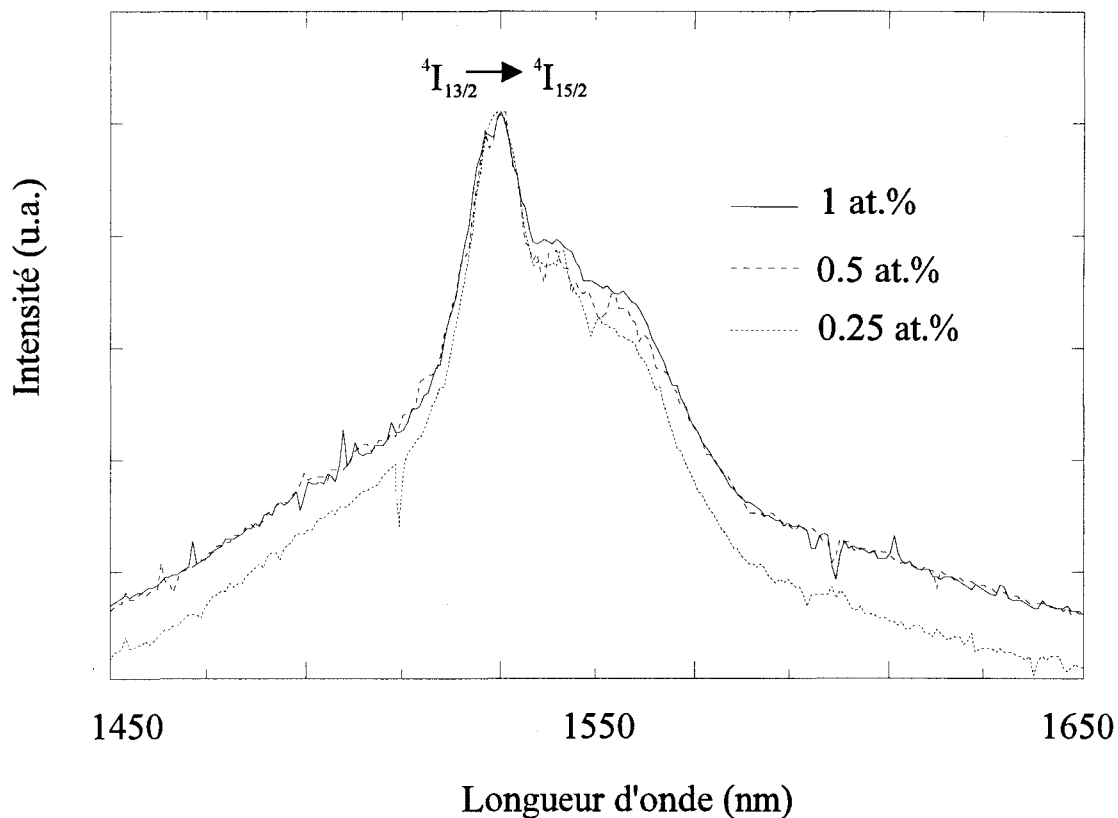


Figure II-II-13 : Emission de fluorescence à température ambiante de guides aluminosilicates (Al/Si=2) recuits à 900 °C et dopés : 0.25 at.%, 0.5 at.%, et 1 at.% erbium

Pour l'élaboration des matrices aluminosilicates, nous avons utilisé l'aluminium comme agent modificateur de l'environnement des ions erbium. Les spectres d'émission infrarouge de la figure II-II-13, font apparaître une bande située vers 1,53  $\mu\text{m}$ , dont la largeur à mi-hauteur vaut 47 nm pour les trois concentrations en erbium. Jusqu'à une concentration de 1 at.%, nous ne constatons aucune modification de la largeur de la bande d'émission infrarouge, tout comme dans le visible. La largeur de la bande à 1,53  $\mu\text{m}$  est presque deux fois plus grande que celle mesurée dans des verres silicates ou germanosilicates ( $\sim 26$  nm) [46]. Ce phénomène confirme l'hypothèse d'une meilleure

solubilité des ions de terres rares dans la matrice aluminosilicate. La bande d'émission autour de 1,53  $\mu\text{m}$  est attribuée à la transition radiative ( ${}^4\text{I}_{13/2} \rightarrow {}^4\text{I}_{15/2}$ ). Sa largeur à mi-hauteur de 47 nm, semble être caractéristique des ions erbium incorporés dans un verre aluminosilicate [46].

### IV. Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que la technique sol-gel est une voie intéressante pour l'élaboration des guides d'ondes aluminosilicate dopés aux ions erbium. Nous avons ainsi pu élaborer des guides exempts de craquelure présentant un indice de réfraction proche de 1,55 à 632,8 nm et une épaisseur variant de 1 à 2  $\mu\text{m}$ . La bonne qualité optique de nos guides a été démontrée par la faiblesse des pertes mesurées (de l'ordre de 0,2 dB/cm à 632,8 nm).

Cette qualité a été reliée à la structure amorphe de la matrice aluminosilicate recuite à 900 °C. L'évolution structurale de la matrice a été caractérisée au moyen de la spectroscopie Raman et les résultats ont été confirmés par des expériences de microscopie A.F.M. et M.E.B. .

D'autre part, l'influence de la structure et de la composition de la matrice sur la fluorescence visible et infrarouge des ions erbium a fait l'objet d'une étude approfondie. Ainsi, il a été établi que la présence d'aluminium améliore la solubilité des ions erbium dans la matrice silicate, ce qui a pour conséquence d'augmenter la largeur de la bande d'émission autour de 1530 nm jusqu'à 47 nm. De plus, l'utilisation de l'aluminium au lieu du germanium contribue à augmenter la durée de vie du niveau émetteur  ${}^4\text{I}_{13/2}$ . En effet, la constante du temps de déclin de fluorescence passe de 3,5 ms dans une matrice germanosilicate à 4,5 ms dans une matrice aluminosilicate pour des guides dopés jusqu'à 0,5 at.% en erbium.

Au vu de tous ces résultats, le choix de la matrice aluminosilicate nous semble justifié pour élaborer des amplificateurs optiques dont nous présentons l'étude dans la troisième partie de ce mémoire.

## Bibliographie

- [1] M. Benatsou, M. Bouazaoui, *Opt. Commun.*, **137**, (1997), 143.
- [2] K. Arai, H. Namikawa, T. Honda, Y. Ishii, T. Handa, *J. Appl. Phys.*, **59**, (1986), 3430.
- [3] T. Fujiyama, T. Yokoyama, M. Hori, M. Sasaki., *J. Non-Cryst. Solids*, **135**, (1991), 198.
- [4] W.L. Barnes, R.I. Laming, E.J. Tarbox, P.R. Morkel, *IEEE J. Quantum Electron.*, **27**, (1991), 1004.
- [5] W.J. Miniscalco, *IEEE J. Lightwave Techn.* **9**, (1991), 234.
- [6] W.J. Miniscalco, *Rare Earth Doped Lasers and Amplifiers*, Ed. M.J.F. Digonnet, Marcel Dekker, New-York, (1994), 19.
- [7] M.J. Lochhead, K.L. Bray, *Chem. Mater.*, **7**, (1995), 572.
- [8] S. Sen, J.F. Stebbins, *J. Non-Cryst. Solids*, **188**, (1995), 54.
- [9] M. Nogami, N. Hayakawa, N. Sugioka, Y. Abe, *J. Am. Ceram. Soc.*, **79**, (1996), 1257.
- [10] Y. Zhou, Y.L. Lam, S. Wang, *Appl. Phys. Lett.*, **71**, (1997), 587.
- [11] J.C. Pouxviel, J.P. Boilot, *J. Mater. Sci.*, **24**, (1989), 321.
- [12] A.D. Irwin, J.S. Holmgren, J. Jonas, *J. Mater. Sci.*, **23**, (1988), 2908.
- [13] G. Carturan, V. Gottardi, M. Graziani, *J. Non-Cryst. Solids*, **29**, (1978), 41.
- [14] B.E. Yoldas, *J. Mater. Sci.*, **27**, (1992), 6667.
- [15] A.R. Di Giampaolo Conde, M. Puerta, H. Ruiz, J. Lira Olivares, *J. Non-Cryst. Solids*, **147-148**, (1992), 467.
- [16] M. Nogami, *J. Non-Cryst. Solids*, **178**, (1994), 320.
- [17] G.A. Pozarnsky, A.V. McCormick, *J. Non-Cryst. Solids*, **190**, (1995), 212.
- [18] M. Nogami, Y. Abe, *J. Non-Cryst. Solids*, **197**, (1996), 73.
- [19] P. Pramanik, S.K. Saha, *J. Mater. Sci. Lett.*, **11**, (1992), 311.
- [20] B.M. De Witte, J.B. Uytterhoeven, *J. Colloid Interface Sci.*, **181**, (1996), 200.
- [21] C. Lin, J.A. Ritter, M.D. Amridis, *J. Non-Cryst. Solids*, **215**, (1997), 146.
- [22] E. Duval, A. Boukenter, B. Champagnon, *Phys. Rev. Lett.* **69**, (1986), 2052.
- [23] E. Duval, A. Boukenter, T. Achibat, *J. Phys. Condens. Matter.*, **2**, (1990), 10227.
- [24] T. Pang, *Phys. Rev. B*, **45**, (1992), 2490.
- [25] P. McMillan, B. Piriou, *J. Non-Cryst. Solids*, **53**, (1992), 279.
- [26] J.T. Kohli, R.A. Condrate, Snr., J.E. Shelby, *Phys. Chem. Glass.*, **34**, (1993), 81.
- [27] S.K. Sharma, D. Virgo, B.O. Mysen, *Am. Min.*, **64**, (1979), 779.
- [28] F.L. Galeener, *J. Non-Cryst. Solids*, **49**, (1982), 53.
- [29] F.L. Galeener, A.E. Geissberger, *Phys. Rev. B*, **27**, (1983), 6199.
- [30] J.M. Nedelec, M. Bouazaoui, S. Turrell, Soumis à *J. Non-Cryst. Solids*, (1998).
- [31] R. Brede, E. Heumann, J. Koetke, T. Danger, G. Huber, B. Chai, *Appl. Phys. Lett.*, **63**, (1993), 2030.
- [32] T. Danger, J. Koetke, R. Brede, E. Heumann, G. Huber, B. Chai, *J. Appl. Phys.* **76**, (1994), 1413.
- [33] A. Brenier, A.M. Jurdyc, *J. Lumin.*, **69**, (1996), 131.
- [34] G. Huber, E. Heumann, T. Sandrock, K. Petermann, *J. Lumin.*, **72-74**, (1997), 1.
- [35] H. Nii, K. Ozaki, M. Herren, M. Morita, *J. Lumin.*, **76-77**, (1998), 116.
- [36] J.Y. Allain, M. Monerie, H. Poignant, *Elect. Lett.*, **27**, (1991), 189.
- [37] M.P. Le Flohic, J.Y. Allain, G.M. Stephan, G. Maze, *Opt. Lett.*, **19**, (1994), 1982.

- [38] D. C. Yihong, D. Meichenin, F. Auzel, J. Phys. : Condens. Matter., **7**, (1995), 3363.
- [39] D. C. Yihong, F. Auzel, J. Phys. D : Appl. Phys., **28**, (1995), 207.
- [40] A. Brenier, A.M. Jurdyc, H. Verweij, M.T. Cohen-Adad, G. Boulon, Opt. Mater., **5**, (1996), 233.
- [41] S. Tanabe, K. Suzuki, N. Sogan, T. Hanada, J. Lumin., **65**, (1995), 247.
- [42] D. C. Yihong, D. Meichenin, F. Auzel, J. Phys. : Condens. Matter., **7**, (1995), 3363.
- [43] H.T. Amorim, M.T. De Araujo, E.A. Gouveia, A.S. Gouveia-Neto, J.A. Medeiros-Neto, A.S.B. Sombra, J. Lumin., **78**, (1998), 271.
- [44] B. Herreros, G. Lifante, F. Cusso, P. D. Townsend, P.J. Chandler, J. Lumin., **72-74**, (1997), 198.
- [45] A. Bahtat, M. Bouazaoui, M. Bahtat, C. Garapon, B. Jacquier, J. Mugnier, J. Non-Cryst. Solids, **G**, (1996), 16.
- [46] B.J. Ainslie, J. Lightwave Techn., **9**, (1991), 220.
- [47] Y. Kanno, J. Nishinp, J. Mater. Sci. Lett., **12**, (1993), 110.
- [48] S. Wallace, J.K West, L.L. Hench, J. Non-Cryst. Solids, **152**, (1992), 101.
- [49] A. Bertoluzza, C. Fagnano, M.A. Morelli, V. Gottardi, M. Guglielmi, J. Non-Cryst. Solids, **48**, (1982), 117.
- [50] F.L. Galeener, R.H. Geils, *The Structure of Non-Crystalline Materials*, ed. P.H Gaskell (Taylor & Francis, Londres), (1977), 223.

## Partie III :

Amplification optique - Etude expérimentale  
et modélisation



## Chapitre III

### Amplification optique - Etude expérimentale et modélisation

L'optimisation des paramètres pour l'élaboration des guides d'ondes planaires aluminosilicates a permis de réaliser des guides en arête et de mesurer les performances de nos composants en terme de gain optique. Ce travail est le fruit d'une collaboration étroite avec le groupe Optoélectronique dirigé par le Professeur D. Decoster à l'Institut d'Electronique et de Micro-électronique du Nord.

Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord la technique d'élaboration des guides en arête. La seconde partie traitera des performances de notre amplificateur, tant du point de vue des pertes optiques que du gain du composant. Dans la troisième partie, nous aborderons en détail la description de la méthode des faisceaux propagés (B.P.M.). Cette méthode est à la base du modèle numérique que nous avons développé. Enfin, nous confronterons les premiers résultats numériques aux données expérimentales et discuterons des perspectives qui s'en dégagent.

#### I. Elaboration des guides en arêtes

##### I. 1. Détermination des paramètres

Comme nous l'avons montré dans le chapitre I-II, la réalisation de guides bidimensionnels est nécessaire à l'obtention d'un confinement latéral de la lumière indispensable à la réalisation de composants photoniques actifs.

Du point de vue technologique, les guides en arête sont obtenus par une gravure de type R.I.E. (Reactive Ion Etching). Cette technique est parfaitement maîtrisée à l'IEMN, où ont été réalisées les structures. Nous présentons simplement les aspects généraux de la gravure R.I.E., qui n'a été pour nous qu'un outil d'élaboration.

Dans un premier temps, nous avons réalisé par la technique sol-gel des guides aluminosilicates ( $Al/Si=2$ ) dopés à 0,5 at.% en erbium. Les films sont constitués de plusieurs dépôts successifs obtenus soit par trempage soit par centrifugation, sur des substrats de silice sur silicium et densifiés à 900 °C. Les guides réalisés présentent une

épaisseur d'environ 1  $\mu\text{m}$  et un indice de réfraction de 1,540 à 632,8 nm. Nous n'avons pu mesurer les indices de réfraction des guides à 980 nm (longueur d'onde de pompe) et à 1530 nm (longueur d'onde du signal). Néanmoins, nous les avons estimés à partir de la relation de dispersion proposée par De Vore [1] :

$$n^2 = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} \quad (\text{III} - 1)$$

Nous avons mesuré les indices de réfraction de nos guides par la technique M-lines à l'aide d'un laser à Argon pour les longueurs d'onde 457,8 nm, 488 nm, 501,7 nm, 514,5 nm et avec un laser He-Ne à 632,8 nm. Les paramètres A, B, C sont déterminés de manière empirique. Ils nous permettent d'estimer, à partir de l'équation III-1, les indices de réfraction à 980 nm et à 1530 nm qui sont respectivement 1,525 et 1,518. Compte tenu de l'épaisseur des guides, seul le mode  $\text{TE}_0$  peut être guidé.

La seconde étape consiste à déposer sur le film une couche de silice d'épaisseur 1  $\mu\text{m}$  par P.E.C.V.D., puis à graver cette couche de silice. La profondeur de gravure est déterminée au moyen de la technique des indices effectifs (Annexe I). La largeur des canaux  $W = 6 \mu\text{m}$  est imposée par les masques dont nous disposons.

### I. 2. Les différentes étapes de la gravure

La méthode de gravure est schématisée sur la figure III-1. Tout d'abord, nous déposons sur le substrat de silice, une couche de résine photosensible (1). Celle-ci est ensuite exposée à un rayonnement U.V. ( $\lambda=365 \text{ nm}$ ) au travers d'un masque percé du motif à graver (2). Les composants sont alors placés dans une cellule au sein de laquelle le substrat de silice subit la gravure (4). La résine est finalement dissoute dans de l'acétone (5).

La cellule de gravure (figure III-2) est un bâti sous vide à l'intérieur duquel se trouvent deux électrodes reliées à une source radiofréquence. Après avoir placé les échantillons à graver sur l'électrode inférieure, on réalise un vide poussé. Un mélange de gaz ( $\text{CHF}_3$ ,  $\text{CF}_4$ ) est alors introduit dans la cellule à une pression ajustable. Les gaz d'attaque sont ionisés et dissociés par l'émission de la source R.F. et constituent le plasma. L'électrode, sur laquelle sont posés les échantillons acquiert une charge négative. Les composants sont alors sujets au bombardement des cations du plasma. La vitesse de gravure dépend de divers paramètres tels que la pression des gaz dans la cellule et la puissance de l'émission RF. A pression élevée, la gravure est rapide mais l'état de surface des zones gravées est perturbé. La puissance de l'émission RF influence, quant à elle, la nature de la gravure : chimique à faible puissance et physique à haute puissance. De plus, à forte puissance, la gravure revêt un caractère plus anisotrope, c'est à dire que les échantillons seront gravés préférentiellement dans la direction verticale. Dans le cas de la silice, les paramètres optimaux sont les suivants : une pression de 50 mTorr, et une puissance R.F. de 100 W. Ces valeurs induisent une vitesse de gravure de 45 nm/min.

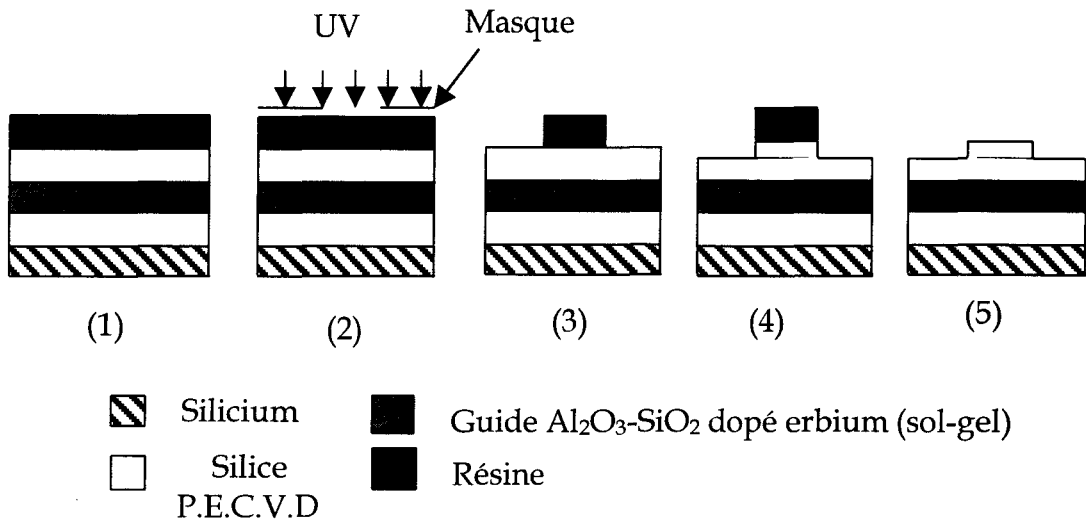


Figure III-1 : Formation des guides tridimensionnels par gravure RIE.

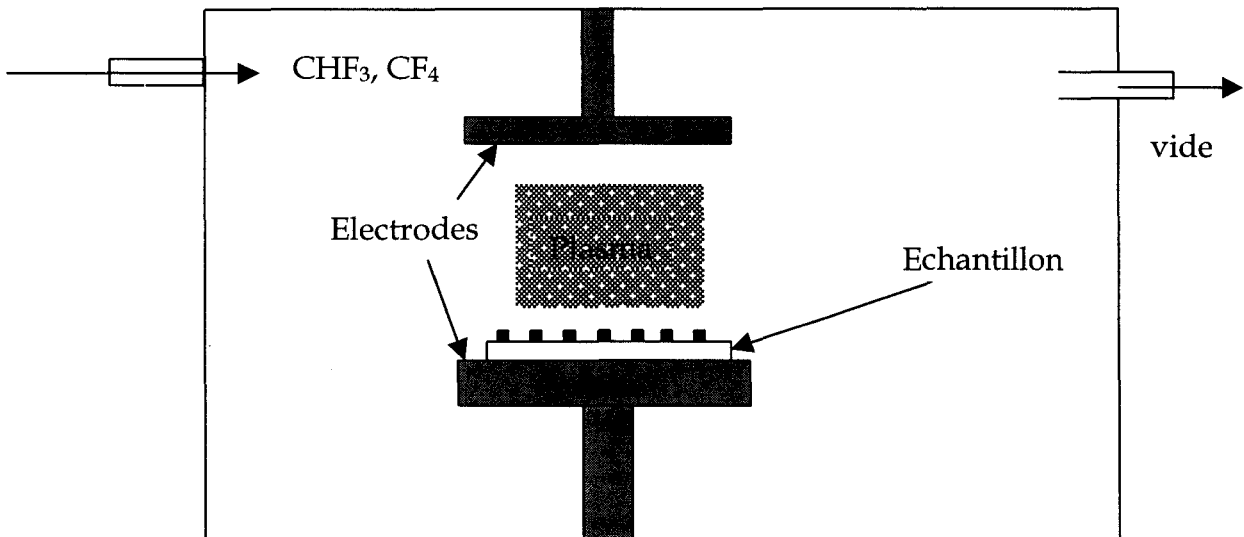


Figure III-2 : Cellule de gravure R.I.E. .

L'épaisseur de la gravure est contrôlée de manière continue par une méthode interférométrique à l'aide d'un laser émettant à 6570 nm.

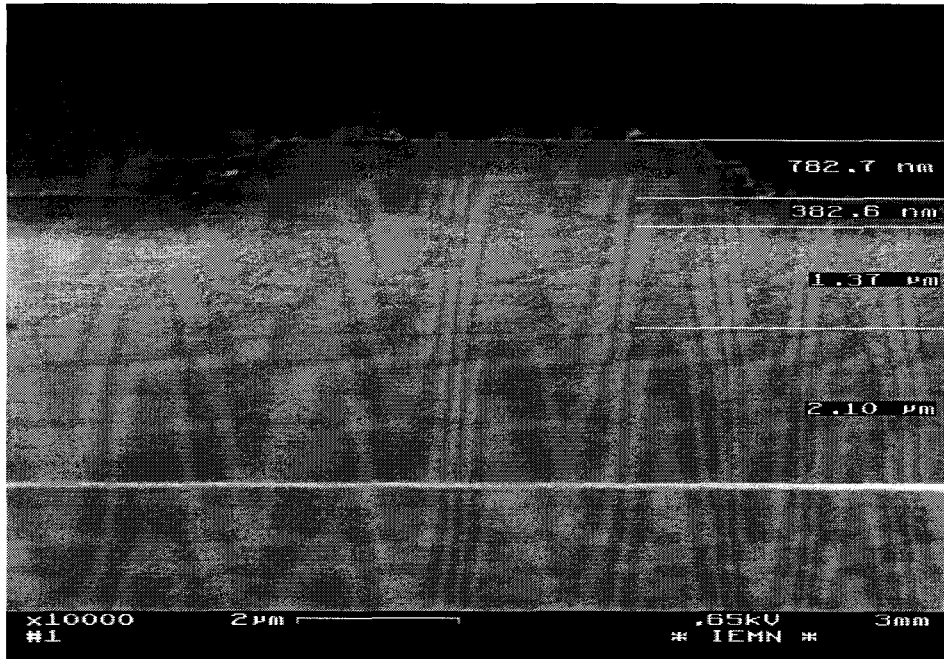
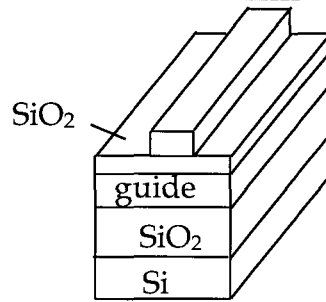


Figure III-3 : Photographie MEB de la tranche d'un guide en arête.

## II. Caractérisation et performances de l'amplificateur

### II. 1. Banc de mesures

Le dispositif expérimental présenté sur la figure III-4 est utilisé à la fois pour mesurer les pertes et pour caractériser l'amplification optique.

L'émission de pompe, à la longueur d'onde de 980 nm, est fournie par un laser Saphir-Titane, Cohérent. En ce qui concerne le signal à amplifier, nous disposons de deux sources laser. Un laser à semi-conducteur (HP 81554 SM) émettant à 1558,8 nm et un laser accordable (Tunix accordable, Photonetics) sur la gamme de longueurs d'onde comprise entre 1460 nm et 1580 nm. Le signal est injecté dans un isolateur présentant un taux d'isolation supérieur à 40 dB. Le multiplexage des deux longueurs d'onde (pompe et signal) est réalisé grâce à un multiplexeur de type WDM (Wavelength Division Multiplexer). Les deux faisceaux multiplexés sont injectés dans le composant par la tranche. L'autre extrémité de l'amplificateur est couplée à une fibre monomode, elle-même connectée à un démultiplexeur qui permet de séparer le signal et le résidu de pompe. La

puissance du faisceau de pompe ou de signal est déterminée à l'aide d'un mesureur de puissance optique (HP 81532A).

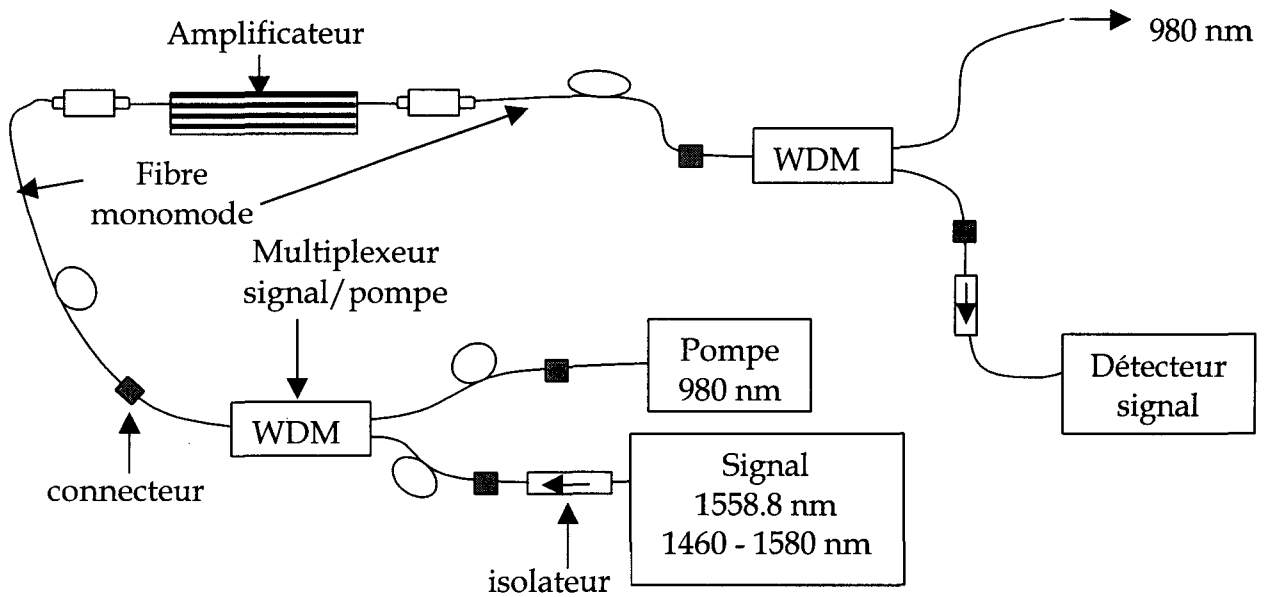


Figure III-4 : Dispositif de caractérisation des performances de l'amplificateur.

## II. 2. Mesure de pertes

Les pertes, au sens où nous l'entendons, englobent les pertes de couplage, les pertes de propagation et les pertes d'absorption. Afin de déterminer les pertes de couplage, nous injectons un faisceau à la longueur d'onde 1319,2 nm (HP 81554A SM) (les ions erbium ne présentent pas de raie d'absorption à cette longueur d'onde). Les seules causes de pertes sont liées au couplage fibre / guide et à la propagation dans le guide. Nous avons estimé les pertes de propagation à 0,5 dB/cm (ce qui représente la plus haute valeur mesurée). Pour déterminer les pertes de couplage, nous mesurons la puissance  $I_{s1}$  en sortie de la fibre d'injection. Nous connectons ensuite cette fibre à un canal en arête et nous récupérons le faisceau à la sortie du canal à l'aide d'une fibre monomode identique à celle utilisée en entrée. On mesure la puissance  $I_{s2}$  à l'extrémité de cette seconde fibre. Les pertes de couplages sont données par :

$$\alpha_c = 10 \cdot \log\left(\frac{I_{s2}}{I_{s1}}\right) - \alpha_p \quad (\text{III} - 2)$$

où  $\alpha_p$  représente les pertes de propagation.

Les mesures effectuées sur une guide de longueur 10 mm, conduisent à des pertes de couplage de 9 dB par face. Ces pertes élevées ont pour origine les imperfections de surface (même après clivage et polissage) au niveau de la tranche des composants. De plus, pour minimiser les pertes, il faut que le mode issu de la fibre soit le mieux adapté au mode du guide. Le faisceau, en sortie de la fibre, est supposé de profil gaussien. Il n'a pas été possible d'observer la forme des faisceaux en sortie des canaux. Néanmoins, à partir d'une modélisation (analyse modale), nous avons pu déterminer l'allure du mode  $TE_0$  se propageant dans notre structure à 980 nm et à 1530 nm (figure III-5). Nous pouvons remarquer que la lumière est relativement bien confinée dans la couche active. Cependant, la forme elliptique des modes peut également être à l'origine des pertes de couplage élevées.

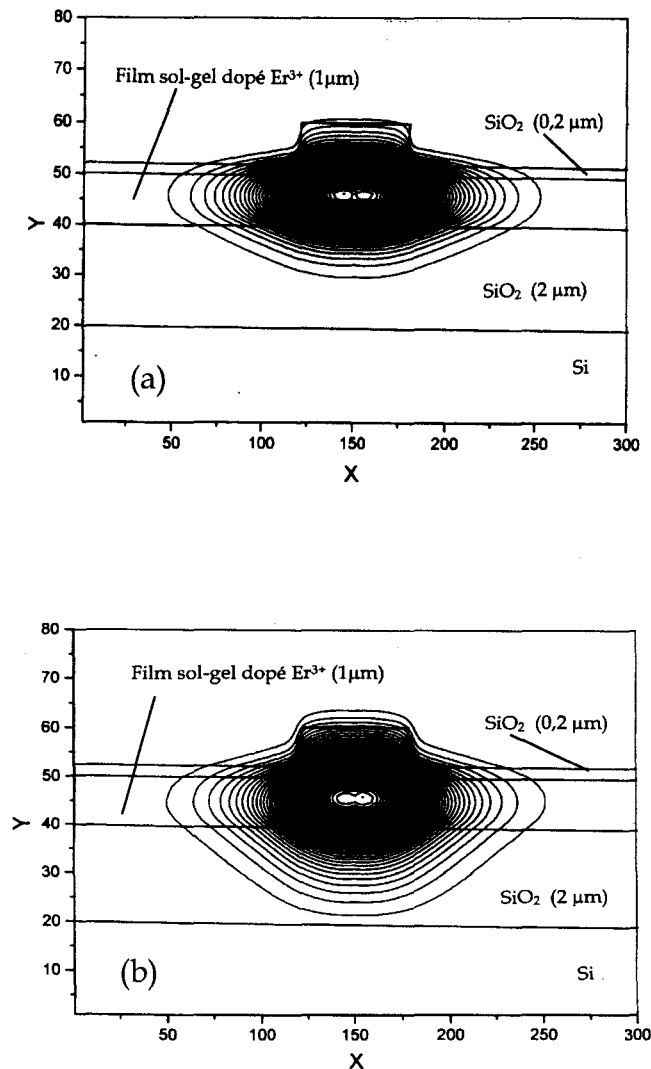


Figure III-5 : Profils calculés des modes du guide à 980 nm (a) et à 1530 nm (b) dans un guide d'onde d'épaisseur 1 μm. (échelle : 10 points=1 μm).

La détermination expérimentale des pertes d'absorption à la longueur d'onde du signal ou de la pompe utilise le même dispositif. En supposant que les pertes de couplage et les pertes de propagation sont identiques à 1558,8 nm, 1530 nm, et 1319,2 nm, nous avons mesuré un coefficient d'absorption  $\alpha_{\text{abs}} = 4,0$  dB/cm à 1558,8 nm et  $\alpha_{\text{abs}} = 4,7$  dB/cm à 1530 nm. Pour ce qui est de la pompe (à 980 nm), nous avons estimé les pertes de couplage à 7,75 dB par face et le coefficient d'absorption à environ  $\alpha_{\text{abs}} = 2$  dB/cm.

### II. 3. Mesure du gain d'amplification

Les mesures d'amplification ont été effectuées pour deux longueurs d'onde de signal. Les puissances de signal injectées sont de l'ordre de 5  $\mu$ W (afin de satisfaire aux conditions de l'approximation faible signal). Le laser Saphir-Titane génère un faisceau de pompe dont la puissance maximale mesurée en sortie de la fibre d'injection est égale à 380 mW.

Les résultats peuvent être présentés sous forme de gain interne :

$$G_{\text{int}} = LR - \alpha_{\text{abs}} \quad (\text{III-3a})$$

où le facteur de réduction de pertes LR est défini par :

$$LR = 10 \cdot \log \left( \frac{I_{\text{sp}}}{I_{\text{s}}} \right) \quad (\text{III-3b})$$

Dans la relation (III-3b),  $I_{\text{sp}}$  représente la puissance mesurée à la longueur d'onde du signal lorsque la pompe et le signal sont injectés,  $I_{\text{s}}$  est la puissance en sortie du signal seul. L'émission spontanée amplifiée mesurée étant inférieure à 2% de  $I_{\text{sp}}$ , nous la négligeons dans la définition du gain interne.

Pour obtenir le gain net, il faut retrancher au gain interne les pertes de couplage et de propagation à la longueur d'onde du signal :

$$G_{\text{net}} = G_{\text{int}} - \alpha_{\text{insertion}} \quad (\text{III-4})$$

A l'aide d'un laser accordable, nous avons enregistré l'évolution du gain interne avec la variation de longueur d'onde du signal (figure III-6). Nous pouvons constater que le gain est maximum à la longueur d'onde de 1530 nm. Ce résultat est en bon accord avec le maximum de fluorescence observé sur le spectre de la figure II-II-13 présentée dans le chapitre II-II.

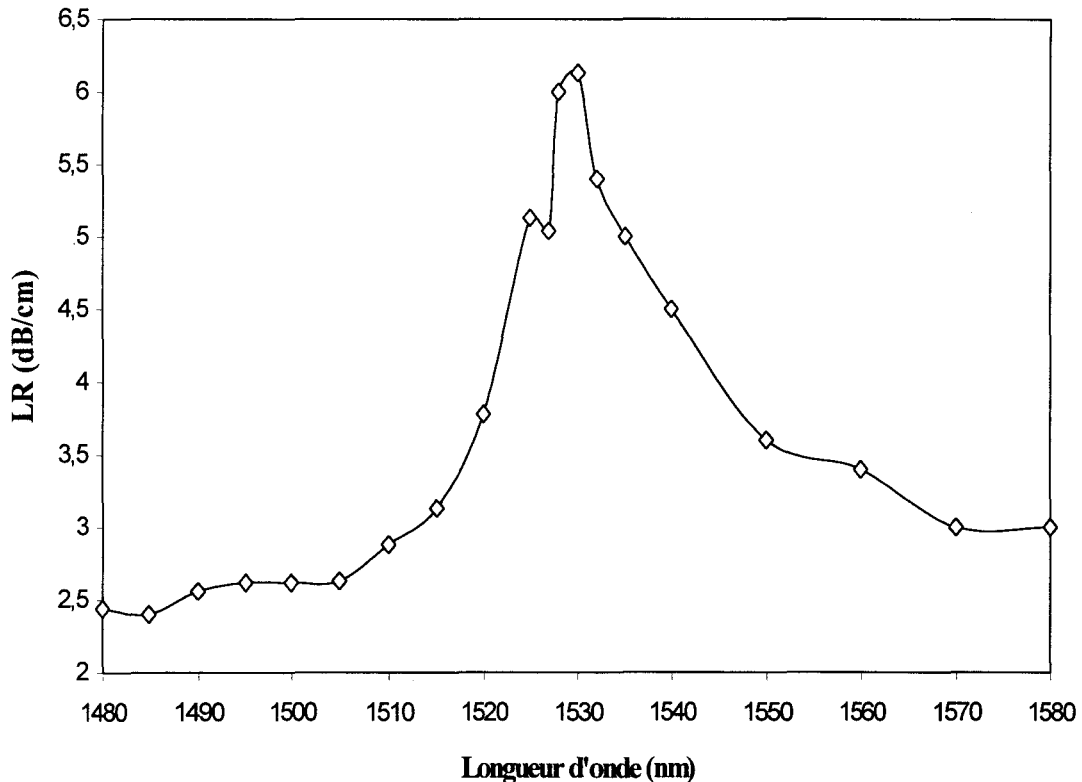


Figure III-6 : Evolution du facteur de réduction de pertes ( $LR = 10 \cdot \log(I_{sp}/I_s)$ ) en fonction de la longueur d'onde du signal pour une puissance de pompe de 50 mW à 980 nm .  
Longueur de propagation = 10 mm.

Les meilleurs résultats ont été obtenus pour des guides aluminosilicates de longueur 1 cm, dopés à 0,5 at.% erbium. Pour la longueur d'onde du signal 1558,8 nm, nous avons estimé les puissances de pompe égales à 30 mW et 64 mW (dans deux canaux différents) et avons mesuré des gains internes respectifs de -1,0 dB/cm et 0,77 dB/cm. A 1530 nm, pour une puissance de pompe de 50 mW, le gain interne mesuré vaut 1,47 dB/cm. Le gain net est estimé à  $-8,03 \text{ dB/cm} < G_{net} < -7,73 \text{ dB/cm}$ , lorsque les pertes de propagation sont comprises entre 0,5 dB/cm et 0,2 dB/cm.



### III. Modélisation du comportement de l'amplificateur optique

Le schéma synoptique du modèle développé est le suivant :

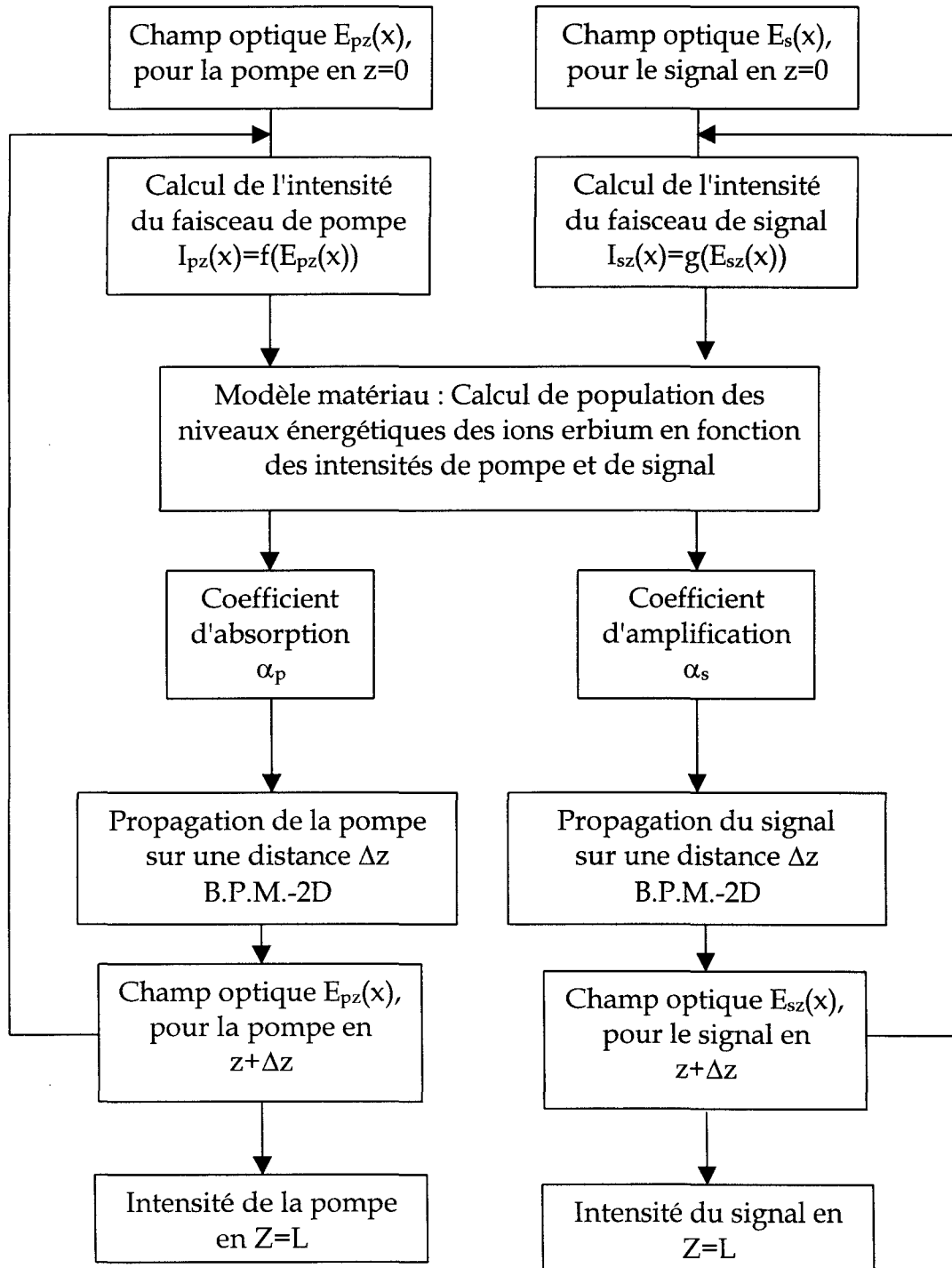


Figure III-7 : Schéma synoptique du programme de simulation.

Le modèle développé au cours des paragraphes suivants est basé sur le calcul des populations des états électroniques des ions erbium, intervenant dans le processus d'amplification. L'évolution d'occupation de ces états au cours de la propagation fait intervenir directement le recouvrement des faisceaux de pompe et de signal ainsi que leur confinement au sein de la zone active de l'amplificateur. Nous décrivons les processus d'absorption (de la pompe et du signal), et l'amplification (du signal) par l'intermédiaire de la méthode des faisceaux propagés (B.P.M.). Le programme de simulation mis au point peut être décomposé en trois parties :

- Analyse modale permettant de décrire les champs optiques à la longueur d'onde de la pompe et du signal, à partir de la méthode des indices effectifs.

- Etablissement d'un modèle "matériau" décrivant le comportement énergétique des ions en fonction des intensités de pompe et de signal et la détermination des coefficients d'absorption et d'amplification.

- Mise au point d'un algorithme de calcul de la propagation basé sur la B.P.M. à deux dimensions (B.P.M. 2D), pour le signal et pour la pompe.

### III. 1. L'outil de modélisation : la Méthode des Faisceaux Propagés (B.P.M.)

#### III. 1. 1. Introduction

La première forme de B.P.M., développée par Feit et Fleck [2], utilise la Transformation de Fourier rapide (B.P.M.-F.F.T.). Cette méthode consiste à décomposer le champ électromagnétique initial (à  $z=0$ ) en ondes planes, puis à propager chaque onde sur une distance  $\Delta z$ . On fait ensuite la somme des ondes planes pour recomposer le champ à  $z+\Delta z$ . La B.P.M.-F.F.T. a permis, notamment, l'étude de la propagation guidée dans des fibres optiques multimodes [3] et dans des structures absorbantes. Elle est également utilisée pour l'analyse des pertes par radiation dans des composants tels que les jonctions Y [4], les guides courbes [5], les modulateurs électro-optiques [6] et les intersections entre guides [7]. Cette B.P.M., fondée sur la transformée de Fourier, connaît cependant des limites qui ont plusieurs causes. En particulier, le pas de calcul doit être d'autant plus faible que le contraste d'indice dans la structure est élevé. Cela conduit à des temps de calcul souvent très longs [8].

Au début des années 90, de nouvelles approches de la B.P.M., basées sur l'utilisation des différences finies, sont apparues. Elles ont permis de résoudre les équations de propagation à l'aide du schéma des différences finies à l'ordre 2 [9]. Plus récemment, à partir de nouvelles équations, Helfert et al. [10] ont pu exprimer le champ électrique en fonction d'opérateurs séparés.

Chacune de ces méthodes peut traiter des structures bidimensionnelles ( $x, z$  - 2D, où  $z$  est la direction de propagation) ou tridimensionnelles ( $x, y, z$  - 3D). La B.P.M. - 3D fournit évidemment des résultats plus proches de la réalité, mais elle nécessite également

des temps de calcul très longs. Dans le cas de confinements latéraux faibles, il est plus judicieux d'utiliser la B.P.M. -2D. Munowitz et al. [11], étudiant le couplage entre deux guides et la séparation de faisceaux dans une jonction Y ont montré que les résultats obtenus par une simulation 2D et 3D ne diffèrent pas de façon significative.

### III. 1. 2. Concepts généraux

La B.P.M. est un outil classique de simulation de la propagation des faisceaux. Cette méthode permet de calculer le champ électromagnétique à l'intérieur d'une structure, aussi complexe soit-elle, à partir du champ électromagnétique incident. Ce calcul est effectué en divisant la structure en tranches espacées de  $\Delta z$  et en résolvant les équations de propagation dans chaque tranche  $j+1$  à partir des champs en  $j$ .

En toute rigueur, les équations de propagation à résoudre sont les équations vectorielles présentées au chapitre I-II. La complexité de ces équations implique en pratique quelques approximations. Les plus utilisées sont l'approximation scalaire et l'approximation paraxiale.

L'approximation scalaire suppose qu'il n'y a pas de couplage entre les différentes composantes du champ, c'est à dire que si un faisceau polarisé est injecté dans un guide d'onde optique, sa polarisation reste la même tout au long de la propagation. On considère donc le champ électromagnétique comme le produit d'un scalaire et d'un vecteur unitaire de direction constante. Les équations vectorielles se réduisent ainsi à des équations scalaires. Cette approximation revient à considérer que la propagation dans une structure bidimensionnelle a lieu selon des modes quasi-TE ou quasi-TM, proches des modes TE ou TM d'un guide plan.

L'approximation paraxiale suppose de faibles variations de l'amplitude du champ pendant la propagation. Même si cette approximation simplifie considérablement les équations, son utilisation n'a que très peu d'influence sur le résultat final [12]. Cela autorise donc l'emploi de l'approximation paraxiale pour décrire une large gamme de structures en optique intégrée.

### III. 1. 3. Expression des équations de propagation dans un guide plan selon les approximations scalaire et paraxiale.

Le modèle développé ne tient compte que de la propagation d'un mode quasi-TE dans une structure bidimensionnelle. Dans ce cas, la seule composante non nulle du champ électrique est  $E_y(x, z)$ . Etant donné l'invariance de la structure suivant la direction  $y$ , l'équation de propagation se résume à :

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + k_0^2 n^2(x, z) \right] E_y(x, z) = 0 \quad (\text{III} - 5)$$

Le champ électrique, se propageant suivant z, peut s'écrire :

$$E_y(x, z) = E_y^0(x, z) \exp(-j\beta z) \quad (\text{III} - 6)$$

L'équation (III-5) devient alors :

$$\frac{\partial^2}{\partial x^2} E_y^0(x, z) + \left( \frac{\partial^2}{\partial z^2} - 2j\beta \frac{\partial}{\partial z} + k_0^2 n^2(x, z) - \beta^2 \right) E_y^0(x, z) = 0 \quad (\text{III} - 7)$$

Dans l'approximation paraxiale, le terme en dérivée seconde du champ par rapport à z est négligeable :

$$\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} E_y^0(x, z) \right| \ll \left| 2j\beta \frac{\partial}{\partial z} E_y^0(x, z) \right| \quad (\text{III} - 8)$$

L'équation finale s'écrit :

$$2j\beta \frac{\partial}{\partial z} E_y^0(x, z) = \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + k_0^2 n^2(x, z) - \beta^2 \right) E_y^0(x, z) \quad (\text{III} - 9)$$

### III. 1. 4. Principe de la B.P.M. aux différences finies à 2 dimensions

Le schéma des différences finies permet de développer les dérivées d'une fonction en un point à partir des valeurs de cette fonction. On montre à partir d'un développement de Taylor que les premières dérivées d'une fonction s'écrivent [13] :

$$\frac{df(x)}{dx} = \frac{f(x - \Delta x) - f(x + \Delta x)}{2\Delta x} + 0(\Delta x^2) \quad (\text{III} - 10)$$

$$\frac{d^2f(x)}{dx^2} = \frac{f(x - \Delta x) + f(x + \Delta x) - 2f(x)}{\Delta x^2} + 0(\Delta x^4) \quad (\text{III} - 11)$$

Pour résoudre l'équation de propagation (III-9), il convient donc de discrétiser la structure à simuler. Dans notre cas, nous considérons une structure bidimensionnelle (x, z), avec une fenêtre de calcul de largeur  $W_x$  ( $W_x = 3W$  où  $W$  est la largeur d'un canal), découpée en  $M$  points, et une longueur de propagation  $W_z$  discrétisée en  $N$  tranches distantes de  $\Delta z$ .

A partir des équations (III-9, 10, et 11), il est possible de réécrire l'équation d'onde du mode quasi TE [9] :

$$j \frac{\partial E(x_m, z_n)}{\partial z} = \frac{1}{2\beta} \left\{ \frac{E(x_{m+1}, z_n) + E(x_{m-1}, z_n)}{\Delta x^2} - \left[ \frac{2}{\Delta x^2} - (k_0^2 n^2(x_m, z_n) - \beta^2) \right] E(x_m, z_n) \right\} \quad (\text{III-12})$$

avec  $m = 1, \dots, M$   $n = 1, \dots, N$ .

Le champ en  $z_n + \Delta z$  peut s'exprimer en fonction du champ en  $z_n$ , par intégration de l'équation (I-12). On calcule les intégrales des membres de droite par la méthode des trapèzes [13]. L'équation (III-12) se transforme ainsi en :

$$-a'E_{m-1}(z+\Delta z) + b_m E_m(z+\Delta z) - a E_{m-1}(z+\Delta z) = -a'E_{m-1}(z) + c_m E_m(z) - a E_{m-1}(z) \quad (\text{III-13})$$

avec

$$a = a' = \frac{\Delta z}{\Delta x^2} \quad \begin{pmatrix} b_m \\ c_m \end{pmatrix} = \pm 2a \mp \frac{\Delta z}{2} k_0^2 [n_m^2(z + \Delta z) - n_0^2] + 2jk_0 n_{\text{eff}}$$

Cette équation correspond à un système tridiagonal d'équations linéaires :

$$\begin{pmatrix} b_1 & -a' & 0 & \dots & 0 \\ -a & b_2 & -a' & 0 & \dots \\ 0 & \dots & \dots & \dots & 0 \\ \dots & 0 & & b_{M-1} & -a' \\ 0 & \dots & 0 & -a & b_M \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_1(z + \Delta z) \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ E_M(z + \Delta z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} y_1(z) \\ \dots \\ \dots \\ \dots \\ y_M(z) \end{pmatrix}$$

avec  $y_i(z) = a E_{m-1}(z+\Delta z) + c_m E_m(z+\Delta z) - a E_{m-1}(z+\Delta z)$ . Ce système est résolu par la méthode du double balayage de Choleski [14].

### III. 2. Les différentes étapes de calcul du logiciel

#### III. 2. 1. Détermination des conditions initiales (en $z=0$ )

Comme le montre le schéma de la figure III-7, la première étape de calcul consiste à déterminer les champs initiaux de pompe et de signal. Nous avons utilisé pour cela un programme d'analyse modale, mis au point par Joseph Harari (IEMN). Cette analyse est basée sur le calcul des indices effectifs des modes. L'algorithme nous permet de déterminer la forme du mode "TE<sub>0</sub>" se propageant dans la structure à la longueur d'onde de pompe ou de signal. Le résultat nous autorise à considérer que les modes (TE<sub>0</sub> pompe et signal) du guide comme des modes gaussiens de largeur  $l_p$  et  $l_s$ . Ces formes gaussiennes servent donc de conditions initiales pour la B.P.M. -2D. L'étude de leur propagation dans le guide nous amène à ajuster la largeur des faisceaux incidents de manière à éviter qu'ils ne se déforment. En effet, des déformations peuvent provenir de réflexions sur les bords de la structure.

Le problème des conditions limites est particulièrement important dans les calculs en B.P.M. En effet, si la largeur de la fenêtre de calcul est trop faible, les faisceaux optiques sont réintroduits par des réflexions spéculaires à la limite de la fenêtre au lieu d'en sortir. Ces réflexions parasites peuvent perturber le résultat final du calcul. Pour diminuer cet effet, l'utilisation de matériau absorbant aux limites n'est pas suffisante. Dans le cadre d'une approche bidimensionnelle et en choisissant une fenêtre de calcul suffisamment large, on trouve aisément un compromis entre le temps de calcul et l'exactitude des résultats [14].

La seconde étape consiste à calculer l'intensité des faisceaux en fonction de l'amplitude des champs injectés.

#### III. 2. 2. Expression de l'intensité des faisceaux

Dans le cas d'une onde électromagnétique polarisée TE, la puissance portée par cette onde est donnée par :

$$P = \iint \vec{P} \cdot dx \cdot dy \cdot \vec{z} \quad (\text{III} - 14)$$

où le vecteur de Poynting vaut :

$$\vec{P} = \frac{1}{2} \text{Re}(\vec{E} \wedge \vec{H}^*) \quad (\text{III} - 15)$$

Pour une polarisation TE, les seules composantes non nulles du champ électromagnétiques sont  $E_y$ ,  $H_x$ , et  $H_z$ . Le produit vectoriel peut alors s'écrire :

$$\vec{E} \wedge \vec{H}^* = \begin{pmatrix} 0 \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} H_x^* \\ 0 \\ H_z^* \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_y H_z^* \\ 0 \\ -E_y H_x^* \end{pmatrix}$$

A partir des équations de Maxwell (voir chapitre I-II), on montre que :

$$E_y H_z^* = E_y \left( -\frac{j}{\mu\omega} \frac{\partial E_y^*}{\partial x} \right) \quad (\text{solution imaginaire})$$

$$-E_y H_x^* = \frac{\beta}{\mu\omega} E_y E_y^* \quad (\text{solution réelle})$$

La puissance portée par l'onde vaut donc :

$$\bar{P} = \frac{1}{2} \iint \frac{\beta}{\mu\omega} E_y E_y^* \cdot \vec{z} = \iint I \cdot d\vec{S} \quad (\text{III - 16})$$

L'intensité du faisceau en  $W/m^2$  est donnée par la relation :

$$I = \frac{1}{2} \frac{\beta}{\mu\omega} E_y E_y^* = \frac{1}{2} \varepsilon_0 n c E_y E_y^* \quad (\text{III - 17})$$

L'expression générale qui décrit l'évolution de l'intensité du faisceau au cours de la propagation suivant  $z$  vérifie l'équation :

$$\frac{dI_i(x, z)}{dz} = [\alpha_i(x) - \gamma_i] I_i(x, z) \quad (\text{III - 18})$$

où  $i = s$  ou  $p$  (signal ou pompe),

$\alpha_i$  représente le coefficient d'absorption pour la pompe ( $\alpha_p < 0$ ) ou le coefficient d'amplification ( $\alpha_s > 0$ ) ou d'atténuation ( $\alpha_s < 0$ ) pour le signal,

$\gamma_i$  représente les pertes de propagation pour la pompe ou le signal.

En intégrant l'équation (III-18), on peut encore écrire :

$$I_i(x,z) = I_i(x,z=0) \exp[\alpha_i(x) - \gamma_i]z \quad (\text{III-19})$$

La B.P.M. permet de décrire la propagation des faisceaux en terme de champ. Il convient donc de réécrire les équations de propagation en incorporant les coefficients d'absorption et d'amplification.

A partir des équations (III-17) et (III-19), on montre que les champs s'expriment comme :

$$E(x,z) = E_0(x,z) \exp\left\{-jk_0z\left[N_{\text{eff}} + j\left(\frac{\alpha - \gamma}{2k_0}\right)\right]\right\} \quad (\text{III - 20})$$

Les processus d'absorption ou d'amplification peuvent être interprétés comme des variations de la partie imaginaire de l'indice effectif  $N_{\text{eff}}$  correspondant au mode se propageant dans le guide. En reportant ces variations dans les coefficients  $c_m$  et  $b_m$ , il est non seulement possible de simuler la propagation des faisceaux de pompe et de signal dans la structure mais également de modéliser leur absorption ou leur amplification. Or, la détermination des coefficients d'absorption et d'amplification nécessite la prise en compte du comportement des ions excités par les faisceaux incidents. Nous avons pour cela établi un modèle "matériau" basé sur les variations des populations des niveaux d'énergie au cours de la propagation dans le guide.

### III. 2. 3. Etablissement du modèle "matériau"

#### a. L'absorption

Dans le chapitre I-III, nous avons mis en évidence l'existence de niveaux énergétiques et la possibilité pour les électrons des ions de terres rares de changer de niveaux par des transitions radiatives ou non radiatives. Dans le cas du système à deux niveaux, nous avons montré que la variation de population  $N_1$  du niveau fondamental  $E_1$  peut s'écrire :

$$\frac{dN_1}{dt} = B_{21}N_2\rho(\nu) + A_{21}N_2 - B_{12}N_1\rho(\nu) \quad (\text{III - 21})$$

Par conséquent, la variation du nombre de photons dans la direction de propagation Oz vaut :

$$\frac{c}{n} \frac{dN_1}{dz} = B_{21}N_2\rho(\nu) - B_{12}N_1\rho(\nu) \quad (\text{III - 22})$$



Si nous considérons que chaque photon absorbé (par unité de temps) excite un atome, nous pouvons écrire :

$$\frac{dI(\nu)}{dz} = h\nu \frac{dN_1}{dz} \quad (\text{III - 23})$$

où  $I(\nu)$  est l'intensité du faisceau incident, telle que :

$$\rho(\nu) = I(\nu)g(\nu)$$

$$\int g(\nu)d\nu = 1 \quad (\text{III - 24})$$

où  $g(\nu)$  est un facteur de forme normalisé.

L'équation (III-22) devient alors :

$$\frac{1}{I(\nu)} \frac{dI(\nu)}{dz} = -\frac{h\nu n}{c} (B_{12}N_1 - B_{21}N_2)g(\nu) \quad (\text{III - 25})$$

En intégrant cette équation, on retrouve la loi de Beer-Lambert. Les termes  $\alpha_i$  de l'équation (III-19) sont facilement identifiables sous la forme :

$$\alpha_i = -\frac{h\nu n}{c} (B_{12}N_1 - B_{21}N_2)g(\nu) \quad (\text{III - 26})$$

Si l'absorption est le processus dominant, le coefficient d'absorption est donné par :

$$\alpha_{\text{abs}} = -\frac{h\nu n}{c} (B_{12}N_1)g(\nu) = -\sigma_{12}N_1 \quad (\text{III - 27})$$

où  $\sigma_{12}$  est la section efficace d'absorption (en  $\text{m}^2$ ).

La probabilité d'absorption  $W_{12}$  est donnée par :

$$W_{\text{abs}} = W_{12} = \frac{\sigma_{12}I(\nu)}{h\nu} \quad (\text{III - 28})$$

**b. L'émission**

Dans le cas où l'inversion de population entre les niveaux  $E_1$  et  $E_2$  est réalisée, les termes  $\alpha_i$  deviennent positifs et l'intensité du faisceau augmente. Le coefficient d'émission est :

$$\alpha_{em} = \frac{h\nu n}{c} (B_{21}N_2)g(\nu) = \sigma_{21}N_2 \quad (\text{III - 29})$$

où  $\sigma_{21}$  est la section efficace d'émission.

La probabilité d'émission  $W_{21}$  valent respectivement :

$$W_{em} = W_{21} = \frac{\sigma_{21}I(\nu)}{h\nu} \quad (\text{III - 30})$$

La puissance stimulée générée ( $P$ ) par unité de volume ( $Sdz$ ) vérifie la relation :

$$\frac{P}{Sdz} = (W_{21}N_2 - W_{12}N_1)h\nu = (\sigma_{21}N_2 - \sigma_{12}N_1)I(\nu) \quad (\text{III - 31})$$

où  $S$  est la surface d'une section droite du composant et  $dz$  une longueur élémentaire.

L'équation de propagation suivant  $Oz$  pour l'intensité lumineuse du faisceau à la fréquence  $\nu$  s'écrit finalement :

$$\frac{dI(\nu)}{dz} = [\sigma_{21}N_2 - \sigma_{12}N_1 - \gamma(\nu)]I(\nu) \quad (\text{III - 32})$$

c. Système à trois niveaux : cas des ions erbium

La figure suivante présente le schéma général des niveaux d'énergie participant aux processus d'excitation-déexcitation dans les ions erbium [15-17]. Ce modèle tient compte des divers processus « parasites » pouvant perturber l'amplification à la longueur d'onde du signal. Parmi ces processus, on peut citer l'absorption dans l'état excité (E.S.A.), l'émission spontanée amplifiée (A.S.E.) et les processus de transfert entre ions qui génèrent le phénomène d'Up-conversion.

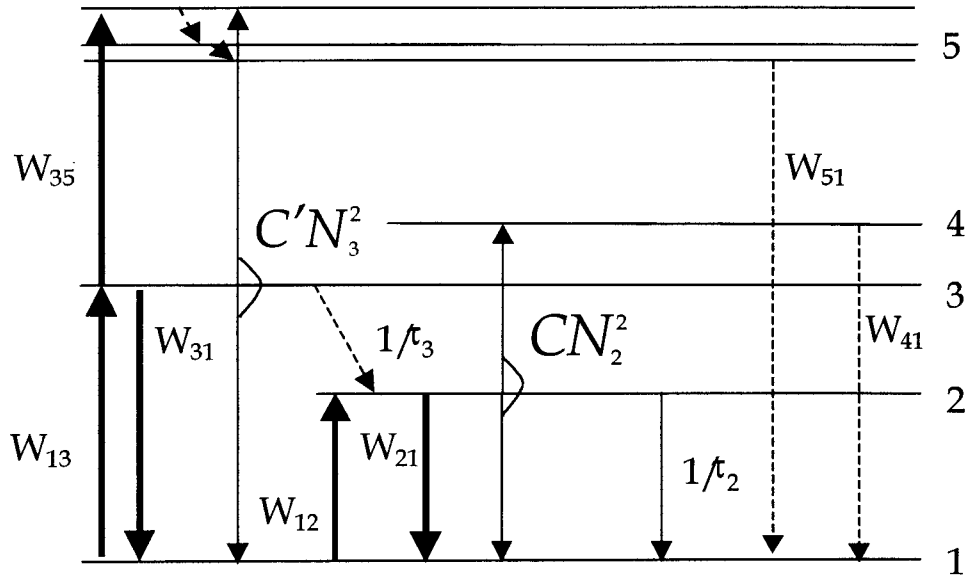
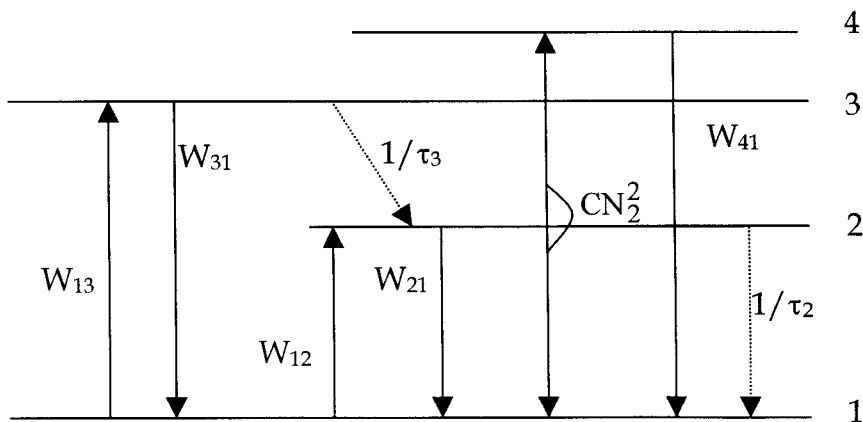


Figure III-8 : Schéma des transitions intervenant dans l'amplification optique.

Afin de permettre une résolution analytique des équations d'états, nous avons volontairement simplifié le diagramme général en ne tenant plus compte que du phénomène d'Up-conversion. Cette approximation nous permet de poser les bases d'un premier modèle, certes simplifié, mais qui nous permet d'étudier le comportement phénoménologique de notre amplificateur.



A partir du diagramme précédent, nous pouvons déterminer l'évolution des population  $N_1, N_2, N_3, N_4$ , des niveaux d'énergies 1 ( $^4I_{15/2}$ ), 2 ( $^4I_{13/2}$ ), 3 ( $^4I_{11/2}$ ) et 4 ( $^4I_{9/2}$ ) qui s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_1}{dt} = -(W_{13} + W_{12})N_1 + (W_{21} + \frac{1}{\tau_2})N_2 + W_{31}N_3 + \frac{1}{2}CN_2^2 + W_{41}N_4 \quad (\text{III-33}) \\ \frac{dN_2}{dt} = W_{12}N_1 - (W_{21} + \frac{1}{\tau_2})N_2 + \frac{N_3}{\tau_3} - CN_2^2 \quad (\text{III-34}) \\ \frac{dN_3}{dt} = W_{13}N_1 - W_{31}N_3 - \frac{N_3}{\tau_3} \quad (\text{III-35}) \\ \frac{dN_4}{dt} = -W_{41}N_4 + \frac{1}{2}CN_2^2 \quad (\text{III-36}) \end{array} \right.$$

où les termes  $W_{ij}$  représentent les probabilités de transition du niveau  $i$  vers le niveau  $j$ .

Le terme  $CN_2^2$  tient compte du phénomène d'addition de photons par transfert d'énergie. La forme quadratique est liée au fait que ce processus fait intervenir deux ions dans le niveau métastable  $^4I_{13/2}$ .

En régime stationnaire (dérivées nulles par rapport au temps), on peut extraire de ces équations :

(III-36)  $\Rightarrow$

$$W_{41}N_4 = \frac{1}{2}CN_2^2$$

(III-35)  $\Rightarrow$

$$W_{13}N_1 = \frac{N_3}{\tau_3} \quad \text{car } W_{31} \ll \frac{1}{\tau_3}$$

(III-34)  $\Rightarrow$

$$N_1(W_{12} + W_{13}) - N_2(W_{21} + \frac{1}{\tau_2}) - CN_2^2 = 0$$

(III-33)  $\Rightarrow$

$$-N_1(W_{12} + W_{13}) + N_2(W_{21} + \frac{1}{\tau_2}) + CN_2^2 = 0$$

Si  $N_0$  est la concentration totale en ions dans la matrice, alors elle vérifie :

$$N_0 = N_1 + N_2 + N_3 + N_4 \approx N_1 + N_2$$

car les probabilités de transitions à partir des niveaux 3 et 4 sont très élevées ( $\tau_3$  et  $\tau_4 < 1$  ns).

L'équation III-34 devient :

$$CN_2^2 + N_2(W_{21} + \frac{1}{\tau_2} + W_{12} + W_{13}) - N_0(W_{12} + W_{13}) = 0 \quad (\text{III-37})$$

La résolution de l'équation III-37 conduit à une solution physique positive qui s'écrit :

$$N_2 = \frac{-(W_{12} + \frac{1}{\tau_2} + W_{13} + W_{21}) + \sqrt{(W_{12} + \frac{1}{\tau_2} + W_{13} + W_{21})^2 + 4N_0C(W_{13} + W_{12})}}{2C} \quad (\text{III-38})$$

avec : 
$$W_{ij}(x, z) = \frac{\sigma_{ij} I_{ij}(x, z)}{h\nu_{ij}}$$

et  $N_1 = N_0 - N_2$ .

Les équations (III-38) et (III-33) montrent que nous pouvons décrire les populations des niveaux  $E_1$  et  $E_2$  en tout point  $(x, z)$  à partir de l'intensité des faisceaux de pompe et de signal.

### III. 3. Le logiciel

#### III. 3. 1. Numérisation du problème

La mise au point du programme de simulation utilise les paramètres suivants :

- la largeur  $W_x$  de la fenêtre de calcul utilisée vaut  $30 \mu\text{m}$ . Cette fenêtre est échantillonnée en 1200 éléments (les tests ont été effectués avec un échantillonnage de 600 éléments). Ceci confère au logiciel une résolution de 25 nm.

- le pas de calcul dans la direction de propagation est fixé à  $\Delta z = 0,5 \mu\text{m}$  pour une longueur totale de 10 mm, impliquant 20000 boucles de calcul. Pour la propagation du signal et de la pompe, le temps de calcul dure environ 5 minutes avec un processeur Pentium pro 200. Ce temps prend en compte l'affichage de la puissance de pompe absorbée et de celle du signal amplifié. Ce programme ne nécessite pas de moyens informatiques énormes. Nous l'avons écrit à l'aide du langage Fortran 95 (Digital) et il fonctionne sur un "ordinateur de table".

#### III. 3. 2. Exemples de résultats obtenus

Du logiciel développé, nous avons pu obtenir différents types de résultats :

- La B.P.M. permet d'observer la propagation des faisceaux de pompe et de signal dans la structure, sur une distance  $L$ . Il est également possible de visualiser dans la couche active, à l'intérieur d'une tranche d'épaisseur  $\Delta z$ , la distribution des populations pour les niveaux d'énergie des ions erbium et de suivre l'évolution de ces populations au cours de la propagation.

- Du point de vue de l'amplification, nous pouvons étudier l'évolution de l'énergie totale de la pompe et celle du signal au cours de la propagation. On calcule ainsi le coefficient d'absorption de la pompe et le coefficient de gain du signal pour une distance de propagation  $L$ .

Les résultats que nous présentons ci-après sont les premiers que nous ayons obtenus à partir de simulations numériques. Les paramètres de l'amplificateur utilisés dans le modèle sont présentés dans le tableau suivant.

Paramètre		valeur
Concentration en ions erbium	$[Er^{3+}]$ (ions/cm <sup>3</sup> )	$1,51 \cdot 10^{20}$
Durée de vie du niveau métastable $^4I_{13/2}$	$\tau_{21}$ (ms)	4,5
Longueur d'onde de pompe	$\lambda_p$ (nm)	980
Section efficace d'absorption à $\lambda_p$	$\sigma_p$ (cm <sup>2</sup> )	$3,1 \cdot 10^{-21}$
Longueur d'onde du signal (nm)	$\lambda_s$ (nm)	1530
Section efficace d'absorption à $\lambda_s$	$\sigma_s$ (cm <sup>2</sup> )	$7,1 \cdot 10^{-21}$
Section efficace d'émission à $\lambda_s$	$\sigma_s$ (cm <sup>2</sup> )	$7,1 \cdot 10^{-21}$
Puissance injectée à $\lambda_s$	$P_s$ (μW)	5

### a. Influence de la puissance de pompe

Dans le tableau ci dessus, nous n'avons pas précisé la valeur du coefficient d'Up-conversion. Ce coefficient est le seul paramètre ajustable dans le modèle. La confrontation avec les résultats expérimentaux impose une valeur de  $4,5 \cdot 10^{-17}$  cm<sup>3</sup>/s pour ce coefficient. Cette valeur est en bon accord avec celle annoncée par Di Pasquale et al. [17], estimée à  $5,0 \cdot 10^{-17}$  cm<sup>3</sup>/s dans un guide dopé à  $1,0 \cdot 10^{20}$  ions/cm<sup>3</sup>. Expérimentalement, nous avons mesuré un gain interne de 1,47 dB/cm, soit un gain net de -8,07 dB/cm (si les pertes de propagation sont de  $\alpha_{prop} = 0,5$  dB/cm). Le modèle quant à lui prédit une amplification de 1,43 dB/cm, (figure III-9).

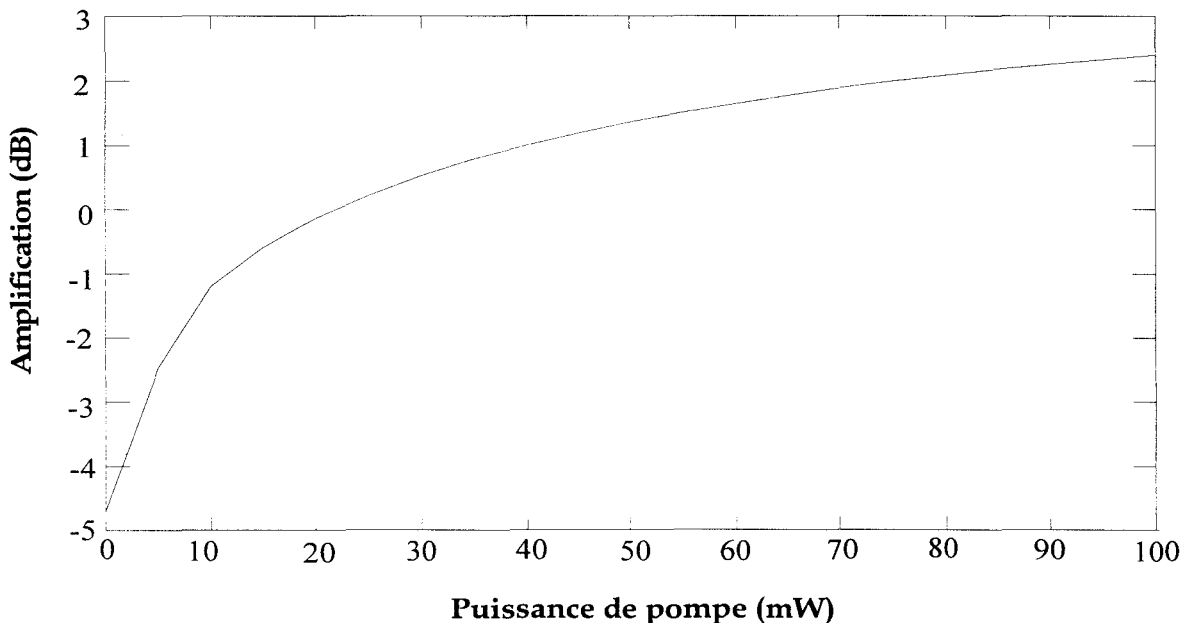


Figure III-9 : Evolution de l'amplification (gain interne) en fonction de la puissance de pompe injectée dans un guide de longueur 10 mm.

Les résultats de simulation présentés sur la figure III-9 indiquent que nous pouvons escompter un gain interne de 2,4 dB/cm (avec  $\alpha_{prop} = 0,5$  dB/cm), pour une puissance injectée dans le guide égale à 100 mW.

**b. Influence de la longueur de l'amplificateur**

Le gain interne de 1,47dB/cm que nous avons mesuré dans nos composants représente un résultat encourageant. Néanmoins, cette valeur n'est pas suffisante pour envisager des applications intéressantes. Il convient donc d'améliorer l'amplificateur afin d'augmenter le gain. Un paramètre sur lequel nous pouvons agir est la longueur du composant. La figure III-10 représente les résultats de simulation de l'évolution de l'amplification en fonction de la longueur de l'amplificateur, pour des puissances de pompe égales à 50, 100 et 200 mW.

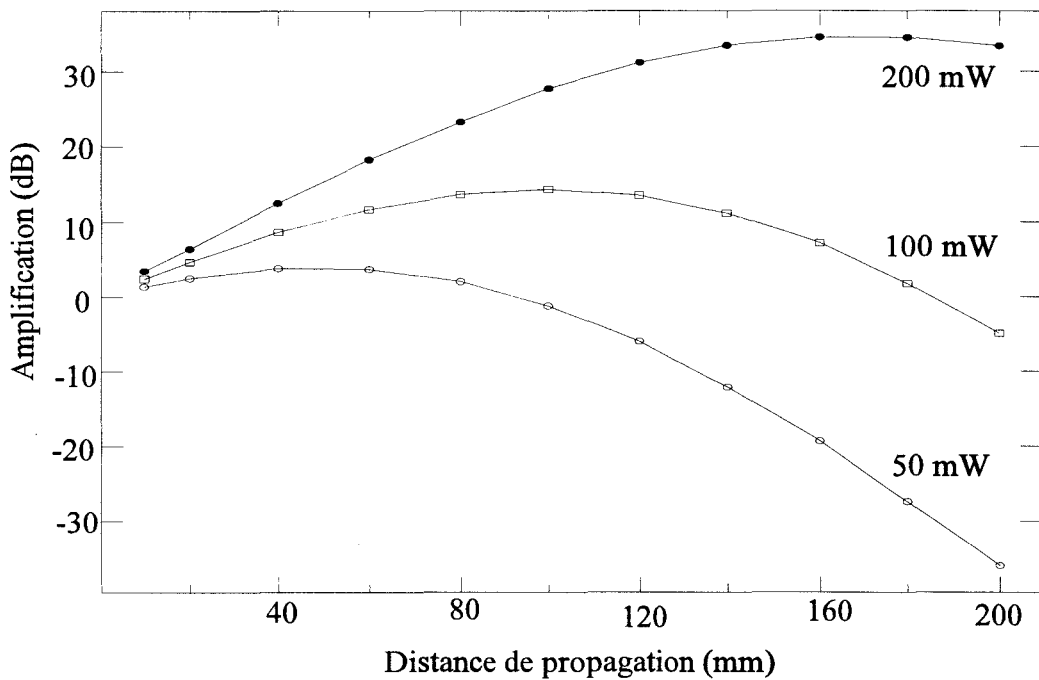


Figure III-10 : Calcul de l'évolution de l'amplification en fonction de la longueur de l'amplificateur pour des puissances de pompe égales à 50, 100 et 200 mW.

La figure III-10 indique que les amplificateurs réalisés ne sont pas optimisés en longueur. En effet, pour les trois puissances de pompe, il apparaît que la longueur offrant l'amplification maximale est supérieure à 10 mm.

Ces simulations montrent également que l'augmentation de la puissance de pompe à l'intérieur du canal s'accompagne d'un accroissement du gain. En effet, l'injection d'une puissance de pompe de 100 mW dans le guide est tout à fait envisageable compte tenu des performances des diodes laser émettant à la longueur d'onde 980 nm.

A partir des résultats de simulation, nous avons estimé les gains nets maximum prévus par le modèle pour des valeurs de pertes de propagation comprises entre 0,2 dB/cm et 0,5 dB/cm. Ces valeurs sont présentées dans le tableau ci-dessous.



Puissance de pompe (mW)	Pertes de propagation de 0,5 dB/cm
50	$G_{\text{net}} = -7,24$ dB pour $L = 40$ mm
100	$G_{\text{net}} = 0,32$ dB pour $L = 100$ mm
200	$G_{\text{net}} = 17,55$ dB pour $L = 160$ mm

Pour les conditions expérimentales dans lesquelles nous avons effectués nos mesures ( $P_p = 50$  mW), la longueur optimale du composant est estimée à 40 mm.

#### IV. Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre les premiers résultats d'amplification dans des guides aluminosilicates élaborés par voie sol-gel. Les composants sous forme de guides en arête ont été réalisés par une gravure de type R.I.E. L'étude expérimentale de ces composants montre que le gain interne s'élève à 1,47 dB à la longueur d'onde 1530 nm, pour un guide de longueur 10 mm avec une puissance de pompe injectée de 50 mW à la longueur d'onde  $\lambda_p = 980$  nm.

Afin d'analyser le comportement de l'amplificateur, nous avons développé un programme de modélisation original, basé sur l'analyse de la propagation des faisceaux de pompe et de signal (B.P.M-2D) et sur l'étude de l'évolution des populations des niveaux énergétiques des ions erbium.

D'après les premières simulations numériques, l'accord entre les résultats expérimentaux et ceux fournis par le modèle est satisfaisant si l'on tient compte du processus d'addition de photons par transfert d'énergie. Néanmoins, il convient de noter que dans ce modèle original de part l'utilisation de la B.P.M., nous avons négligé certains effets "parasites". Pour compléter ce dernier, il nous faudra tenir compte notamment des processus d'émission spontanée amplifiée (E.S.A.) et d'absorption dans l'état excité (A.S.E.). Afin de valider les prédictions numériques fournies par le modèle, il s'avère nécessaire de réaliser des expériences sur des guides plus longs, avec différentes structures et différentes puissances de pompe.

Sur le plan expérimental, il est indispensable de renouveler les mesures expérimentales en diminuant notamment les pertes de couplage. Dans un premier temps, il faudra modifier la largeur et la hauteur des arêtes pour permettre un meilleur confinement et un meilleur recouvrement des faisceaux de pompe et de signal. L'amélioration de la qualité de surface des arêtes constituera le second objectif à atteindre.

## Bibliographie

- [1] J.R De Vore, J. Opt. Soc. Am., **41**, (1951), 416.
- [2] M.D. Feit, J.A. Fleck, Appl. Opt., **19**, (1980), 1154.
- [3] M.D. Feit, J.A. Fleck, Appl. Opt., **20**, (1981), 848.
- [4] R. Baets, P.E. Lagasse, Appl. Opt., **21**, (1982), 1972.
- [5] R. Baets, P.E. Lagasse, J. Opt. Soc. Am., **73**, (1983), 177.
- [6] P. Danilsen, IEEE J. Quantum Electron., **20**, (1984), 1093.
- [7] A. Neyer, W. Merenkamp, L. Thylen, B. Lagerström, J. Lightwave Techn., **3**, (1985), 635.
- [8] R. Scarmozzino, R. M. Osgood, Jr., J. Opt. Soc. Am., **8**, (1991), 724.
- [9] Y. Chung, N. Dagli, IEEE J. Quantum Electron., **26**, (1990), 1335.
- [10] S. Helfert, R. Pregla, Opt. & Quant. Elect., **27**, (1995), 943.
- [11] M. Munovitz, D.J. Vezetti, Opt. Commun., **100**, (1993), 43.
- [12] D. Yevick, M. Glasner, Elec. Lett., **25**, (1989), 1611.
- [13] J. P. Nougier, *Méthodes de calcul numérique*, Ed. Masson, Paris, (1987).
- [14] G. Jin, Thèse de doctorat, Univ. Lille, France, (1997).
- [15] M. Federighi, I. Massarek, P.F. Trwoga, IEEE Photon. Technol. Lett., **5**, (1993), 227.
- [16] F. Di Pasquale, M. Zoboli, J. Lightwave Technol., **11**, (1993), 1565.
- [17] F. Di Pasquale, M. Zoboli, M. Federighi, I. Massarek, IEEE J. Quantum Electron., **30**, (1994), 1277.

## CONCLUSION

---

## Conclusion

Le travail présenté dans ce mémoire s'articule autour de deux volets. Le premier a été consacré à l'élaboration par voie sol-gel de films minces dopés par des ions erbium trivalents et à leur caractérisation. A cette fin, nous avons tout d'abord développé un procédé de synthèse comportant trois étapes :

- Dans un premier temps, nous avons optimisé la préparation des solutions permettant le dépôt de films minces. Nous avons porté un soin particulier à l'obtention de sols limpides, clairs et stables.
- La deuxième étape concerne la mise en œuvre d'un procédé de dépôt permettant d'appliquer par voie sol-gel une solution sur un substrat. Nous avons ainsi pu réaliser des couches minces de haute qualité optique et d'épaisseurs contrôlées.
- La dernière étape a consisté en la détermination du traitement thermique à faire subir aux couches minces pour les densifier et éliminer les résidus des réactions chimiques. Des précautions importantes ont été prises pour obtenir des films transparents et exempts de craquelures. En particulier, le choix du substrat est important en raison du coefficient de dilatation thermique.

Deux types de matrices ont été élaborés : les matrices germanosilicate et aluminosilicate, qui présentent la particularité d'être compatibles avec les fibres optiques.

Pour les films germanosilicates, nous avons montré que la méthode sol-gel permet l'élaboration de guides dopés par des ions erbium, présentant de bonnes qualités optiques. Les pertes sont de l'ordre de 0,5 dB/cm à 632,8 nm pour des films d'épaisseur 0,4  $\mu\text{m}$ . La spectroscopie Raman nous a permis de suivre leur évolution structurale en fonction de la température de recuit. Ainsi, nous avons observé que ces films présentent une structure amorphe après recuit jusqu'à un traitement de 900 °C et avons mis en évidence la présence de motifs Si-O-Ge. L'observation des bandes Raman attribuées à ces liaisons indique que la matrice germanosilicate obtenue par voie sol-gel est homogène.

La fluorescence des ions erbium dans cette matrice a été caractérisée dans le domaine spectral visible et dans le proche infrarouge. Dans la région spectrale avoisinant 1530 nm, nous avons montré l'influence de la température de recuit sur la largeur à mi-hauteur de la bande d'émission : celle-ci est de 26 nm à 900 °C alors qu'elle est de 36 nm à 700 °C. Nous avons également déterminé la concentration optimale d'ions dans la matrice (0,25 at.%), et avons mis en évidence l'existence d'un processus de désexcitation non radiative, lié à la présence de groupements OH<sup>-</sup>. En revanche, par un traitement sous oxygène nous n'avons pas réussi à éliminer complètement ces groupements OH<sup>-</sup>. Leur présence contribue à diminuer la durée de vie : celle-ci ne dépasse pas 3,5 ms dans nos

---

guides. L'élimination complète des OH<sup>-</sup> aurait nécessité un traitement thermique supplémentaire sous flux de gaz réducteur tel que le Cl<sub>2</sub> ou sous atmosphère de CCl<sub>4</sub>.

Suite à ce travail portant sur la matrice germanosilicate, nous nous sommes orientés vers l'étude de la matrice aluminosilicate. L'ajout d'aluminium dans les silicates permet d'obtenir une meilleure solubilité des ions de terres rares. Cette modification a été apportée dans le but d'augmenter la durée de vie de fluorescence.

Les films aluminosilicates ont été élaborés en suivant les trois étapes du procédé de synthèse décrit précédemment. Les précurseurs de départ servant à la préparation du sol sont des alkoxydes métalliques de silicium et d'aluminium. Le substrat approprié est constitué d'une plaque de silicium d'épaisseur de 250 μm sur laquelle est déposée une couche tampon de silice. L'ensemble subit un traitement thermique préalable à 900 °C avant l'étape de dépôt. Le traitement thermique optimal, obtenu après plusieurs essais, consiste en un traitement rapide à 650 °C entre chaque couche, suivi d'un recuit d'une heure à 900 °C après chaque cycle de cinq dépôts. Ce protocole expérimental a été adopté car il conduit à la plus grande valeur de la durée de vie du niveau métastable <sup>4</sup>I<sub>13/2</sub> de l'ion erbium. Nous avons ainsi pu élaborer des guides exempts de craquelure, présentant un indice de réfraction proche de 1,55 à 632,8 nm et une épaisseur variant de 1 à 2 μm.

Les faibles pertes mesurées, de l'ordre de 0,2 dB/cm à 632,8 nm, témoignent de la bonne qualité optique de nos guides. Ce résultat est corrélé à la structure amorphe de la matrice aluminosilicate recuite à 900 °C. En effet, l'évolution structurale de la matrice a été caractérisée au moyen de la spectroscopie Raman. Nous avons ainsi démontré le caractère vitreux des guides traités à 900 °C et mis en évidence un début de cristallisation pour un traitement à 1000 °C. Pour des températures de traitement plus élevées, la cristallisation de la matrice aluminosilicate se poursuit et la taille des cristallites a été estimée. La taille moyenne de ces particules cristallisées augmente de 5 nm à 12 nm lorsque la température de traitement passe de 1000 °C à 1100 °C. Ces résultats ont été confirmés par des expériences de microscopie à effet de force atomique (A.F.M.) et de microscopie électronique à balayage (M.E.B.).

D'autre part, l'influence de la composition de la matrice sur la fluorescence visible et infrarouge des ions erbium a fait l'objet d'une étude approfondie. Ainsi, il a été établi que la présence d'aluminium améliore la solubilité des ions erbium dans la matrice silicate, ce qui a pour conséquence d'augmenter jusqu'à 47 nm la largeur à mi-hauteur de la bande d'émission autour de 1530 nm. De plus, l'utilisation de l'aluminium au lieu du germanium contribue à augmenter la durée de vie du niveau émetteur <sup>4</sup>I<sub>13/2</sub>. En effet, la durée de vie passe de 3,5 ms dans une matrice germanosilicate à 4,5 ms dans une matrice aluminosilicate pour des guides dopés jusqu'à 0,5 at. % en erbium.

Le deuxième volet de ce travail a porté sur la réalisation de circuits intégrés photoniques et sur la conception d'une nouvelle technique de simulation fondée sur la méthode des faisceaux propagés (B.P.M.). Du point de vue expérimental, nous avons réalisé des guides d'ondes droits en arête à partir de guides planaires aluminosilicates dopés aux ions erbium (0,5 at. %). Ces circuits, dont la structure a été déterminée à partir

de la méthode des indices effectifs, ont été fabriqués en utilisant la technique de gravure R.I.E. . L'étude expérimentale menée sur ces guides, a permis de mesurer un gain interne de 1,47 dB/cm à 1,53  $\mu\text{m}$ , avec une puissance de pompe de 50 mW à la longueur de 980 nm. Ce résultat est encourageant pour le développement de composants actifs par voie sol-gel.

Enfin, pour l'interprétation de nos résultats expérimentaux et l'optimisation des dimensions de nos structures, nous avons développé un modèle combinant les équations de population et la méthode des faisceaux propagés. Ce modèle reproduit de manière satisfaisante les résultats expérimentaux lorsque l'on tient compte du phénomène d'addition de photons par transfert d'énergie, dans lequel le coefficient de transfert vaut  $4,5 \times 10^{-25}$  m<sup>3</sup>/s. Néanmoins, pour étayer notre modèle, des données expérimentales supplémentaires sont nécessaires. Ainsi, d'autres types de structures doivent être réalisés, en modifiant les caractéristiques géométriques des arêtes. De plus, nous devons également réaliser des guides plus longs, présentant des faibles pertes de propagation, pour valider les résultats numériques obtenus.

Une autre voie de recherche intéressante que nous n'avons pas explorée dans ce travail concerne le co-dopage erbium-ytterbium. L'utilisation de l'ytterbium devrait conduire à une meilleure efficacité de pompage, impliquant une augmentation du rendement d'amplification.

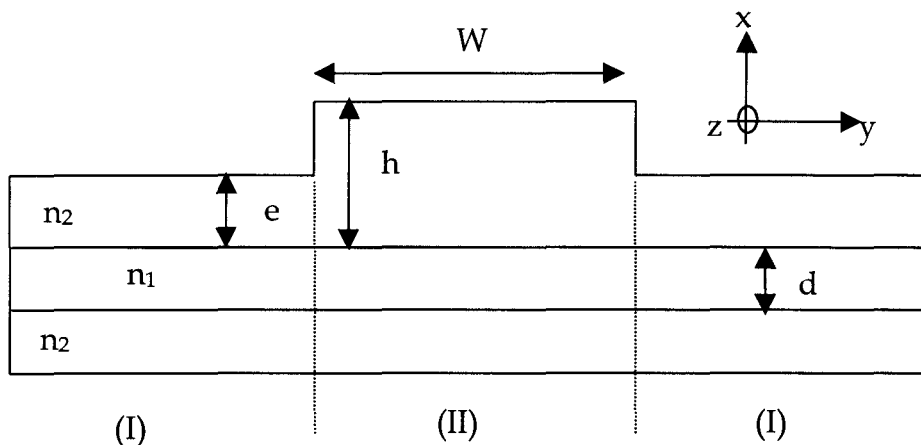


# ANNEXES



## Annexe I : Calcul de la profondeur de gravure à partir de la méthode des indices effectifs

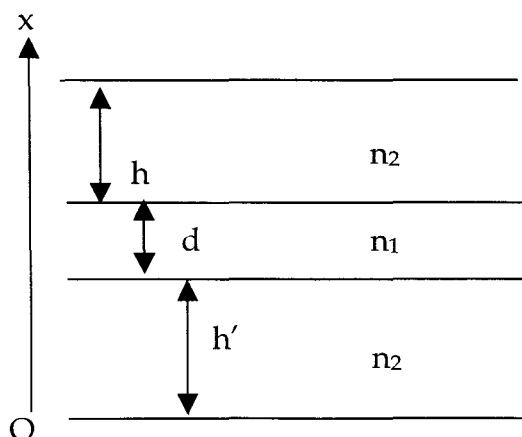
Les guides que nous avons réalisés dans le cadre de notre étude sont présentés sur la figure suivante :



Les valeurs des indices de réfraction et les épaisseurs sont déterminées de manière expérimentale.

Le seul paramètre inconnu sur le schéma précédent est l'épaisseur résiduelle ( $e$ ) de silice après la gravure. Comme nous l'avons vu dans le chapitre I-II, les guides doivent être configurés de telle sorte que seuls les modes fondamentaux à la longueur d'onde de la pompe ( $\lambda_p$ ) et à la longueur d'onde du signal ( $\lambda_s$ ) se propagent. Cette condition dépend du contraste d'indice  $n_2 - n_1$  entre les régions I et II.

Dans un premier temps, nous étudions le guide plan de la région II dans la direction ( $Ox$ ) :

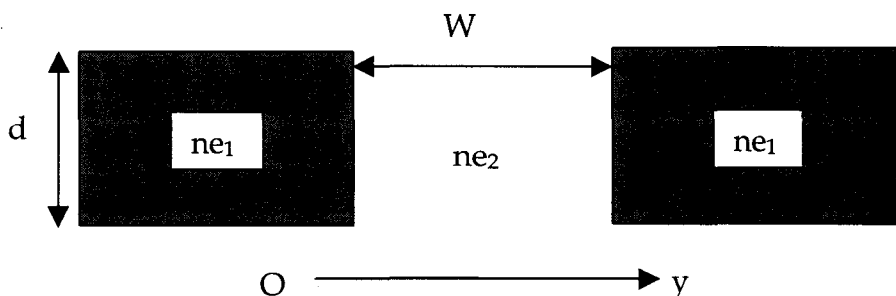


Nous décrivons ici le calcul pour la longueur d'onde de la pompe. Le principe est rigoureusement le même pour le signal (en changeant la longueur d'onde).

Les épaisseurs de chaque couche et les indices de réfraction à la longueur d'onde  $\lambda_p$  sont connus. A l'aide des équations de dispersion, nous pouvons déterminer l'indice effectif des modes  $TE_0$  que nous appelons  $ne_2$ .

Dans un second temps, nous étudions l'évolution de l'indice effectif avec l'épaisseur  $e$ . Au départ nous imposons  $e=h$ , puis nous diminuons progressivement la valeur de  $e$  et nous recalculons l'indice effectif (noté  $ne_1$ ) du mode  $TE_0$  se propageant dans la nouvelle structure. Ainsi, nous pouvons déterminer la loi d'évolution  $ne_1=f(e)$ .

La dernière étape consiste à considérer le guide plan équivalent dans la direction (Oy) :



Dans ce nouveau guide plan, la condition de monomodalité est régie par la différence d'indice ( $ne_2-ne_1$ ). A partir des équations de dispersion, nous déterminons la valeur de  $ne_1$  pour que seul le mode  $TE_0$  puisse se propager dans la structure et nous déduisons de la relation  $ne_1=f(e)$  la valeur de l'épaisseur résiduelle. La profondeur de gravure ( $g$ ) est directement donnée par  $g=h-e$ .



## **Annexe II : Microscopie à effet de force atomique et microscopie électronique à balayage**

### **I. La microscopie à force atomique (A.F.M.)**

#### **I. 1. Introduction**

Les microscopies à champ proche font parties des méthodes d'investigation locales qui permettent d'analyser les surfaces avec une très haute résolution. Ces microscopies sont à l'initiative de G. Binnig et H. Rohrer, inventeurs du microscope à effet tunnel (Scanning Tunelling Microscopy : S.T.M.) en 1982, qui leur a valu l'attribution du prix Nobel en 1986.

Depuis l'invention, du S.T.M., de nombreux microscopes à sonde locale ont été développés. Leur principe est le même que celui du S.T.M., qui consiste à balayer une surface avec une sonde métallique ou diélectrique extrêmement fine en mesurant en chaque point de la surface une grandeur physique permettant d'effectuer une topographie de la surface de l'échantillon analysé.

Parmi les nouvelles techniques microscopique, on peut citer l'A.F.M. (microscopie à effet de force atomique), mise au point en 1986 par Binnig et al. [1]. Elle est devenue une méthode d'investigation couramment utilisée dans les laboratoires universitaires ou dans l'industrie. Dans le cas de la microscopie à effet tunnel, un impératif d'ordre physique, qui est la circulation du 'courant tunnel, restreint son champ d'observation aux métaux et aux semi-conducteurs. Le développement de l'A.F.M. a permis de s'affranchir de cette limitation et d'aborder l'examen d'échantillons isolants.

#### **I. 2. Principe de fonctionnement en mode contact**

Le principe de fonctionnement du microscope à force atomique est fondé sur l'exploration de la surface d'un échantillon par une sonde de petite taille, sensible à la force d'interaction entre la pointe et la surface à analyser.

Dans le cas du mode contact, la sonde locale est constituée d'une pointe en nitrure de silicium fixée à l'extrémité d'un petit levier flexible (appelé cantilever ou ressort) de très faible masse. Cette pointe est en contact direct avec la surface de l'échantillon et exerce sur celui-ci une force très faible d'environ  $10^{-9}$  N.

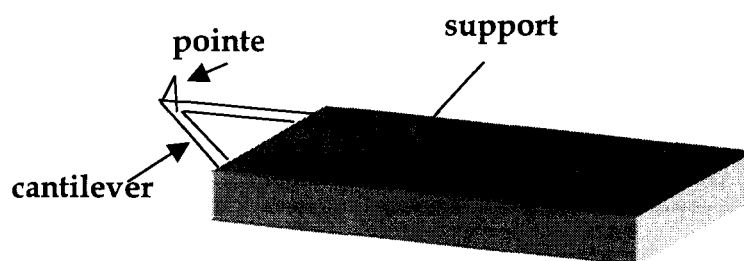


Figure A II-1 : représentation schématique de l'ensemble pointe-cantilever-support d'un microscope à force atomique.

L'échantillon est déplacé sous la pointe dans les trois directions de l'espace grâce à trois céramiques piézo-électriques  $P_x$ ,  $P_y$ ,  $P_z$ . La variation de la force d'interaction pointe-surface, lors du déplacement dans le plan  $(x,y)$ , induit une déflexion très faible du cantilever selon l'axe perpendiculaire  $(z)$ . Cette déflexion est mesurée grâce à un faisceau laser. Celui-ci, émis par un diode, est envoyé sur l'extrémité du cantilever et par réflexion éclaire deux photorécepteurs A et B (figure A II-2)

Lorsque la pointe rencontre un relief, l'angle de réflexion du faisceau laser change du fait de la modification de la courbure du cantilever. La différence d'intensité reçue par les deux photodétecteurs entraîne un déplacement de l'échantillon suivant l'axe vertical  $(z)$  pour rétablir l'éclairement initial (figure A II-2).

Deux cas de figures sont envisageables. Dans le premier, l'angle de réflexion du faisceau laser augmente et la variation de relief est interprétée comme une dépression. Dans le second cas, la diminution de l'angle de réflexion est associée à une bosse.

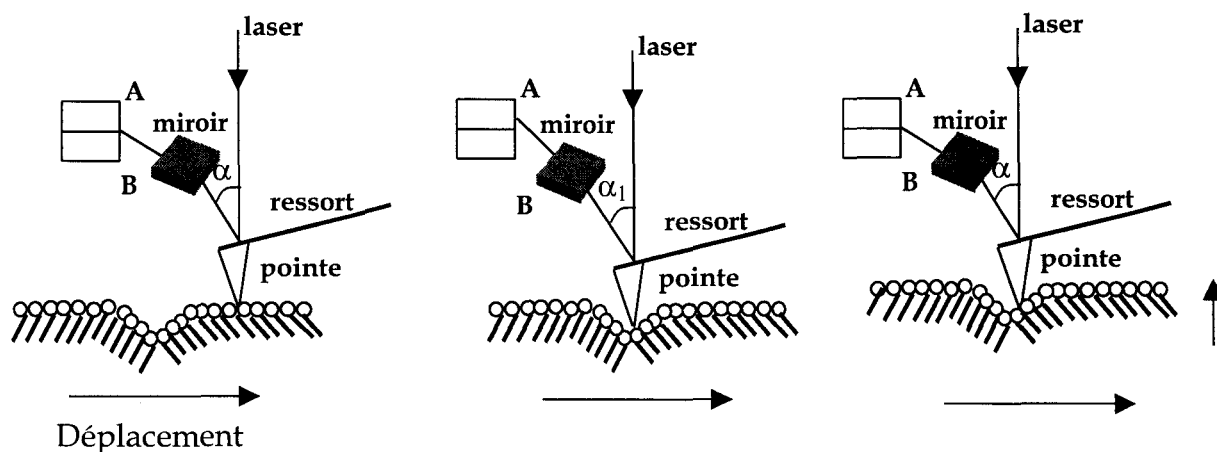


Figure A II-2 : principe de détection des variations de surface en mode contact.

La cartographie tridimensionnelle de la surface est obtenue par enregistrement de la position verticale  $z$  de la pointe en fonction de sa position latérale  $(x,y)$ . Les images,

ainsi réalisées, contiennent à la fois des informations sur la topographie de la surface ainsi que sur l'intensité des forces d'interaction entre les atomes de la surface et la pointe.

## I. 2. Appareillage

Le dispositif que nous avons utilisé pour explorer la surface de nos échantillons est un microscope Nanoscope III-a - Digital Instruments (figure A II-3. Il est constitué :

- d'un ensemble support-ressort-pointe,
- d'un système de détection de la déflexion du ressort,
- d'un système mécanique permettant le déplacement de l'échantillon par rapport à la pointe fixe (céramiques piézo-électriques),
- d'un système de rétroaction pour maintenir la déflexion du ressort constante pendant le déplacement de l'échantillon,
- d'une isolation des vibrations extérieures,
- d'un ordinateur pour enregistrer les mesures et les convertir en images.

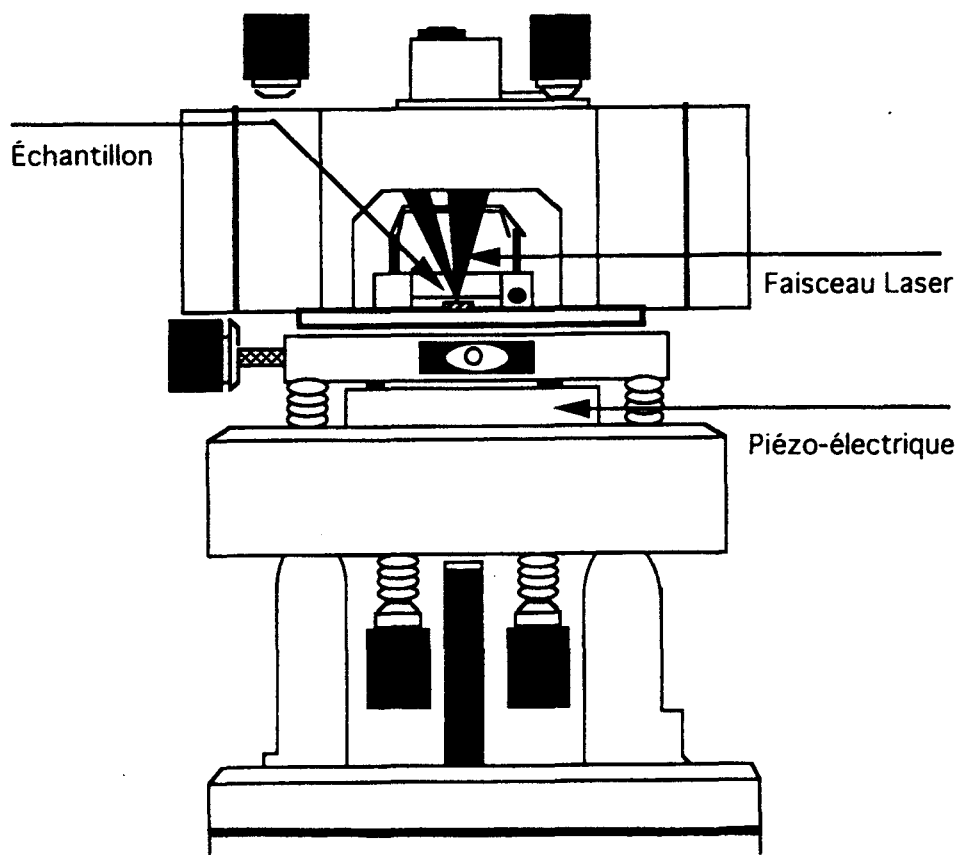


Figure A II-3 : le microscope à force atomique Nanoscope III a-Digital Instruments.

---

## II. La microscopie électronique à balayage (M.E.B.)

### II. 1. Principe

Le principe du microscope électronique à balayage est fondé sur le bombardement de l'échantillon à analyser par un faisceau d'électrons. Les interactions qui ont lieu entre les électrons et l'échantillon produisent de nouveaux électrons (électrons secondaires) dont les propriétés dépendent de la configuration et de la composition des échantillons. Ces électrons secondaires sont issus de l'ionisation du matériau bombardé. Ils possèdent une énergie faible et ne peuvent être observés que s'ils sont situés à une faible profondeur. Le nombre d'électrons secondaires dépend de l'angle entre les électrons incidents et la surface étudiée.

Les électrons du faisceau de bombardement qui arrivent sur l'échantillon peuvent être transmis à travers l'échantillon ou rétrodiffusés. Les électrons rétrodiffusés sont diffusés par les atomes situés à une profondeur d'environ 1  $\mu\text{m}$ . L'analyse de la rétrodiffusion permet essentiellement une analyse de la composition du matériau.

En comparaison de la microscopie à force atomique, la microscopie électronique à balayage offre l'avantage de visualiser directement les échantillons. La profondeur de champ élevée du microscope électronique permet de visualiser des variations de relief sur des surfaces importantes (quelques  $\mu\text{m}^2$  en A.F.M.). De plus, le microscope électronique à balayage présente un grandissement bien plus élevée que le microscope optique, ce qui lui permet d'atteindre des résolutions de l'ordre du nanomètre.

### II. 2. Appareillage

Le dispositif utilisé à l'I.E.M.N. pour l'analyse de surface est une Microscope électronique à balayage LEO 982. Il offre la possibilité de travailler à des tensions variant de 30 kV à 200V. La résolution de cet appareil est de 25 nm lorsque la tension appliquée est 200 V. Elle peut être fortement améliorée en augmentant la tension. Ainsi pour une tension de 30 kV, la résolution atteinte est 5 nm. L'avantage de ce microscope est la possibilité d'appliquer des tensions faibles. Il est alors possible d'analyser des échantillons non métallisés au préalable. La surface ainsi observée est celle de l'échantillon et on s'affranchit alors des effets de métallisation.

[1] G. Binnig, C.F. Quate, C.Gerber, Phys. Rev. Lett., 56, (1986), 930.

CONTRIBUTIONS SCIENTIFIQUES



PUBLICATIONS

- 1- *Fluorescence properties of sol-gel derived  $Er^{3+}:\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$  planar waveguides*, **M. Benatsou**, M. Bouazaoui, *Optics Communication*, **137**, (1997), 143.
- 2- *Preparation and characterisation of sol-gel derived  $Er^{3+}:\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  planar waveguides*, **M. Benatsou**, W. Tchana, B. Capoen, J. P. Vilcot, M. Bouazaoui, *Applied Physics Letters*, **71**, (1997), 428.
- 3- *Waveguide-Raman Characterisation of Sol-gel Thin Films*, J.M. Nedelec, **M. Benatsou**, C. Duverger, B. Capoen, M. Bouazaoui, S. Turrell, *Asian Journal of Physics* (1998), Vol. **7**, n°2, (1998), 357.
- 4- *Structural and optical characterisation of sol-gel derived aluminosilicate waveguides*, **M. Benatsou**, W. Tchana, B. Capoen, J. P. Vilcot, M. Bouazaoui, *Journal of Sol-gel Science and Technology*, (1998), (sous presse).
- 5- *Waveguide-Raman Spectroscopy : a non-destructive tool for the characterisation of amorphous thin films*, C. Duverger, J.M. Nedelec, **M. Benatsou**, B. Capoen, M. Bouazaoui, M. Ferrari, S. Turrell, *Journal of Molecular Structure*, (1998), accepté pour publication.
- 6- *Photosensitivity of sol-gel derived cerium doped aluminosilicate planar waveguides*, J.M. Nedelec, **M. Benatsou**, W.X. Xie, M. Douay, M. Bouazaoui, S. Turrell, *Proceedings of the 9<sup>th</sup> CIMTEC*, (1998).
- 7- *UV induced permanent Bragg gratings in sol-gel  $\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$  planar waveguides*, A. D. Razafimahatratra, **M. Benatsou**, M. Bouazaoui, W.X. Xie, M. Douay (en rédaction).

COMMUNICATIONS

- 1- *Fluorescence properties of sol-gel derived  $Er^{3+}:\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$  planar waveguides*, **M. Benatsou**, M. Bouazaoui, Workshop on Science and Technology of thin films, Trieste (ICTP) - Italie - du 11 au 29 Mars 1996.
- 2- *Caractérisation de guides d'ondes planaires  $Er^{3+}:\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$  élaborés par voie sol-gel*, **M. Benatsou**, M. Bouazaoui, 5<sup>ème</sup> Journées de la Matière Condensée (JMC5), Orléans - France - du 28 au 30 Août 1996.
- 3- *Photoinscription de réseaux de Bragg dans des guides d'ondes optiques germanosilicates élaborés par voie sol-gel*, A. D. Razafimahatratra, **M. Benatsou**, M. Bouazaoui, W. X. Xie, M. Douay, Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Nice - France - du 28 au 30 Octobre 1996.

- 4- *Elaboration par voie sol-gel et caractérisation de guides d'ondes planaires aluminosilicates dopés Er<sup>3+</sup>*, **M. Benatsou**, W. Tchana, B. Capoen, J. P. Vilcot, M. Bouazaoui, Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG), Nice - France - du 28 au 30 Octobre 1996.
- 5- *Properties of Erbium doped aluminosilicate waveguides prepared via sol-gel processing*, **M. Benatsou**, W. Tchana, B. Capoen, J. P. Vilcot, M. Bouazaoui, Miniature coherent light in dielectric media, Les Houches - France - du 2 au 6 Juin 1997.
- 6- *Structural and optical characterisation of sol-gel derived aluminosilicate waveguides*, **M. Benatsou**, W. Tchana, B. Capoen, J. P. Vilcot, M. Bouazaoui, Sol-Gel'97, Sheffield - England - du 31 Août au 6 Septembre 1997.
- 7- *Thermal stabilities of strong UV written gratings in sol-gel germanosilicate planar waveguides*, A. D. Razafimahatratra, **M. Benatsou**, M. Bouazaoui, W. X. Xie, M. Douay, C. Mathieu, A. Dacosta, Bragg Gratings, Photosensitivity, and Poling in Glass Fibers and Waveguides, Williamsburg, Virginia - U.S.A. - du 26 au 28 Octobre 1997.
- 8- *Matériaux pour l'optique élaborés par voie sol-gel*, **M. Benatsou**, J.M. Nedelec, C. Duverger, B. Capoen, D. Razafimahatratra, W.X. Xie, M. Douay, S. Turrell, M. Bouazaoui, Réunion du club optique et micro-ondes, Lille - France - 24 Mars 1998.
- 9- *Waveguide-Raman and Luminescence Spectroscopy: a non-destructive tool for the characterisation of amorphous materials*, C. Duverger, J.M. Nedelec, **M. Benatsou**, B. Capoen, M. Bouazaoui, M. Ferrari, S. Turrell, XXIV European Conference on Molecular Spectroscopy, Prague - République Tchèque - Août 1998.
- 10- *Waveguide-Raman and Luminescence Spectroscopies: a non-destructive tool for the characterisation of amorphous thin films*, **M. Benatsou**, J.M. Nedelec, C. Duverger, B. Capoen, M. Bouazaoui, M. Ferrari, S. Turrell, II International Conference on Vibrational Spectroscopy in Material Science, Prague - République Tchèque - 22 Octobre 1998.

