

Ecole Centrale de Nantes    Université de Nantes    Ecole des Mines de Nantes

ÉCOLE DOCTORALE STIM  
SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE L'INFORMATION ET DES MATÉRIAUX

Année 2006

N° attribué par la bibliothèque

|  |  |  |  |  |  |  |  |  |  |
|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|
|  |  |  |  |  |  |  |  |  |  |
|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|

# Élaboration, étude et analyse par spectroscopie $m$ -lines de guides d'ondes composites multicouches.

THÈSE DE DOCTORAT

Discipline : Physique  
Spécialité : Sciences des Matériaux

*Présentée et soutenue publiquement par*

**Thomas SCHNEIDER**

*Le 27 Octobre 2006 à l'Université de Nantes devant le jury ci-dessous*

|                    |                |                                                          |
|--------------------|----------------|----------------------------------------------------------|
| <i>Rapporteurs</i> | Claude AMRA    | Directeur de Recherches CNRS, Institut Fresnel Marseille |
|                    | Pierre MATHEY  | Maître de conférences, LPUB, Université de Bourgogne     |
| <i>Examineurs</i>  | Hartmut GUNDEL | Professeur, IREENA, Université de Nantes                 |
|                    | George BOULON  | Professeur, LPCML, Université Claude Bernard Lyon 1      |
|                    | Marc FONTANA   | Professeur, LMOPS, Université de Metz                    |
|                    | Cyril LUPI     | Maître de conférences, IREENA, Université de Nantes      |
| <i>Invité</i>      | André MONTEIL  | Professeur, POMA, Université d'Angers                    |

*Directeur de Thèse* Hartmut GUNDEL, Professeur  
Institut de Recherche en Électrotechnique et Électronique de Nantes Atlantique (IREENA)



À mon grand-père...



# Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans cette thèse ont été réalisés à l'Institut de Recherche en Électronique et Électrotechnique de Nantes Atlantique (IREENA). Pendant ces trois années, j'ai pu bénéficier d'une aide précieuse, je tiens donc à remercier un certain nombre de personnes.

Je souhaite d'abord remercier Hartmut Gundel, Professeur à l'université de Nantes, sans qui, je n'aurais pu réaliser ces travaux de thèse. Je le remercie pour ses conseils avisés, pour son encadrement pendant ces trois années mais aussi pour la confiance qu'il m'a accordé.

Je remercie également Cyril Lupi et Dominique Leduc pour tout ce qu'ils m'ont apporté pendant ces trois années tant du point de vue de l'enseignement que de la recherche. Ils m'ont notamment transmis la rigueur nécessaire pour mener à bien des travaux de recherches. Je pense que vous n'oublierez pas de si tôt mes arrivées dans le bureau lorsque je rencontrais un problème et que je vous l'expliquais en étant «dans la planète Thomas».

Je tiens aussi à remercier tous les autres membres du laboratoire qui ont participé à ce travail ou qui m'ont simplement aidé au cours de ces trois années. D'abord, le professeur Christian Boisrobert qui m'a accueilli dans le laboratoire LPIO qui est devenu par la suite le laboratoire IREENA. Je souhaite ensuite remercier Dominique Averty pour ses conseils et son aide en informatique, Reynald Seveno pour m'avoir fait partager son expérience en chimie. Je remercie également Raphaël Renoux qui a accepté d'être mon tuteur lors de mes trois années de monitorat, Patrick Derval pour sa bonne humeur et son aide technique. Je remercie Chantal Thebault pour son aide sur les problèmes administratifs.

Je souhaite également remercier Jhon Kessler, professeur à l'université de Nantes et Nicolas Barreau, maître de conférences à l'université de Nantes, pour les dépôts des couches minces de ZnO.

Je tiens aussi à remercier les thésards. Je commencerai par Julien Cardin qui m'a permis de mettre rapidement le pied à l'étrier. Je souhaite également remercier Gildas Tellier pour ce soutien mutuel pendant ces trois années. Je remercie Virginie pour sa bonne humeur. Je n'oublie pas les autres thésards, je vous souhaite à tous la réussite :

---

Sylvain, Florent, Caro, Xavier (motards dans ses heures perdues) et Monhammed le petit nouveau.

Enfin, je tiens à remercier mes parents qui m'ont transmis le goût du travail sans lequel rien n'aurait été possible et qui, d'autre part, m'ont soutenu tout au long de mon cursus scolaire. Je tiens également à remercier mon frère et ma sœur. Je remercie aussi Noémie pour son soutien, j'essaierai d'être aussi conciliant qu'elle l'a été face à mes sauts d'humeur liés au stress de la fin de thèse.

Mes pensées vont aussi à mon grand-père qui nous a quitté il y a peu de temps, mais qui a su me faire comprendre qu'il était fier de moi.

# Table des matières

|          |                                                                                                    |           |
|----------|----------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>1</b> | <b>Propriétés, élaboration et caractérisation de couches minces de zirconate titanate de plomb</b> | <b>5</b>  |
| 1.1      | Propriétés du zirconate titanate de plomb . . . . .                                                | 6         |
| 1.1.1    | Propriétés structurales . . . . .                                                                  | 7         |
| 1.1.2    | Élaboration de PZT en couches minces . . . . .                                                     | 11        |
| 1.2      | Méthode de caractérisation optique des couches minces . . . . .                                    | 15        |
| 1.2.1    | Montage expérimental et principe de mesures . . . . .                                              | 16        |
| 1.2.2    | Détermination des indices optiques . . . . .                                                       | 21        |
| 1.3      | Bilan . . . . .                                                                                    | 25        |
| <b>2</b> | <b>Méthode d'analyse de mesures <math>m</math>-lines pour une structure à trois couches</b>        | <b>27</b> |
| 2.1      | Quelles équations pour décrire notre problème ? . . . . .                                          | 28        |
| 2.1.1    | Structure à trois couches . . . . .                                                                | 34        |
| 2.1.2    | Structure bicouche . . . . .                                                                       | 40        |
| 2.2      | Méthodologie d'analyse des résultats expérimentaux . . . . .                                       | 42        |
| 2.2.1    | Comment résoudre le problème pour un système à deux couches . . . . .                              | 42        |
| 2.2.2    | Extension à la structure tricouche . . . . .                                                       | 46        |
| 2.3      | Bilan . . . . .                                                                                    | 48        |
| <b>3</b> | <b>Étude de la sensibilité des méthodes d'analyse</b>                                              | <b>49</b> |
| 3.1      | Étude de la méthode d'analyse du guide à deux couches . . . . .                                    | 50        |
| 3.1.1    | Influence des indices et épaisseurs du guide sur l'erreur . . . . .                                | 53        |

## TABLE DES MATIÈRES

---

|          |                                                                                                                          |            |
|----------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 3.1.2    | Étude de l'erreur sur les paramètres calculés en fonction de la précision des mesures <i>m</i> -lines . . . . .          | 56         |
| 3.2      | Précision de la méthode d'analyse pour des structures constituées de trois couches. . . . .                              | 58         |
| 3.2.1    | Étude de l'influence des indices et épaisseurs des guides en vue de l'optimisation du protocole de fabrication . . . . . | 60         |
| 3.2.2    | Précision de la méthode en fonction du bruit . . . . .                                                                   | 62         |
| 3.2.3    | Précision de la méthode d'analyse en fonction du nombre de données d'entrée . . . . .                                    | 62         |
| 3.3      | Bilan . . . . .                                                                                                          | 66         |
| <b>4</b> | <b>Réalisation et caractérisation de guides à deux couches et à trois couches.</b>                                       | <b>69</b>  |
| 4.1      | Élaboration et caractérisation du ZnO . . . . .                                                                          | 70         |
| 4.1.1    | Dépôt par pulvérisation cathodique radio fréquence magnétron . . . . .                                                   | 70         |
| 4.1.2    | Caractérisation structurale des couches minces de ZnO . . . . .                                                          | 71         |
| 4.1.3    | Caractérisation des couches minces de ZnO par spectroscopie <i>m</i> -lines . . . . .                                    | 73         |
| 4.2      | Élaboration et analyse des guides bicouches . . . . .                                                                    | 75         |
| 4.2.1    | Réalisation et caractérisation structurale . . . . .                                                                     | 75         |
| 4.2.2    | Mesures <i>m</i> -lines . . . . .                                                                                        | 77         |
| 4.3      | Réalisation et caractérisation de guides tricouches . . . . .                                                            | 82         |
| 4.3.1    | Élaboration et caractérisation structurale des guides . . . . .                                                          | 83         |
| 4.3.2    | Analyse optique des guides . . . . .                                                                                     | 84         |
| 4.4      | Bilan . . . . .                                                                                                          | 89         |
|          | <b>Bibliographie</b>                                                                                                     | <b>94</b>  |
|          | <b>Annexe</b>                                                                                                            | <b>100</b> |
| <b>A</b> | <b>Mesures sur les échantillons à trois couches</b>                                                                      | <b>101</b> |
| A.1      | Mesure à 4 mm du centre de dépôt . . . . .                                                                               | 101        |
| A.2      | Mesure à 8 mm du centre de dépôt . . . . .                                                                               | 102        |



|      |                                                    |     |
|------|----------------------------------------------------|-----|
| A.3  | Mesure à 12 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 103 |
| A.4  | Mesure à 16 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 104 |
| A.5  | Mesure à 20 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 105 |
| A.6  | Mesure à 29 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 106 |
| A.7  | Mesure à 33 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 107 |
| A.8  | Mesure à 37 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 108 |
| A.9  | Mesure à 41 <i>mm</i> du centre de dépôt . . . . . | 109 |
| A.10 | Échantillon E . . . . .                            | 110 |

## TABLE DES MATIÈRES

---

# Introduction

Depuis plusieurs années, les télécommunications doivent répondre à une demande croissante concernant le débit de l'information. L'utilisation d'une onde de fréquence élevée comme onde porteuse d'information permet des débits très importants. Les fibres optiques monomodes sont utilisées de plus en plus comme support de transmission de l'information sur de longues distances. L'ensemble de ces fibres forme un réseau de télécommunication qui nécessite entre autres des dispositifs optoélectroniques, assurant notamment le rôle de source lumineuse, de modulation, d'amplification ou de détection du signal. Ces dispositifs sont élaborés à partir de matériaux dits actifs, c'est à dire qui présentent la faculté d'avoir leurs propriétés optiques qui répondent à une contrainte extérieure comme une tension électrique. Afin d'améliorer la performance des dispositifs, la recherche de nouveaux matériaux actifs est grandissante, nécessitant alors des méthodes de caractérisations optiques de plus en plus spécifiques.

Parallèlement à l'augmentation du débit, la tendance à combiner plusieurs fonctions sur un pouce et donc la miniaturisation des composants, tient compte de l'effort à diminuer les pertes de couplage, à simplifier les systèmes et ainsi rendre les réseaux plus performants. Dans cet objectif, la maîtrise d'élaboration des matériaux en couches minces et leur intégration joue un rôle primordial. Ceci est intimement lié à la fois aux possibilités de caractérisation couche par couche lors du procédé d'élaboration et à la capacité d'une caractérisation du dispositif entier après sa mise en œuvre.

La spectroscopie *m*-lines [1]–[4] est une méthode de caractérisation optique fréquemment utilisée pour la détermination de l'indice de réfraction de matériaux. En générale, les matériaux à étudier constituent un guide d'onde plan monocouche déposé sur substrat, mais la littérature fait aussi état d'étude de guide d'onde plan à deux couches [2, 5]–[8]. L'utilisation de la spectroscopie *m*-lines à des fins de caractérisations optiques de matériaux actifs sous contraintes électrique est envisageable. Il faut alors imaginer une structure à trois couches où la couche mince active est enterrée entre deux autres couches jouant le rôle de gaines optiques et d'électrodes. L'objectif de ces travaux de thèse consiste à mettre en œuvre une méthode d'analyse par la spectroscopie *m*-lines, permettant non seulement la caractérisation optique des couches individuellement, mais également de

l'ensemble d'un guide d'onde plan composite en vue de mesurer la variation d'indice du matériau actif sous contrainte électrique.

Mes travaux de thèse font suite aux travaux de recherches de J. Cardin [9] où il avait mis en place un dispositif de mesure *m*-lines et avait étudié la faisabilité d'utiliser la céramique ferroélectrique de Titanate-Zirconate de Plomb (PZT) en monocouche dans des guides d'onde pour des applications en télécommunication. Le choix du matériau a été conditionné par un coefficient électro-optique intéressant mais aussi par le grand nombre d'études déjà effectuées, dues à son utilisation très répandue. Ce matériau sera par conséquent utilisé comme matériau actif pour notre étude bien que nous soyons également conscients des inconvénients que représente le PZT, notamment pour l'environnement. Les électrodes de la structure tricouche sont constituées de ZnO dopé à l'aluminium. L'objectif premier des travaux de thèse étant la mise en place d'une méthode de caractérisation pour des structures multicouches, il est clair que les matériaux constituant le guide vont évoluer et peuvent même être remplacés par des matériaux plus performants dans l'avenir.

Ce mémoire est organisé en quatre chapitres. Les propriétés des matériaux ferroélectriques, la fabrication de couches minces de PZT et le principe de la spectroscopie *m*-lines seront présentés, en premier lieu.

Dans une seconde phase, le formalisme analytique et la méthode d'analyse numérique, permettant de relier les mesures expérimentales issues des spectres *m*-lines de guides à trois couches aux paramètres optiques, seront décrits. Dans notre méthodologie de travail, une structure de guide à deux couches sera retenue afin de valider nos résultats par rapport à l'état de l'art. Cette structure constituant une étape intermédiaire de mes travaux, la méthode d'analyse associée sera donc décrite.

Le troisième chapitre discutera l'efficacité des méthodes d'analyse développées. Une étude statistique sur un grand nombre de guides simulés va éprouver ces méthodes. Une étude de l'influence du bruit sur les mesures permettra de déterminer l'erreur sur les paramètres optiques calculés à l'aide des outils mis en place dans le deuxième chapitre.

Enfin l'élaboration des guides à deux couches et à trois couches constituera la phase de validation expérimentale de ce mémoire. Les caractérisations structurales sur les différents guides composites réalisés seront décrites conjointement aux résultats expérimentaux obtenus à partir de la méthode d'analyse optique développée dans ces travaux. Nous confronterons les résultats des mesures optiques aux caractérisations structurales et dégagerons les résultats importants.

Chaque chapitre terminera avec une brève conclusion sur son contenu, une conclusion générale pour résumer les travaux de recherche effectués est proposée à la fin du manuscrit.

Dans l'annexe de ce manuscrit, l'ensemble des valeurs expérimentales issues de l'étude des guides à trois couches seront présentées.



# Chapitre 1

## Propriétés, élaboration et caractérisation de couches minces de zirconate titanate de plomb

### Sommaire

---

|                                                                            |           |
|----------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>1.1 Propriétés du zirconate titanate de plomb . . . . .</b>             | <b>6</b>  |
| 1.1.1 Propriétés structurales . . . . .                                    | 7         |
| 1.1.2 Élaboration de PZT en couches minces . . . . .                       | 11        |
| <b>1.2 Méthode de caractérisation optique des couches minces . . . . .</b> | <b>15</b> |
| 1.2.1 Montage expérimental et principe de mesures . . . . .                | 16        |
| 1.2.2 Détermination des indices optiques . . . . .                         | 21        |
| <b>1.3 Bilan . . . . .</b>                                                 | <b>25</b> |

---

La solution solide de zirconate titanate de plomb ( $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ) appelée plus communément PZT, fait partie de la famille des matériaux ferroélectriques pérovskites. Dans une première partie, nous discuterons de la structure de ce matériau qui lui confère ses propriétés. Ensuite, nous décrirons le protocole d'élaboration du PZT en couches minces qui a été développé au laboratoire et optimisé en vue de mesures optiques. Dans une deuxième partie, les propriétés optiques des couches minces de PZT seront étudiées par une spectroscopie dont le principe sera décrit. Enfin, la précision des mesures sur les indices optiques et les épaisseurs des échantillons analysés sera déterminée.

## 1.1 Propriétés du zirconate titanate de plomb

L'arrangement atomique de la maille élémentaire d'une structure cristalline définit le groupe de symétrie du cristal (appelé aussi classe de symétrie). On entend par groupe de symétrie un ensemble d'opérations géométriques (rotation, réflexion, symétrie centrale...) qui conservent l'arrangement atomique au sein du cristal. Il existe en cristallographie 32 groupes de symétrie, parmi lesquels, 11 sont centrosymétriques et ne possèdent donc pas de moments dipolaires [10]. Les 21 autres classes sont non centrosymétriques. Dans ces 21 classes, 20 ont leur polarisation qui varie en fonction de la contrainte mécanique exercée sur le cristal, on parle de la classe piézoélectrique. Parmi ces 20 classes cristallines, la moitié présente au moins un axe polaire dans une certaine gamme de température et une polarisation qui est fonction de cette température, on parle alors de classe pyroélectrique. Enfin, parmi les 10 classes pyroélectriques, certaines ont au moins deux axes polaires en absence de toute contrainte et présentent une polarisation spontanée  $P_S$ , réversible par application d'un champ électrique, ce sont les classes cristallines ferroélectriques. L'ensemble des classes cristallines est résumé sur la figure 1.1.

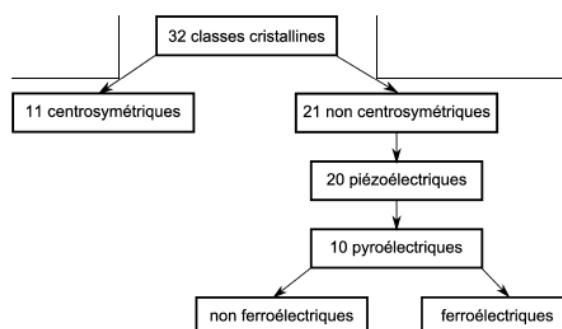


FIG. 1.1 – Classes cristallines.



### 1.1.1 Propriétés structurales

Au delà d'une certaine température, la polarisation spontanée d'un matériau ferroélectrique disparaît et en deçà, elle décroît avec la température. Le matériau passe alors d'une phase ferroélectrique à la phase paraélectrique [11]. La température associée à cette transition est appelée température de Curie  $T_c$  ou température de transition de phase. Les matériaux ferroélectriques ne présentent pas tous la même transition de phase, on peut les classer en deux catégories [12] qui sont la transition de type ordre-désordre et la transition dite «displacive». Pour la transition ordre-désordre, dans la phase paraélectrique, le moment dipolaire de la maille élémentaire n'a aucune orientation privilégiée, le moment dipolaire résultant à l'échelle macroscopique est nul mais il est toujours présent à l'échelle microscopique. En revanche, dans la phase ferroélectrique, les moments dipolaires des différentes mailles du cristal sont ordonnés suivant une même direction, le moment dipolaire à l'échelle macroscopique est non nul. Pour la transition displacive, la maille élémentaire n'a pas de moment dipolaire dans la phase paraélectrique (qui est centrosymétrique) même à l'échelle microscopique car il y a une compensation parfaite entre les charges électriques négatives et positives de la maille. Cependant dans la phase ferroélectrique, par déplacement des ions de la maille un moment dipolaire permanent apparaît. Ces transitions displacives sont caractéristiques des structures de type pérovskite comme le  $\text{BaTiO}_3$  ou le PZT. Sur le schéma de la figure 1.2a est représenté une maille cubique faces centrées de type pérovskite ( $\text{ABO}_3$ ) où les atomes métalliques du matériau, de charge positive, occupent les sites A et B. Les autres sites sont occupés par les atomes d'oxygène dont les charges sont négatives. Dans cette structure, le barycentre des charges négatives et le barycentre des charges positives coïncident, le moment dipolaire de la maille est donc nul, il s'agit de la phase paraélectrique.

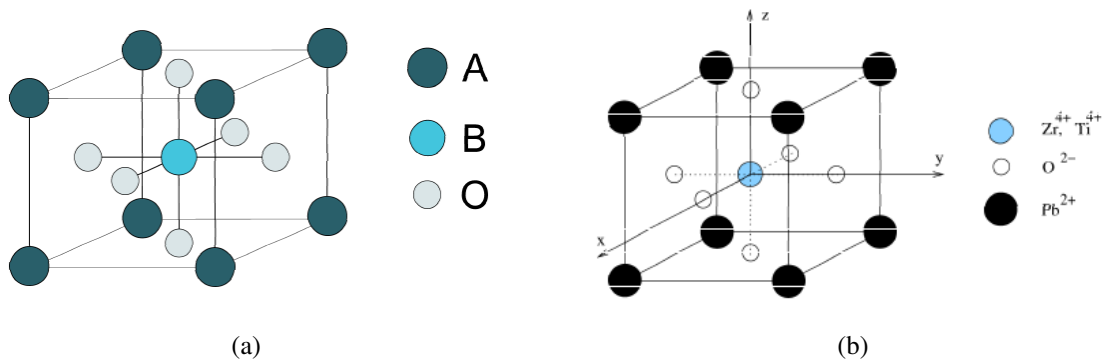


FIG. 1.2 – Structures pérovskites cubique faces centrées (a) et cubique du PZT paraélectrique ( $T > T_c$ ) (b).

Dans le cas du  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  par exemple, l'ion en site A est le plomb  $\text{Pb}^{2+}$  et l'ion

en site B est soit un ion titane  $Ti^{4+}$ , soit un ion zirconium  $Zr^{4+}$  (Fig. 1.2b). En général, dans la phase ferroélectrique, la déformation de la maille cubique peut se faire suivant des axes principaux qui correspondent à une arête du cube, une diagonale du cube ou une diagonale de surface du cube.

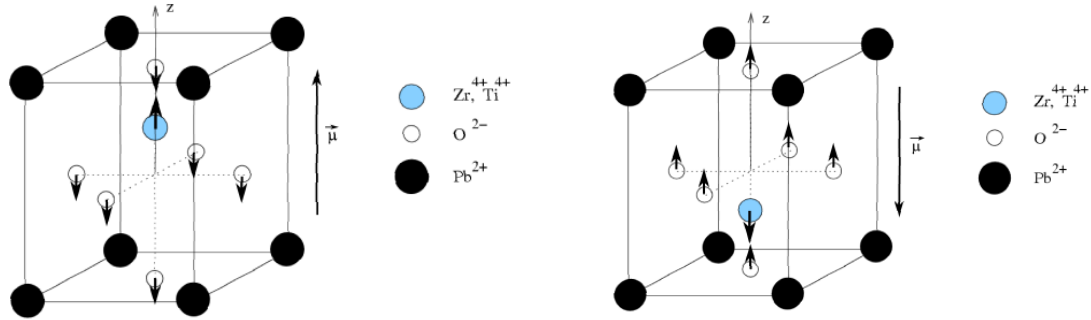


FIG. 1.3 – Structures tétragonales du PZT ferroélectrique

À titre d'illustration, prenons l'exemple de la déformation le long d'une arête du cube définie par l'axe  $z$ . Cette déformation engendre une structure tétragonale (Fig. 1.3). Dans le cas du PZT, les atomes métalliques ( $Zr^{4+}$ ,  $Ti^{4+}$ ) et les atomes d'oxygène ( $O^{2-}$ ) se déplacent en sens contraire suivant l'axe  $z$ . Les barycentres des charges négatives et des charges positives ne sont plus superposés, il y a alors formation d'un moment dipolaire. Il existe deux sens de polarisation possibles pour cette direction (Fig. 1.3), il en est de même pour les autres arêtes du cube. Pour cette transition de phase paraélectrique/ferroélectrique associée à une transition structurale cubique/tétragonale (Fig. 1.4a), il existe alors trois axes de déformation et donc six orientations possibles du moment dipolaire.

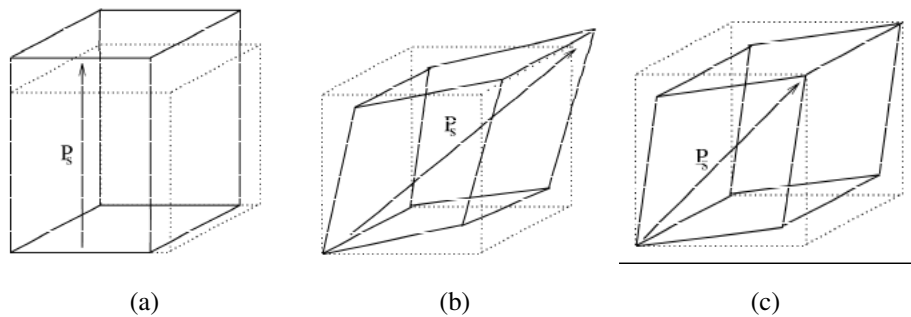


FIG. 1.4 – Déformations de la maille cubique dans le cas du  $BaTiO_3$  en phase tétragonale(a), en phase rhomboédrique (b) et en phase orthorhombique(c)

Dans le cas d'une transformation structurale de type cubique/rhomboédrique (Fig. 1.4b), le cube se déforme le long de la diagonale du volume, il existe alors quatre axes de dé-

formation possibles et huit orientations du moment dipolaire. Dans le dernier cas correspondant à la transformation structurale cubique/orthorhombique (Fig. 1.4c), le cube se déforme le long d'une diagonale de surface, il existe alors six axes de déformation et donc douze orientations du moment dipolaire.

Jaffe et al [13], ont établi un diagramme de phase présentant les différentes structures cristallines du PZT en céramique massive (Fig. 1.5). Sur le diagramme, on remarque que la structure considérée dépend à la fois du rapport molaire Zr/Ti du PZT et de la température. La température ambiante (25 °C) est représentée par une ligne en pointillé sur le diagramme. Quand la composition du matériau est inférieure à 52% en zirconium, le PZT est en phase tétragonale. Pour une composition comprise entre 52% et 92% en zirconium, il est en phase rhomboédrique (haute et basse température). Enfin, pour une composition supérieure à 92% le PZT est en phase orthorhombique qui est une phase antiferroélectrique.

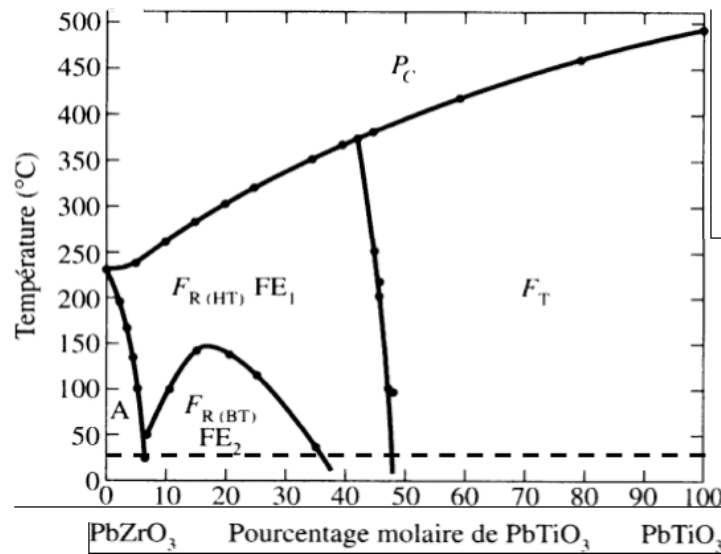


FIG. 1.5 – Diagramme de phase du PZT en céramique massive [13]. A : Antiferroélectrique,  $F_R(HT)$  : ferroélectrique rhomboédrique haute température,  $F_R(BT)$  : ferroélectrique rhomboédrique basse température,  $F_T$  : ferroélectrique tétragonale et  $P_C$  : paraélectrique cubique.

En couches minces, en général, il est souhaité d'obtenir des structures orientées de manière homogène, on parle alors d'échantillons épitaxiés. Ceci est en principe possible à partir de substrats orientés, cependant, ces structures sont difficiles à obtenir et sont assez onéreuses. Les couches minces élaborées à partir de substrats non orientés comme le verre, sont des céramiques polycristallines constituées de différents grains, comparables à des monocristaux de petites dimensions orientés aléatoirement et liés entre eux par des zones appelées joints de grains. Dans ces zones, l'arrangement atomique est différent de la structure cristalline des grains. Chacun des grains est divisé pour des raisons énergé-

tiques en plusieurs domaines où la polarisation est homogène et orientée suivant un axe de polarisation permis (Fig. 1.6). La structure des grains, par leur dimension, conditionne fortement les propriétés électriques et optiques des matériaux ferroélectriques.

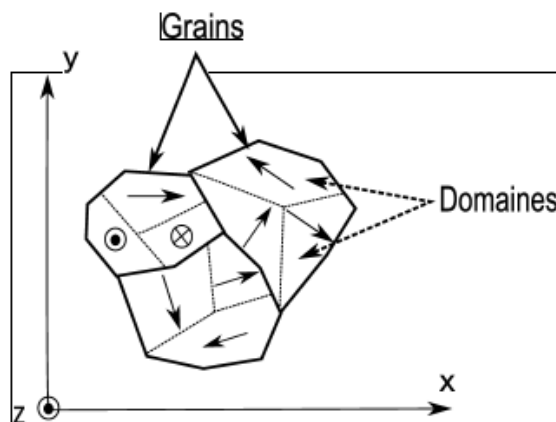


FIG. 1.6 – Représentation de grains et de domaines pour un matériau ferroélectrique de structure tétragonale.

Il est possible d'étudier la réponse du matériau à une onde optique (i.e. son indice optique) [14]. En particulier, les matériaux PZT,  $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{LiNbO}_3$ , ... présentent une forte dépendance de leur indice optique à l'application d'un champ électrique. Quand cette variation est linéaire avec l'intensité du champ appliqué, on parle alors d'effet électro-optique Pockels. La littérature nous donne quelques valeurs de coefficients électro-optiques linéaires Pockels (Tableau 1.1) pour le PZT, PLT (Plomb Lanthane Titanate) et PLZT (Plomb Lanthane Zirconate Titanate) obtenus par différentes méthodes de fabrication.

Le niobate de lithium ( $\text{LiNbO}_3$ ) est le matériau le plus couramment utilisé dans les modulateurs électro-optiques. Or la réponse électro-optique du PZT à l'application d'un champ électrique ( $15\text{-}315 \text{ pm.V}^{-1}$  à  $\lambda=632,8 \text{ nm}$ ) est au moins du même ordre de grandeur que celle du niobate de lithium ( $31 \text{ pm.V}^{-1}$  à  $\lambda=632,8 \text{ nm}$ ). Il est donc envisageable de mesurer une variation d'indice du PZT sous contrainte d'un champ électrique. Par contre, contrairement au  $\text{LiNbO}_3$ , le PZT n'existe pas sous forme de monocristaux.

| Films                                 | coefficients linéaires<br>( $pm/V$ ) | Références |
|---------------------------------------|--------------------------------------|------------|
| Sol-gel PZT 53/47                     | 315                                  | [15]       |
| Sol-gel PZT 65/35 épitaxiale          | 108                                  | [16]       |
| Pulvérisation PLT 21 épitaxiale       | 81                                   | [17]       |
| Sol-gel PLT 28                        | 59                                   | [15]       |
| PLT pulvérisation 28                  | 55                                   | [18]       |
| Sol-gel PZT 53/47                     | 50                                   | [19]       |
| Sol-gel PZT 50/50                     | 40                                   | [20]       |
| Pulvérisation PLT 21                  | 28                                   | [21]       |
| Sol-gel PZT 60/40                     | 24                                   | [22]       |
| Sol-gel PLZT 8/65/35                  | 20                                   | [23]       |
| Pulvérisation PZT 56/42               | 15                                   | [24]       |
| PLZT massif 8/40/60                   | 102                                  | [25]       |
| PLZT massif 8/65/35                   | 421                                  | [26]       |
| monocristal de $LiNbO_3$ ( $r_{33}$ ) | 31,4                                 | [27]       |

TAB. 1.1 – Coefficients électro-optiques linéaires de PZT, PLT et PLZT à la longueur d'onde  $\lambda=632,8\text{ nm}$ .

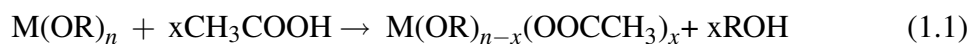
### 1.1.2 Élaboration de PZT en couches minces

La solution solide de zirconate titanate de plomb  $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$  a été synthétisée pour la première fois en 1954 par Jaffe et al. [28]. Le PZT était alors obtenu sous forme de céramiques massives [20, 29, 30, 31], mais le matériau est par ailleurs souvent déposé et étudié sous forme de couches minces car ces dernières permettent, de part leur faible épaisseur, une intégration facile dans des dispositifs. En effet, elles peuvent aussi bien être déposées que gravées, il est alors possible d'obtenir différentes formes géométriques de couches minces. Il existe différentes techniques de dépôt en couches minces, certaines nécessitent de travailler sous vide comme la pulvérisation cathodique [17, 18, 24], l'ablation laser [32] et les dépôts chimiques en phase vapeur CVD [33]. Les techniques de dépôt ne nécessitant pas le vide sont les méthodes de dépôt chimique en solution [19, 22, 34] comme les techniques Sol-Gel [35], Décomposition Métal Organique (MOD) [23] et les techniques utilisant des solutions chélatées [22].

Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé une technique dérivée de la méthode présentée par Yi et al. [22, 36], technique basée sur les solutions chélatées. Cette méthode utilise une solution précurseur composée de ligands acide acétique modifiés, la solution est formée à partir d'alkoxydes contenant les éléments métalliques Zr et Ti et d'un réactif

composé d'acétate de plomb dissous dans de l'acide acétique. Les alkoxydes sont précurseurs des espèces en site B et l'acétate de plomb est précurseur de l'espèce en site A dans la structure pérovskite  $ABO_3$  (Fig. 1.2).

La réaction principale est une chélation des alkoxydes métalliques, qui est illustrée ici pour une réaction d'un alkoxyde  $M(OR)_n$  avec l'acide acétique  $CH_3COOH$  :



L'alkoxyde métallique  $M(OR)_n$  est transformé en chélate  $M(OR)_{n-x}(OOCCH_3)_x$  par échange de ligands avec l'acide acétique. La principale fonction des agents de chélation est la réduction de la sensibilité d'hydrolyse des composés d'alkoxyde, ce qui permet d'obtenir des solutions plus stables à l'air. Cette méthode a été adaptée dans notre laboratoire aux dépôts sur substrats métalliques d'inox par R. Seveno [37] et P. Limousin [38] en vue de caractérisations électriques des films. J. Cardin a étendu cette technique aux substrats de verre pour la caractérisation optique des matériaux [9].

Mes travaux de thèse font suite aux travaux réalisés par J. Cardin. Pour obtenir une solution de PZT, de l'acétate de plomb tri-hydraté  $Pb(CH_3CO_2)_2 \cdot 3H_2O$  est mélangé à de l'acide acétique dans un rapport de 1,0 *ml* d'acide pour 1,2 *g* d'acétate de plomb. La solution est mise sous agitation magnétique et chauffée à une centaine de degrés jusqu'à dissolution complète de l'acétate de plomb. Elle est ensuite laissée à refroidir jusqu'à température ambiante dans un bac à ultrason. Une deuxième solution préparée à partir d'alkoxydes de *n*-propoxyde de zirconium et de *n*-propoxyde de titane est mélangée à température ambiante, dans les proportions souhaitées en alkoxydes, jusqu'à obtention d'une solution homogène. Les deux solutions sont alors mélangées, la solution résultante est mise sous agitation pendant une dizaine de minutes. Passé ce délai, 0,8 *ml* d'éthylène glycol sont ajoutés car selon Yi [22] ce dernier limite la formation de craquelures dans les films après traitement thermique. La solution est de nouveau agitée pendant une dizaine de minutes puis filtrée à l'aide de seringues munies de filtres dont les diamètres de filtration sont de 0,2  $\mu m$ . La solution est alors déposée sur des substrats Corning à l'aide d'une tournette avant d'être cristallisée. Les substrats Corning sont utilisés car leur coefficient d'expansion thermique est proche de celui des couches minces de PZT, le nombre de craquelures est ainsi considérablement réduit. Le protocole de réalisation est donné sur l'organigramme de la figure 1.7.

L'étape de cristallisation des échantillons est un point important. J. Cardin a étudié par diffraction X des solutions solides de  $Pb_{1.4}(Zr_{0.36}Ti_{0.64})O_3$  pour différentes températures de recuit. Les températures de cristallisation retenues sont celles où les couches obtenues cristallisent dans une phase pérovskite exempte de phase pyrochlore de type  $Pb_2(Zr,Ti)_2O_7$  (structure fluorite)<sup>1</sup> [39]. D'autre part, des pertes en plomb lors du trai-

---

<sup>1</sup>Le problème de la phase pyrochlore est d'avoir une structure centrosymétrique et donc paraélectrique,

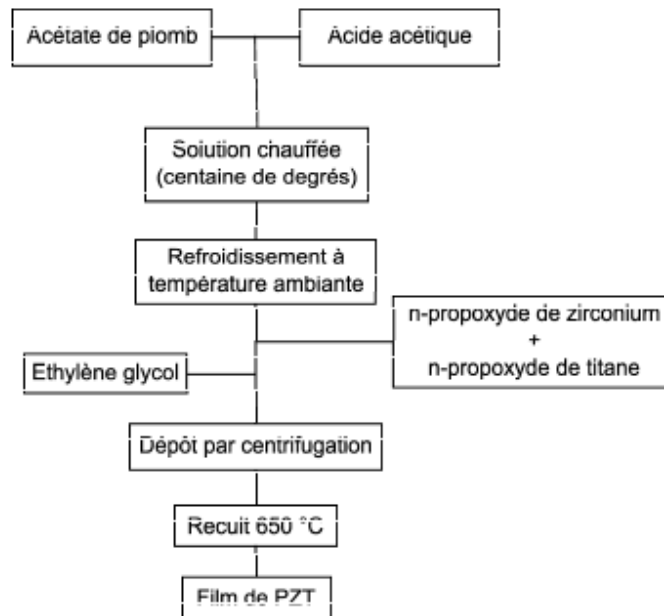


FIG. 1.7 – Organigramme de la fabrication des couches minces de PZT.

tement thermique sont également à l'origine de la formation d'une phase majoritaire pyrochlore. Il est possible de pallier ces pertes en plomb par l'utilisation d'une stœchiométrie excédentaire en plomb, mais l'ajustement de cet excès de plomb n'est pas vraiment contrôlable. Le film de PZT est alors excédentaire en plomb après cristallisation et on observe, comme nous le verrons plus tard une zone de diffusion du plomb dans le verre. Dans le cadre de nos études, une température de recuit à  $650^{\circ}\text{C}$  a été retenue. Pour la cristallisation, un traitement thermique avec une montée en température très rapide, appelé RTA pour Rapid Thermal Annealing, est plutôt favorable à la formation d'une phase pérovskite majoritaire. Le refroidissement a été réalisé à deux vitesses différentes : un refroidissement rapide ( $T1$ ) hors du four et un refroidissement lent ( $T2$ ) dans le four. Au total, six échantillons de même composition ont été élaborés avec le refroidissement rapide  $T1$  et six autres ont été élaborés avec le refroidissement lent  $T2$ . Les mesures en diffraction X ne montrent pas de différences notables sur la structure des échantillons obtenus par ces deux traitements (Fig. 1.8).

Enfin, nous avons effectué une étude en composition en faisant varier le rapport de Zr/Ti de 0/100 à 100/0 pour la température de cristallisation de  $650^{\circ}\text{C}$ . Les quantités Zr/Ti dans les couches minces ont été vérifiées par des mesures de microanalyse et la cristallisation a été déterminée par diffraction X. Les mesures de diffraction X pour les échantillons à 0% de zirconium (Fig. 1.9a) montrent un dédoublement du pic (100) situé à  $2\Theta = 22^{\circ}$ ,

elle en amoindri donc les propriétés électro-optiques.

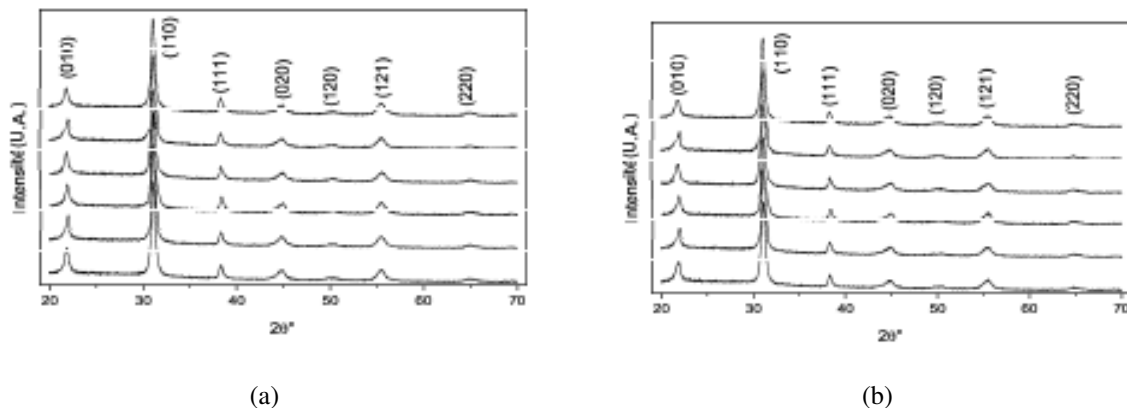


FIG. 1.8 – Spectres de diffraction X réalisés sur films de PZT avec refroidissement rapide  $T1$  (a) et refroidissement lent  $T2$  (b).

alors que la composition à 60% de zirconium (Fig. 1.9b) ne présente pas de dédoublement de ce même pic. Si on se réfère au diagramme de phase (Fig. 1.5) ce dédoublement de pic correspondrait au passage de la phase tétragonale à la phase rhomboédrique.

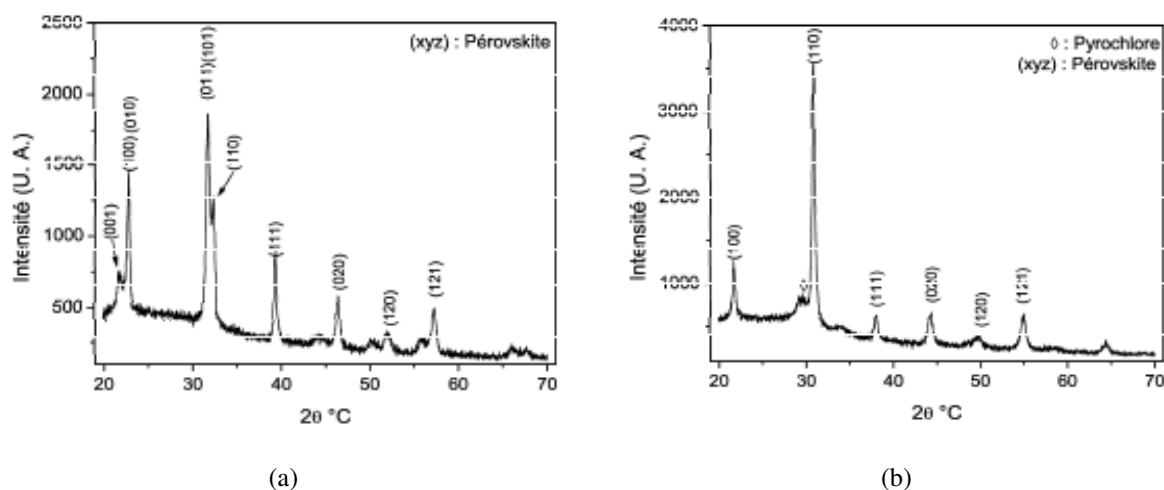


FIG. 1.9 – Diffractogramme X réalisés sur des films de PZT 00/100 (a) et PZT 60/40 (b) ayant subi un traitement à  $650^{\circ}\text{C}$ .

À partir des mesures de diffraction X, nous avons calculé les paramètres de maille, ces valeurs sont peu précises mais illustrent bien le passage de la phase tétragonale à la phase rhomboédrique. En effet, sur la figure 1.10, pour un pourcentage de zirconium supérieur à 50%, les paramètres de maille  $a$ ,  $b$  et  $c$  sont égaux, traduisant la présence de la structure rhomboédrique.

Afin d'approfondir la caractérisation structurale des échantillons, nous avons effec-



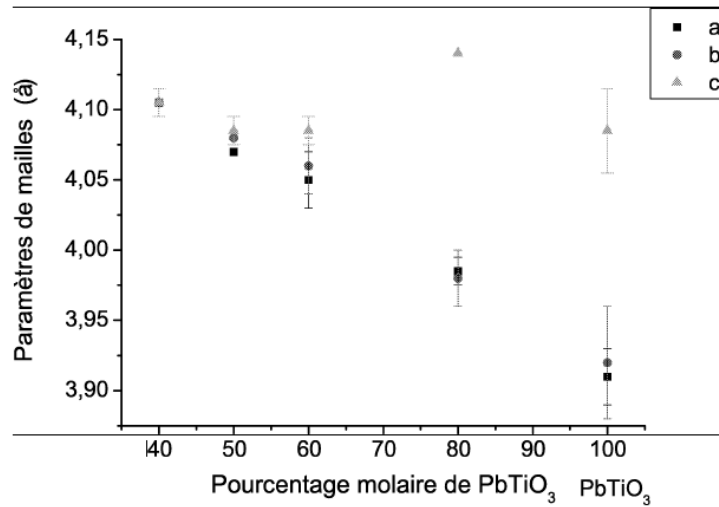


FIG. 1.10 – Variation des paramètres de maille en fonction de la quantité de zirconium.

tué des caractérisations optiques. Dans la partie suivante, nous discuterons de la méthode de caractérisation choisie et nous confronterons les mesures optiques aux caractérisations structurales.

## 1.2 Méthode de caractérisation optique des couches minces

Pour déterminer l'indice de réfraction du matériau, il existe différentes techniques de mesures [40]. L'ellipsométrie est couramment utilisée, elle se base sur la mesure du changement d'état de polarisation de la lumière après réflexion sur une surface plane du matériau. La littérature reporte également de techniques basées sur des mesures de transmission ou réflexion [41]. La spectroscopie *m*-lines développée par Tien et Ulrich [1, 2, 3, 4] est la technique retenue pour notre étude. Cette spectroscopie, basée sur l'excitation sélective de modes de propagation, est bien adaptée à l'étude des guides diélectriques pour des applications à l'optique guidée car elle permet de déterminer avec une grande précision l'indice et l'épaisseur du guide [1]-[45]. Dans le cadre de notre étude, les couches minces élaborées par CSD (Chemical Solution Deposition) constituent des guides d'onde plans infinis à saut d'indice. La méthode de spectroscopie *m*-lines est donc bien adaptée pour l'étude de ces structures. Il est par ailleurs possible de caractériser des structures à gradient d'indice monotone en reconstruisant le profil d'indice par la méthode WKB (Wentzel-Kramer-Brillouin) [46, 47, 48].

## 1.2.1 Montage expérimental et principe de mesures

Le banc de mesure *m*-lines a été mis en place au laboratoire par J. Cardin [9]. Le dispositif utilise une configuration en réflexion, le montage est représenté sur la figure 1.11.

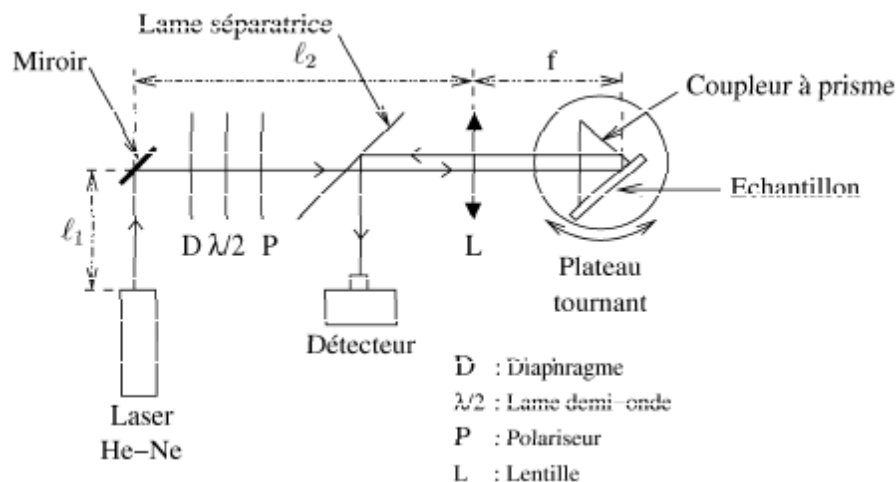


FIG. 1.11 – Schéma du dispositif de spectroscopie *m*-lines.

La source lumineuse est un laser hélium-Néon à 632,8 nm de longueur d'onde. Le faisceau laser est réfléchi par un miroir afin d'être dirigé sur le prisme. Il traverse d'abord un diaphragme puis une lame demi-onde  $\lambda/2$  et un polarisateur qui permettent de contrôler la polarisation de l'onde incidente. Le faisceau traverse ensuite une lame séparatrice puis il est focalisé par une lentille dans le prisme en ZnSe où il est doublement réfléchi aux interfaces prisme/échantillon et prisme/air. Il ressort alors parallèlement au faisceau incident et la lame séparatrice réfléchit une partie de ce faisceau retour sur le détecteur.

L'échantillon à analyser est pressé contre le prisme à l'aide d'une vis de serrage. La couche mince est assimilée à un guide d'onde plan contenant un nombre fini de modes pouvant être excités. Le coupleur à prisme, formé d'un système « substrat, couche mince, couche mince d'air et prisme » (Fig. 1.12), est placé sur une platine de rotation motorisée de précision qui permet de faire varier l'angle d'incidence  $\Phi$ . Pour certaines valeurs angulaires particulières, il y a un accord de phase entre l'onde incidente et un des modes guidés, le couplage d'un mode dans la couche mince est alors réalisé. Cet accord de phase se produit quand la composante horizontale du vecteur d'onde ( $n_p k_0 \sin \theta$ ) de l'onde incidente dans le prisme est égale à celle d'un mode guidé  $m$  ( $\beta_m$  avec  $0 \leq m < M$ ). La spectroscopie *m*-lines permet donc, en fonction de l'angle d'incidence du faisceau laser, d'exciter sélectivement les modes d'un film mince par onde évanescente. Quand un

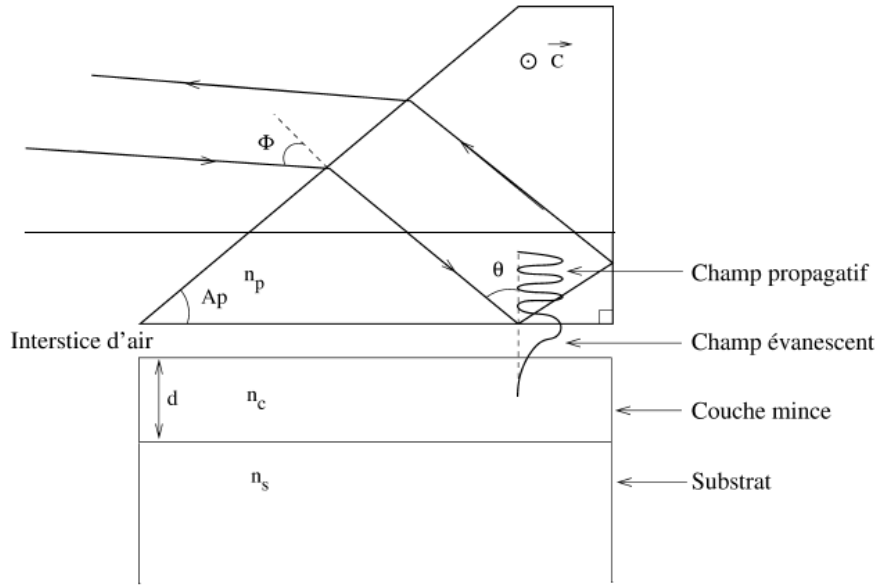


FIG. 1.12 – Coupleur à prisme montrant le couplage de l'onde dans la couche mince par champ évanescent.

mode est excité, une partie de l'onde incidente est guidée dans la couche mince, le détecteur enregistre alors une chute d'intensité lumineuse. En fin d'acquisition, on obtient un spectre qui présente différents creux (Fig. 1.13) dont les minimums définissent les angles synchrones. Le premier angle mesuré (valeur angulaire la plus élevée) correspond au mode d'ordre le plus faible  $m_0$ . Les autres modes sont ensuite indexés en prenant les valeurs  $m_0 + 1, m_0 + 2$ , etc... Le mode expérimental  $m_0$  mesuré n'est pas toujours le mode fondamental car il est difficile d'exciter les modes d'ordre faible. Au problème de la détermination de l'indice de réfraction et de l'épaisseur s'ajoute une troisième inconnue qui est l'indexation des modes.

Pour déterminer l'indice de réfraction du guide à partir des spectres  $m$ -lines, il faut résoudre les équations de dispersion. À chaque mode guidé  $m$  correspond une équation de dispersion définie pour les modes (TE) et (TM) par [1, 2] :

$$\begin{cases} \text{TE} & m\pi = dk_0 \sqrt{n_c^2 - N_m^2} - \arctan \sqrt{\frac{N_m^2 - n_a^2}{n_c^2 - N_m^2}} - \arctan \sqrt{\frac{N_m^2 - n_s^2}{n_c^2 - N_m^2}} \\ \text{TM} & m\pi = dk_0 \sqrt{n_c^2 - N_m^2} - \arctan \frac{n_c^2}{n_a^2} \sqrt{\frac{N_m^2 - n_a^2}{n_c^2 - N_m^2}} - \arctan \frac{n_c^2}{n_s^2} \sqrt{\frac{N_m^2 - n_s^2}{n_c^2 - N_m^2}} \end{cases} \quad (1.2)$$

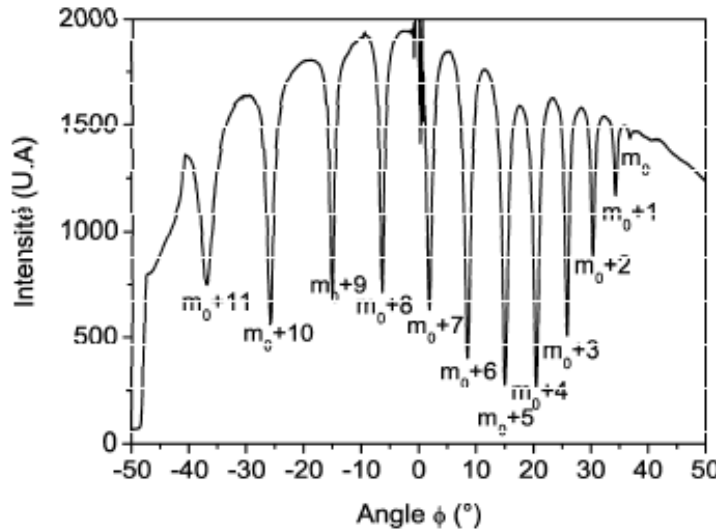


FIG. 1.13 – Spectre  $m$ -lines réalisé sur un échantillon de PZT en phase pyrochlore.

où

$$\left\{ \begin{array}{l} m : \text{ordre du mode considéré } (m = m_0, m_0 + 1, m_0 + 2, \text{ etc...}) \\ d : \text{épaisseur de la couche} \\ n_c, n_s, n_a : \text{indices de réfraction de la couche, du substrat et du superstrat} \\ N_m : \text{indice effectif du mode } m \text{ considéré} \end{array} \right.$$

Les indices effectifs figurant dans les équations de dispersion sont directement reliés aux valeurs des angles synchrones  $\phi_m$  mesurés par la relation :

$$N_m = n_p \sin \left[ A_p + \arcsin \left( \frac{\sin \phi_m}{n_p} \right) \right] \quad (1.3)$$

où

$$\left\{ \begin{array}{l} \phi_m : \text{angle synchrone mesuré pour le mode d'ordre } m \\ A_p : \text{angle au pied du prisme} \\ n_p : \text{indice de réfraction du prisme} \end{array} \right.$$

Chaque angle synchrone définit alors une équation de dispersion où les inconnues sont l'indice de réfraction  $n_c$ , l'épaisseur de la couche  $d$  et l'ordre du mode  $m$  (ce qui revient à déterminer  $m_0$  car les valeurs de  $m$  sont indexées à partir de  $m_0$ ). On peut alors envisager de résoudre un système de trois équations à trois inconnues pour déterminer une solution. Cependant, la valeur de  $m_0$  calculée par la résolution du système n'est pas entière et on observe des erreurs sur l'indice et l'épaisseur. Comme d'expérience, nous savons que le premier mode mesuré ne dépasse généralement pas l'ordre cinq. Nous avons alors

choisi de résoudre des systèmes à deux inconnues  $n_c$  et  $d$  et d'incrémenter la valeur de  $m_0$  par des valeurs entières à partir du mode fondamental (i.e.  $m_0 = 0$ ) jusqu'au mode d'ordre neuf. À chaque valeur de  $m_0$ , on détermine un couple de solutions  $(n_c, d)$  par résolution d'un système de deux équations de dispersion à deux inconnues, il est donc nécessaire de mesurer au minimum deux modes. Si un nombre  $M$  de modes supérieur à deux est mesuré, on résout un ensemble de  $C_M^2$  systèmes par permutation des équations. La solution est alors calculée en moyennant les différentes solutions des systèmes. À chaque solution calculée pour une valeur de  $m_0$  est attribuée une fonction coût  $\sigma(m_0)$  (1.4) qui représente l'écart quadratique entre les angles mesurés  $\phi_j^{mes}$  par la spectroscopie  $m$ -lines ( $0 \leq j < M$ ) et les angles  $\phi_j^{cal}$  déterminés à partir des  $C_M^2$  solutions. Un ensemble de dix solutions est alors déterminé (Fig. 1.14a), la bonne indexation de  $m_0$  et donc les valeurs correctes de l'indice et de l'épaisseur sont définies pour la solution associée à la plus faible valeur de  $\sigma(m_0)$  (Fig. 1.14b). Dans le cas des graphiques de la figure 1.14, la solution correcte est celle associée à l'indexation  $m_0 = 0$  (Fig. 1.14b), le premier mode mesuré est donc bien le mode fondamental.

$$\sigma_{m_0} = \sqrt{\sum_{i=1}^{C_M^2} \sum_{j=1}^M \frac{(\phi_{ij}^{mes} - \phi_j^{cal})^2}{MC_M^2}} \quad (1.4)$$

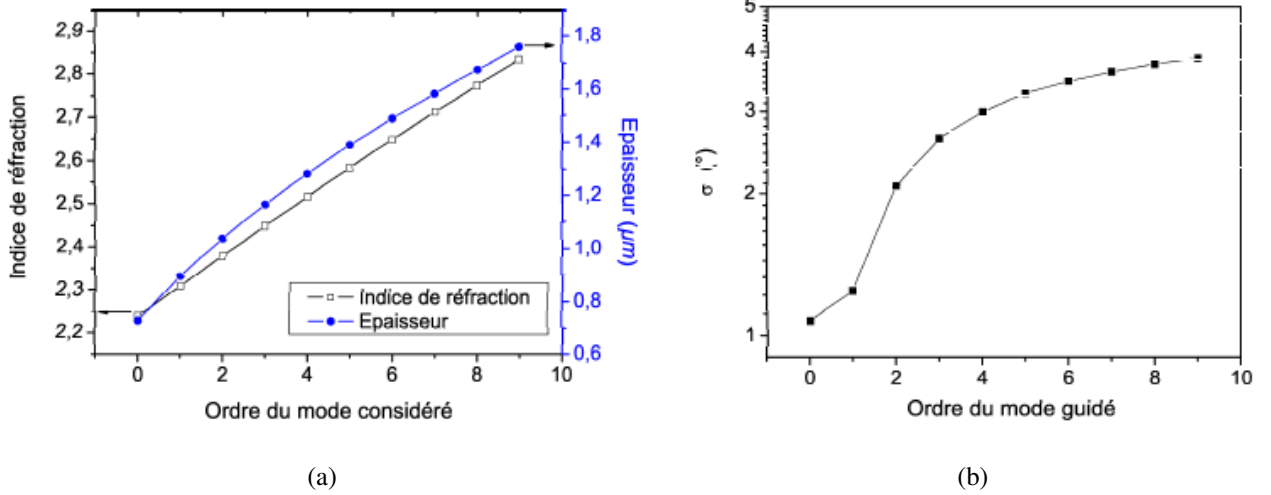


FIG. 1.14 – (a) Solutions  $n_c$  et  $d$  en fonction de l'ordre du mode  $m_0$ . (b) Variation de la fonction coût  $\sigma_i$  en fonction de l'ordre affecté au premier mode mesuré.

Les équations de dispersion (1.2) sont hautement non linéaires et pour résoudre de tels systèmes, nous avons choisi un algorithme de type Newton-Raphson qui permet une convergence rapide vers les solutions. La précision sur les valeurs d'indice  $n_c$  et d'épaisseur  $d$  déterminées par ce programme dépend directement de la précision sur les mesures

des angles synchrones. Il existe deux types d'erreurs possibles. Une première correspondant à une erreur sur l'origine des angles (position de la platine de rotation), il s'agit alors d'une erreur systématique évaluée à  $0,05^\circ$  [9]. Une deuxième provenant de la position sur le minimum des pics *m*-lines qui peut être supérieure à l'erreur précédente. Pour un spectre *m*-lines réalisé sur un échantillon de PZT en phase pérovskite, l'erreur commise sur la lecture de l'angle est de l'ordre de  $\pm 0,10^\circ$  (Fig. 1.15). Cette incertitude de lecture étant supérieure à la première, elle est prise en compte dans le calcul d'erreur sur les indices  $\Delta n$  et les épaisseurs  $\Delta d$ . Ce calcul pour toutes les combinaisons de modes donne les incertitudes moyennes :  $\Delta n = 3.10^{-3}$  et  $\Delta d = 10nm$  pour une épaisseur de couche d'environ  $1\mu m$  (soit une erreur relative pour l'épaisseur d'environ 1%). En revanche, pour

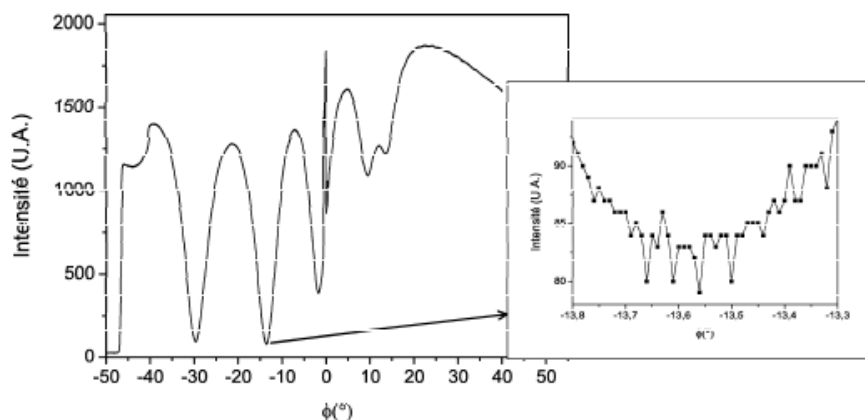


FIG. 1.15 – Spectres M-lines de films de PZT 36/64 avec 40% d'excès de plomb en phase pérovskite (polarisation TE).

un spectre *m*-lines réalisé sur du PZT en phase pyrochlore, l'incertitude sur la position du minimum est de  $\pm 0,01^\circ$  (Fig. 1.16), cette fois-ci l'erreur la plus élevée est due à la détermination de l'origine des angles, elle est donc de  $0,05^\circ$ . Le calcul pour toutes les combinaisons de modes donne les incertitudes moyennes :  $\Delta n = 2.10^{-3}$  et  $\Delta d = 10nm$  pour une épaisseur de couche d'environ  $2\mu m$  (soit une erreur relative pour l'épaisseur d'environ 0,5%).

Comme nous l'avons vu, la précision sur la lecture des angles des échantillons de PZT en phase pyrochlore est plus précise que celle des échantillons de PZT en phase pérovskite. En général, les phénomènes de diffusion et d'absorption sont à l'origine de l'élargissement des pics de spectres *m*-lines. La présence des grains, dans le cas du PZT en phase pérovskite, peut donc être à l'origine des erreurs plus élevées sur les mesures.

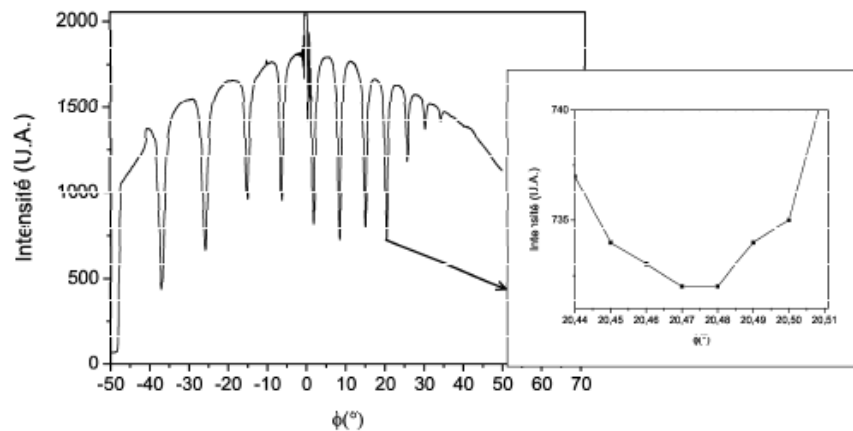


FIG. 1.16 – Spectres M-lines de films de PZT 36/64 avec 40% d'excès de plomb en phase pyrochlore (polarisation TE).

## 1.2.2 Détermination des indices optiques

Différents échantillons ont été caractérisés en spectroscopie *m*-lines afin de déterminer leur indice de réfraction et leur épaisseur. Deux techniques de recuit, une première avec refroidissement rapide *T*1 et une seconde avec refroidissement lent *T*2 ont été employées pour la réalisation des couches. Il s'est avéré que les échantillons élaborés par la technique *T*1 ne donnaient pas systématiquement des résultats analysables lors des mesures *m*-lines contrairement aux échantillons élaborés par la technique de recuit *T*2. Les courbes d'indexation réalisées pour différents échantillons ayant subi un refroidissement rapide (Fig. 1.17a) ne montrent pas une indexation  $m_0$  majoritaire. En revanche, pour le protocole de refroidissement lent d'échantillons, il est possible d'indexer le mode  $m_0$  pour les différents échantillons (1.17b). Pour la poursuite de notre étude un refroidissement lent des échantillons a donc été privilégié.

Différentes compositions d'échantillons ont été réalisées, seules les compositions comprises entre 35 et 52 % de zirconium ont pu être analysées. Les indices de réfraction déterminés pour les différentes compositions sont présentés sur le graphique de la figure 1.18. Une valeur moyenne de 2,23 est obtenue pour l'indice de réfraction avec une légère variation de 0,03.

La composition à 36% de zirconium en solution avec un excès de plomb de 40 % a été retenue car elle donnait les meilleurs résultats en terme de reproductibilité de mesures *m*-lines. D'autre part, il est à noter que la microanalyse des couches minces de PZT, sur

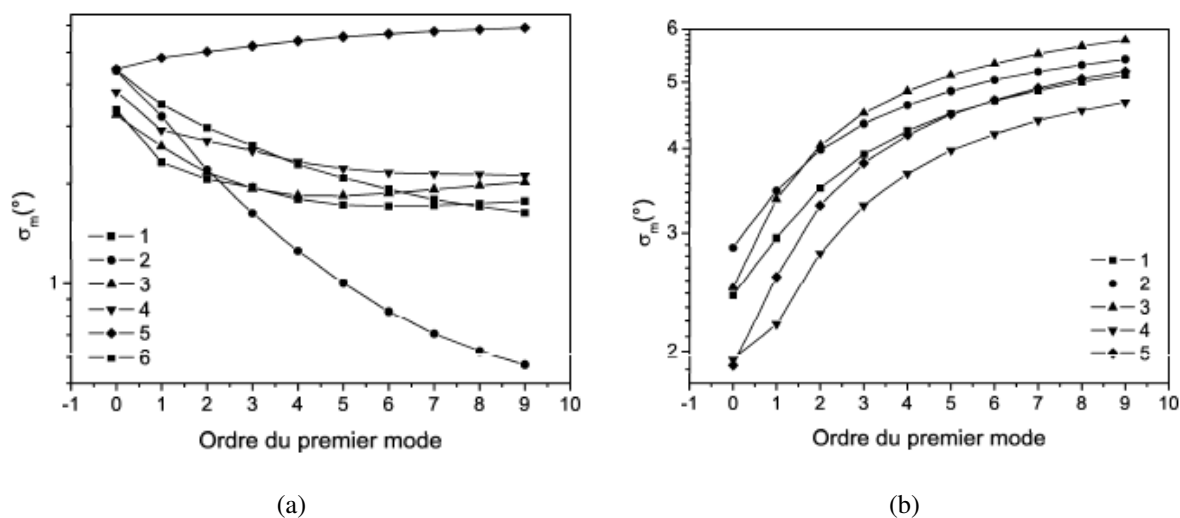


FIG. 1.17 – Courbes d'indexation des films de PZT 36/64 (40% d'excès de plomb) réalisés avec un traitement thermique avec refroidissement rapide  $T_1$  (a) et refroidissement lent  $T_2$  (b).

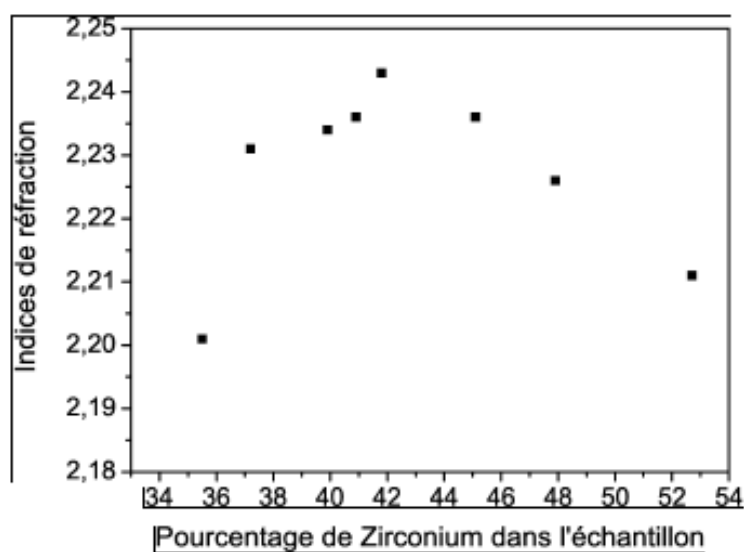


FIG. 1.18 – Variation de l'indice de réfraction en fonction de la composition du matériau.



une profondeur d'environ un micromètre, montre une différence de composition de l'ordre de quelques pourcents entre les quantités introduites en solution et celles mesurées sur les couches (de 2% à 4%). Les échantillons à 36% de zirconium en solution correspondent à une composition de l'ordre de 40% dans l'échantillon.

Enfin, pour étudier la reproductibilité des couches, deux solutions ont été réalisées dans les mêmes conditions pour un rapport Zr/Ti de 36/64 avec un excès de plomb de 40%. À partir de chaque solution, cinq échantillons ont été élaborés avec les mêmes paramètres de tournette et la même température de cristallisation. L'indice de réfraction et l'épaisseur mesurés sur les films sont présentés sur les figures 1.19 et 1.20. Les écarts d'indices et d'épaisseur représentent un seuil de reproductibilité d'élaboration de films à partir d'une même solution précurseur.

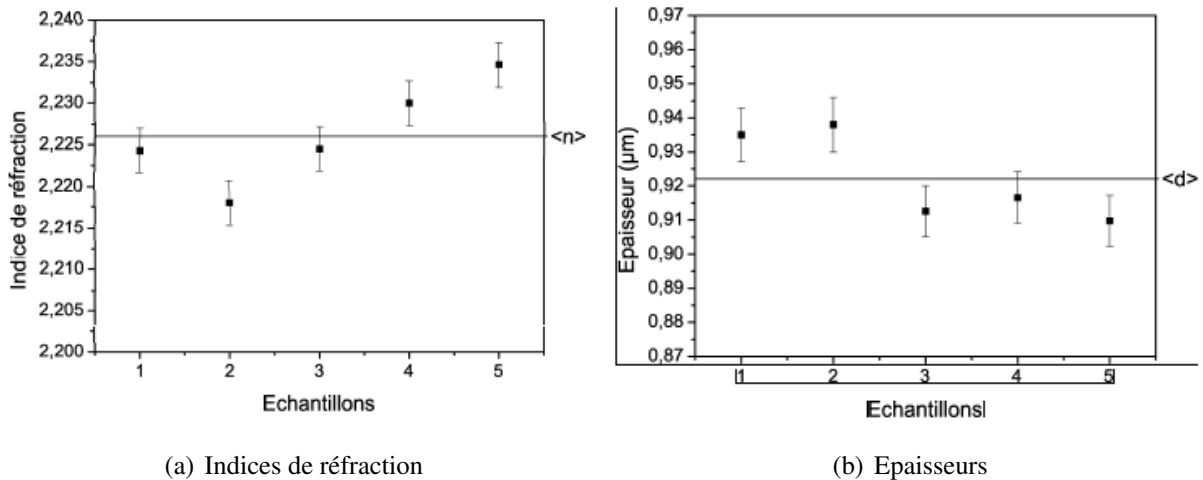


FIG. 1.19 – Indices de réfraction et épaisseurs de films de PZT 36/64 avec 40% d'excès de plomb, 1<sup>ère</sup> solution précurseur (polarisation TE).

Les valeurs moyennes et les dispersions de l'indice de réfraction ( $\max |n - \langle n \rangle|$ ) et de l'épaisseur ( $\max |d - \langle d \rangle|$ ) des deux séries d'échantillons réalisés à partir des deux solutions de composition identique sont présentées dans le tableau (Tab 1.2). De ces résultats nous retiendrons une reproductibilité de  $8.10^{-3}$  pour la valeur de l'indice du matériau et 22 nm pour son épaisseur.

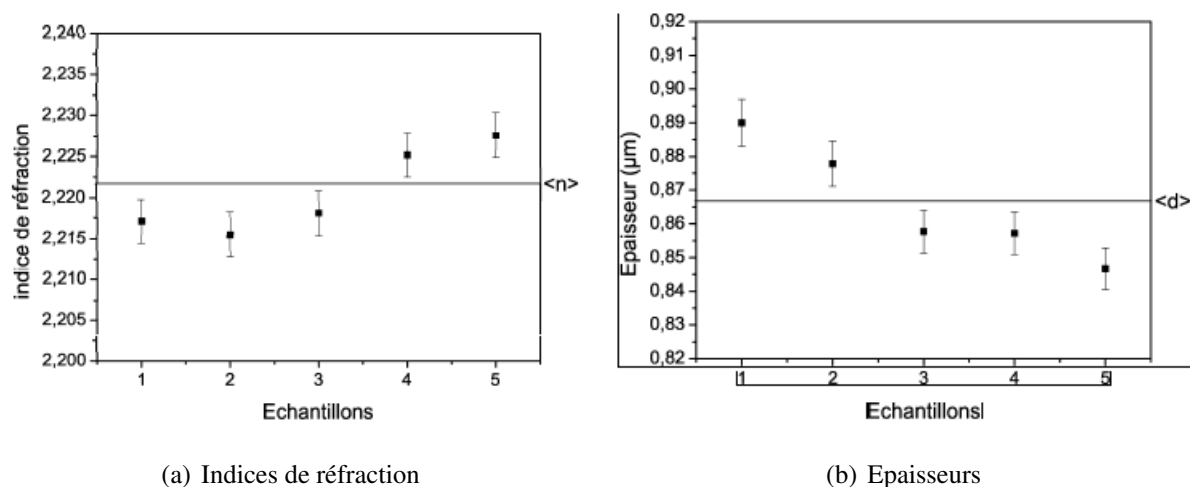


FIG. 1.20 – Indices de réfraction et épaisseurs de films de PZT 36/64 avec 40% d'excès de plomb, 2<sup>ème</sup> solution précurseur (polarisation TE).

| Solution précurseur | $\langle n \rangle$         | $\max  n - \langle n \rangle $         |
|---------------------|-----------------------------|----------------------------------------|
| 1 <sup>ère</sup>    | 2,226                       | $8 \cdot 10^{-3}$                      |
| 2 <sup>ème</sup>    | 2,222                       | $6 \cdot 10^{-3}$                      |
| Solution précurseur | $\langle d \rangle (\mu m)$ | $\max  d - \langle d \rangle  (\mu m)$ |
| 1 <sup>ère</sup>    | 0,922                       | $1,4 \cdot 10^{-2}$                    |
| 2 <sup>ème</sup>    | 0,867                       | $2,2 \cdot 10^{-2}$                    |

TAB. 1.2 – Valeurs moyennes et dispersion de l'indice de réfraction et de l'épaisseur de deux séries de films réalisés à partir de solutions précurseurs de composition identique et dans les mêmes conditions.

### 1.3 Bilan

Dans le cadre de notre étude, le matériau ferroélectrique retenu est le zirconate titanate de plomb  $\text{Pb}_{1.4}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$  appelé PZT. Dans un premier temps, les propriétés du PZT le classifiant dans les matériaux ferroélectriques, ont été étudiées et les différentes structures envisageables de la phase ferroélectrique ont été définies. Ces structures dépendent du rapport molaire entre le zirconium et le titane dans le matériau. Afin de caractériser optiquement le PZT en couche mince, ce dernier a été déposé sur substrat de verre Corning et les mesures optiques des indices ont été réalisées par spectroscopie *m*-lines. Un recuit à 650 °C avec refroidissement lent des échantillons a été retenu. D'autre part, une étude en composition révèle que les échantillons de PZT (36/64) donnent les meilleurs résultats de mesures *m*-lines en terme de reproductibilité. Le matériau ainsi retenu est du PZT (36/64) dont la structure est rhomboédrique et l'indice optique mesuré est d'environ  $2,222 \pm 3.10^{-3}$ .

Par la suite, nous utiliserons les couches minces de PZT, dont le processus d'élaboration a été décrit dans ce chapitre, pour réaliser des structures multicouches. En vue d'analyser ces dernières nous évaluerons la possibilité d'appliquer la spectroscopie *m*-lines à des mesures optiques sur des guides bicouches et tricouches.



# Chapitre 2

## Méthode d'analyse de mesures $m$ -lines pour une structure à trois couches

### Sommaire

---

|            |                                                                     |           |
|------------|---------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>2.1</b> | <b>Quelles équations pour décrire notre problème ? . . . . .</b>    | <b>28</b> |
| 2.1.1      | Structure à trois couches . . . . .                                 | 34        |
| 2.1.2      | Structure bicouche . . . . .                                        | 40        |
| <b>2.2</b> | <b>Méthodologie d'analyse des résultats expérimentaux . . . . .</b> | <b>42</b> |
| 2.2.1      | Comment résoudre le problème pour un système à deux couches         | 42        |
| 2.2.2      | Extension à la structure tricouche . . . . .                        | 46        |
| <b>2.3</b> | <b>Bilan . . . . .</b>                                              | <b>48</b> |

---

Pour analyser les spectres *m*-lines produits par des guides multicouches, il est nécessaire de disposer des équations de dispersion des modes guidés pour ces structures. Le formalisme matriciel est bien adapté à la résolution de ce problème et permet de déterminer les équations de dispersion valides pour les guides tricouches et bicouches, comme cela est exposé dans la première partie du présent chapitre. La seconde partie est dévolue à la mise au point des programmes permettant de résoudre les équations de dispersion et donc de déterminer les caractéristiques opto-géométriques des guides à partir des angles synchrones.

## 2.1 Quelles équations pour décrire notre problème ?

Classiquement, les structures multicouches étudiées sont modélisées par des guides d'onde plans infinis. Bien que les couches minces de PZT présentent une structure en grains, les guides d'onde sont considérés comme des milieux linéaires homogènes, isotropes et non magnétiques. Le matériau PZT ne possède pas de charges libres mais le ZnO étant dopé à l'aluminium, présente une conductivité  $\sigma_{cond}$ . Les équations de Maxwell s'écrivent alors dans le ZnO en présence de charges libres :

$$\text{div } \vec{D} = \rho \quad \text{avec} \quad \vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (2.1)$$

$$\text{div } \vec{H} = 0 \quad \text{avec} \quad \vec{H} = \frac{\vec{B}}{\mu_0} \quad (2.2)$$

$$\text{rot } \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (2.3)$$

$$\text{rot } \vec{H} = \vec{J} + \epsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad \text{avec} \quad \vec{J} = \sigma_{cond} \vec{E} \quad (2.4)$$

L'équation (2.1) peut être dérivée par rapport au temps :

$$\epsilon \text{div } \partial_t \vec{E} = \partial_t \rho$$

En utilisant la divergence sur l'équation (2.4), il est possible d'écrire :

$$\epsilon \partial_t \text{div } \vec{E} = -\sigma_{cond} \text{div } \vec{E}$$

Ces deux relations permettent de déterminer l'équation de conservation de la charge :

$$\partial_t \rho + \frac{\sigma_{cond}}{\epsilon} \rho = 0$$

L'évolution temporelle de la densité de charge  $\rho$  est alors décrite par  $\rho = \rho_0 e^{-\frac{t}{\tau}}$ , la variable  $\tau$  exprime le temps de relaxation qui est défini par  $\tau = \frac{\epsilon}{\sigma_{cond}}$ , dans notre cas  $\tau \simeq 2.10^{-16} s$ . Or la période de l'onde optique  $T$  est d'environ  $2.10^{-15} s$  pour une longueur d'onde  $\lambda = 632.8 nm$ . Devant ces considérations, la valeur de  $e^{-\frac{t}{\tau}}$  figurant dans l'expression de  $\rho$  vaut  $5.10^{-5}$  pour un temps  $t = T$ . Par la suite, l'approximation  $\rho \simeq 0$  dans l'équation (2.1) sera faite. La combinaison des équations (2.3), (2.4) conduit à la relation :

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \epsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \sigma_{cond} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.5)$$

Si on considère des champs monochromatiques sinusoïdaux (harmoniques), le dernier terme de l'équation (2.5) peut s'écrire  $-i\omega \vec{E}$ . L'équation (2.5) devient :

$$\nabla^2 \vec{E} + \hat{k}^2 \vec{E} = \vec{0} \quad (2.6)$$

où

$$\hat{k}^2 = \omega^2 \mu_0 \left( \epsilon + i \frac{\sigma_{cond}}{\omega} \right) \quad (2.7)$$

L'équation (2.6) correspond à l'équation d'onde du champ électrique dans un milieu conducteur. La même équation est obtenue pour le champ magnétique  $\vec{H}$ .

L'empilement des couches minces se faisant dans la direction  $Ox$  (i.e. le plan  $yOz$ ) et la propagation de l'onde ayant lieu suivant l'axe  $Oz$ , les guides sont donc considérés invariants par translation suivant l'axe  $Oy$ . Les champs  $\vec{E}(x, y, z, t)$  et  $\vec{H}(x, y, z, t)$  peuvent donc s'écrire indépendamment de la variable  $y$  :

$$\begin{cases} \Delta \vec{E}(x, z, t) + \hat{k}^2 \vec{E}(x, z, t) = \vec{0} \\ \Delta \vec{H}(x, z, t) + \hat{k}^2 \vec{H}(x, z, t) = \vec{0} \end{cases} \quad (2.8)$$

Dans la littérature [49, 50], la conductivité du ZnO est de l'ordre de  $10^3$  à  $10^4 S.m^{-1}$ . La fréquence optique étant de  $f = 5.10^{14} s^{-1}$ , la partie imaginaire de  $\hat{k}$  est donc négligeable devant sa partie réelle. Les équations d'onde (2.8) s'écrivent donc sous la forme :

$$\begin{cases} \Delta \vec{E}(x, z, t) + \frac{\omega^2 n^2}{c^2} \vec{E}(x, z, t) = \vec{0} \\ \Delta \vec{H}(x, z, t) + \frac{\omega^2 n^2}{c^2} \vec{H}(x, z, t) = \vec{0} \end{cases} \quad (2.9)$$

où  $n$  est l'indice de réfraction du milieu considéré.

Dans le cas d'un milieu matériel homogène et isotrope, une solution de ces équations

tions de propagation est une onde plane harmonique de la forme :

$$\begin{cases} \vec{E}(x, z, t) = \vec{E}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \\ \vec{H}(x, z, t) = \vec{H}_0 e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \end{cases} \quad (2.10)$$

se propageant suivant la direction du vecteur d'onde  $\vec{k}$  avec  $|\vec{k}|^2 = \frac{\omega^2 n^2}{c^2}$ .

Dans le cas des guides d'onde plans tels que nous les avons définis, les ondes se propagent globalement suivant l'axe  $Oz$  et ont une extension transverse finie dans la direction  $Ox$  de telle façon que les champs s'annulent en dehors des guides. Les solutions sont alors définies par :

$$\begin{cases} \vec{E}(x, z, t) = \vec{\mathcal{E}}(x) e^{-i(\omega t - k_z z)} \\ \vec{H}(x, z, t) = \vec{\mathcal{H}}(x) e^{-i(\omega t - k_z z)} \end{cases} \quad (2.11)$$

$\vec{\mathcal{E}}(x)$  et  $\vec{\mathcal{H}}(x)$  sont les enveloppes des champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$ . Si on injecte cette solution dans l'équation d'onde (2.9), une équation différentielle du second ordre est obtenue sur les enveloppes  $\vec{\mathcal{E}}(x)$  et  $\vec{\mathcal{H}}(x)$  :

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}(x)}{\partial x^2} + \left( \frac{\omega^2 n^2}{c^2} - k_z^2 \right) \vec{\mathcal{E}}(x) = 0 \\ \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{H}}(x)}{\partial x^2} + \left( \frac{\omega^2 n^2}{c^2} - k_z^2 \right) \vec{\mathcal{H}}(x) = 0 \end{cases} \quad (2.12)$$

En posant  $k_z = \frac{\omega n}{c} \beta$ , il est possible d'écrire le facteur  $\left( \frac{\omega^2 n^2}{c^2} - k_z^2 \right)$  sous la forme  $k_0^2 (n^2 - \beta^2)$ . Une solution de l'équation différentielle (2.12) est :

$$\begin{cases} \vec{\mathcal{E}}(x) = \vec{A}_{\mathcal{E}} e^{i\gamma x} + \vec{B}_{\mathcal{E}} e^{-i\gamma x} \\ \vec{\mathcal{H}}(x) = \vec{A}_{\mathcal{H}} e^{i\gamma x} + \vec{B}_{\mathcal{H}} e^{-i\gamma x} \end{cases} \quad (2.13)$$

où  $\gamma^2 = k_0^2 (n^2 - \beta^2)$

Les enveloppes  $\mathcal{E}(x)$  et  $\mathcal{H}(x)$  sont définies par la somme de deux ondes contrapropagatives : une propagation positive  $e^{i\gamma x}$  et une propagation négative  $e^{-i\gamma x}$ . La valeur  $\gamma$  informe sur la nature de l'onde. En effet, si cette valeur est imaginaire le champ est propagatif et  $\gamma = a = k_0 \sqrt{|n^2 - \beta^2|}$ , si elle est réelle le champ est évanescent et  $\gamma = -ia = -ik_0 \sqrt{|n^2 - \beta^2|}$ .

D'autre part, les modes transverses électriques (TE) et les modes transverses magnétiques (TM) forment une base particulière qui permet d'exprimer toute onde comme



une combinaison linéaire de ces modes. Une onde est dite transverse électrique quand son champ électrique ne possède pas de composante selon la direction de propagation  $Oz$  et elle est dite transverse magnétique quand son excitation magnétique ne possède pas de composante selon la direction de propagation  $Oz$ . Les composantes du champ électrique et de l'excitation magnétique s'écrivent alors :

$$\text{TE} \quad \vec{E} \begin{pmatrix} 0 \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} \quad \vec{H} \begin{pmatrix} H_x \\ 0 \\ H_z \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

$$\text{TM} \quad \vec{E} \begin{pmatrix} E_x \\ 0 \\ E_z \end{pmatrix} \quad \vec{H} \begin{pmatrix} 0 \\ H_y \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

L'équation (2.3) permet d'exprimer le champ électrique  $\vec{H}$  en fonction de l'excitation magnétique  $\vec{E}$  :

$$\begin{cases} -\mu_0 \partial_t H_x = \partial_y E_z - \partial_z E_y \\ -\mu_0 \partial_t H_y = \partial_z E_x - \partial_x E_z \\ -\mu_0 \partial_t H_z = \partial_x E_y - \partial_y E_x \end{cases} \quad (2.16)$$

L'équation (2.4) permet d'exprimer le champ électrique  $\vec{E}$  en fonction de l'excitation magnétique  $\vec{H}$  :

$$\begin{cases} \varepsilon \partial_t E_x = \partial_y H_z - \partial_z H_y \\ \varepsilon \partial_t E_y = \partial_z H_x - \partial_x H_z \\ \varepsilon \partial_t E_z = \partial_x H_y - \partial_y H_x \end{cases} \quad (2.17)$$

Par la suite, seules les équations en mode (TE) seront développées, les équations en mode TM s'en déduisent aisément.

À partir des équations (2.16) et (2.17), il est possible de déterminer les différentes relations entre les composantes vectorielles des champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  en mode (TE) :

$$\begin{cases} H_x = -\frac{\beta}{\mu_0 \omega} E_y \\ H_z = -\frac{i}{\mu_0 \omega} \partial_x E_y \\ E_y = \frac{i \mu_0 \omega}{\beta^2 - n^2} \partial_x H_z \end{cases} \quad (2.18)$$

Les composantes tangentielles des champs  $H_z$  et  $E_y$  sont continues aux interfaces. D'autre part, la composante normale aux interfaces  $H_x$  est proportionnelle à la composante  $E_y$  du champ électrique, donc le champ total est parfaitement décrit en utilisant seulement les deux composantes  $H_z$  et  $E_y$ . Considérons le vecteur défini par :

$$\begin{pmatrix} U \\ V \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_y \\ H_z \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

Les composantes  $U^+$  et  $V^+$  traduisent les propagations positives suivant l'axe  $Ox$  et les composantes  $U^-$  et  $V^-$  traduisent les propagations négatives sur ce même axe. Les composantes  $U$  et  $V$  sont alors définis par la somme de leur propagation négative et positive :

$$\begin{cases} U &= U^+ + U^- \\ V &= V^+ + V^- \end{cases} \quad (2.20)$$

À partir de la deuxième équation de (2.18), on peut écrire les vecteurs  $V^+$  et  $V^-$  à partir des vecteurs  $U^+$  et  $U^-$  :

$$\begin{cases} V^+ &= \frac{\gamma}{\mu_0 \omega} U^+ \\ V^- &= -\frac{\gamma}{\mu_0 \omega} U^- \end{cases} \quad (2.21)$$

La propagation positive suivant  $Ox$  peut alors être définie par :

$$\begin{pmatrix} U^+ \\ V^+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ \gamma z_0 \end{pmatrix} U^+ \quad (2.22)$$

et la propagation négative suivant  $Ox$  comme étant :

$$\begin{pmatrix} U^- \\ V^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ -\gamma z_0 \end{pmatrix} U^- \quad (2.23)$$

$$\text{où } z_0 = \frac{1}{\mu_0 \omega}$$

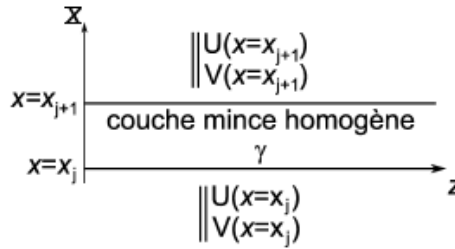


FIG. 2.1 – Représentation d'une couche mince homogène de valeur  $\gamma$  comprise entre les abscisses  $x_j$  et  $x_{j+1}$  telles que  $x_j < x_{j+1}$ .

Il existe une matrice appelée "matrice de transfert" qui relie les amplitudes des champs au point  $x_j$  (Fig. 2.1) à l'amplitude de ces mêmes champs au point  $x_{j-1}$  [51] :

$$\begin{pmatrix} U_j \\ V_j \end{pmatrix} = M_j \begin{pmatrix} U_{j-1} \\ V_{j-1} \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

Pour déterminer les composantes de la matrice  $M$ , il est nécessaire d'écrire l'équation des champs  $U$  et  $V$  aux points d'abscisse  $x = x_j$  et  $x = x_{j+1}$ . En utilisant les équations (2.22) et (2.23) les champs peuvent s'écrire :

$$\begin{cases} U(x_j) &= Ae^{i\gamma_j x_j} + Be^{-i\gamma_j x_j} \\ V(x_j) &= \gamma_j z_0 Ae^{i\gamma_j x_j} - \gamma_j z_0 Be^{-i\gamma_j x_j} \end{cases} \quad (2.25)$$

et

$$\begin{cases} U(x_{j+1}) &= Ae^{i\gamma_j x_{j+1}} + Be^{-i\gamma_j x_{j+1}} \\ V(x_{j+1}) &= \gamma_j z_0 Ae^{i\gamma_j x_{j+1}} - \gamma_j z_0 Be^{-i\gamma_j x_{j+1}} \end{cases} \quad (2.26)$$

À partir de l'équation (2.25), il est possible d'exprimer les paramètres  $A$  et  $B$  en fonction des champs  $U(x_j)$  et  $V(x_j)$  :

$$\begin{cases} A &= \frac{\gamma_j z_0 U(x_j) + V(x_j)}{2\gamma_j e^{i\gamma_j x_j}} \\ B &= \frac{\gamma_j z_0 U(x_j) - V(x_j)}{2\gamma_j e^{-i\gamma_j x_j}} \end{cases} \quad (2.27)$$

Les valeurs de  $A$  et  $B$  peuvent être remplacées dans les équations (2.26) :

$$\begin{cases} U(x_{j+1}) &= \frac{\gamma_j z_0 U(x_j) + V(x_j)}{2\gamma_j e^{i\gamma_j x_j}} e^{i\gamma_j x_{j+1}} + \frac{\gamma_j z_0 U(x_j) - V(x_j)}{2\gamma_j z_0 e^{-i\gamma_j x_j}} e^{-i\gamma_j x_{j+1}} \\ V(x_{j+1}) &= \gamma_j z_0 \frac{\gamma_j z_0 U(x_j) + V(x_j)}{2\gamma_j e^{i\gamma_j x_j}} e^{i\gamma_j x_{j+1}} - \gamma_j z_0 \frac{\gamma_j z_0 U(x_j) - V(x_j)}{2\gamma_j e^{-i\gamma_j x_j}} e^{-i\gamma_j x_{j+1}} \end{cases} \quad (2.28)$$

En regroupant les termes en  $U(x_j)$  et  $V(x_j)$ , l'équation (2.28) s'écrit :

$$\begin{cases} U(x_{j+1}) &= \cos[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] U(x_j) + \frac{i}{\gamma_j z_0} \sin[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] V(x_j) \\ V(x_{j+1}) &= i\gamma_j z_0 \sin[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] U(x_j) + \cos[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] V(x_j) \end{cases} \quad (2.29)$$

d'où la matrice de transfert :

$$M_j = \begin{pmatrix} \cos[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] & \frac{i}{\gamma_j z_0} \sin[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] \\ i\gamma_j z_0 \sin[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] & \cos[\gamma_j(x_{j+1} - x_j)] \end{pmatrix} \quad (2.30)$$

En considérant un guide multicouche comme un empilement de  $\Gamma$  couches différentes ( Fig. 2.2), la relation reliant les amplitudes des champs dans le superstrat à celles des champs dans le substrat est défini par :

$$\begin{pmatrix} U_{sup} \\ V_{sup} \end{pmatrix} = \prod_{j=\Gamma}^1 M_j \begin{pmatrix} U_{sub} \\ V_{sub} \end{pmatrix} \quad (2.31)$$

Quand un mode est guidé, l'énergie est confinée par réflexion totale dans les différentes

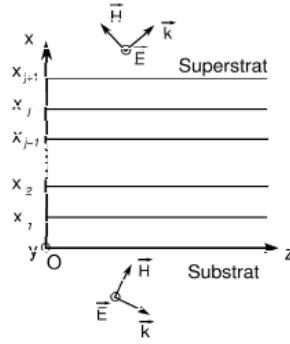


FIG. 2.2 – Empilement multicouches entre le substrat et le superstrat

couches. Les conditions de guidages impliquent d'avoir une onde de propagation normale positive dans le superstrat et une onde de propagation normale négative dans le substrat (Fig. 2.2). L'équation (2.31) peut alors s'écrire en utilisant les équations (2.22) et (2.23) :

$$\begin{pmatrix} 1 \\ \gamma_{sup}z_0 \end{pmatrix} U_{sup}^+ = M \begin{pmatrix} 1 \\ -\gamma_{sub}z_0 \end{pmatrix} U_{sub}^- \quad (2.32)$$

Le système d'équations suivant est obtenu :

$$\begin{cases} U_{sup}^+ - (m_{11} + m_{12}\gamma_{sub}z_0)U_{sub}^- = 0 \\ \gamma_{sup}z_0U_{sup}^+ + (m_{21} + m_{22}\gamma_{sub}z_0)U_{sub}^- = 0 \end{cases} \quad (2.33)$$

qui n'a une solution que si son déterminant est nul. En écrivant cette condition on détermine l'équation de dispersion :

$$z_0\gamma_{sup}m_{11} + z_0^2\gamma_{sup}\gamma_{sub}m_{12} + m_{21} + z_0\gamma_{sub}m_{22} = 0 \quad (2.34)$$

où  $m_{11}$ ,  $m_{12}$ ,  $m_{21}$  et  $m_{22}$  sont les éléments de la matrice  $M$ .

L'équation (2.34) est générale, elle est valide quelque soit le nombre de couches constituant l'empilement. Dans la section suivante, elle sera appliquée au cas de structures à trois couches.

### 2.1.1 Structure à trois couches

La structure tricouche étudiée est représentée sur la figure 2.3. Les indices des couches sont supposés être supérieurs à ceux du substrat et du superstrat. Le matériau utilisé pour la réalisation des électrodes est du ZnO dopé à l'aluminium (dans la littérature :  $n_{ZnO} \simeq 1,97$  à  $\lambda = 632,8nm$  [52]) et la couche guidante est constituée de  $Pb_{1.4}(Zr_{0.4}Ti_{0.6})O_3$  dont l'indice est compris entre 2,22 et 2,25 (cf. chapitre1).

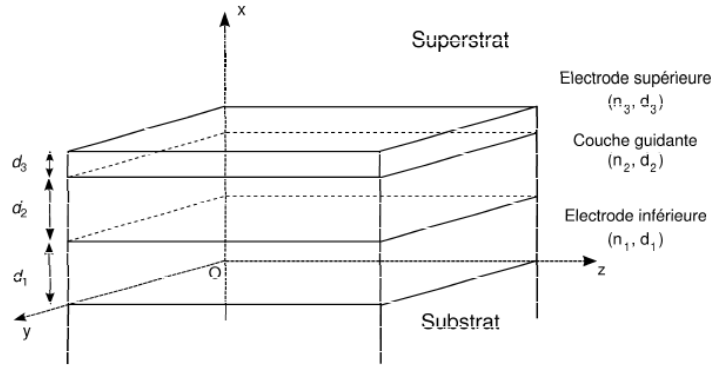


FIG. 2.3 – Guide tricouche.

La structure est donc telle que  $n_2 > n_1, n_3$ . La matrice de transfert de la  $j^{eme}$  couche s'écrit d'après (2.30) comme :

$$M_j = \begin{pmatrix} \cos(\gamma_j d_j) & \frac{i}{\gamma_j z_0} \sin(\gamma_j d_j) \\ i\gamma_j z_0 \sin(\gamma_j d_j) & \cos(\gamma_j d_j) \end{pmatrix} \quad (2.35)$$

La matrice de transfert  $M_{tri}$  de la structure tricouche est alors donnée par :

$$M_{tri} = \prod_{j=3}^1 M_j = M_3 M_2 M_1 \quad (2.36)$$

et ses éléments sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} m_{11} = \left( \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) - \frac{\sin(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \cos(\gamma_1 d_1) \\ \quad + i \left( \frac{i \cos(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \frac{i \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \gamma_1 \sin(\gamma_1 d_1) \\ m_{12} = i \left( \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) - \frac{\sin(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \sin(\gamma_1 d_1) \gamma_1^{-1} + \\ \quad \left( \frac{i \cos(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \frac{i \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \cos(\gamma_1 d_1) \\ m_{21} = (i\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) + i \cos(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)) \cos(\gamma_1 d_1) \\ \quad + i \left( -\frac{\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) \right) \gamma_1 \sin(\gamma_1 d_1) \\ m_{22} = \frac{i(i\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) + i \cos(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)) \sin(\gamma_1 d_1)}{\gamma_1} + \\ \quad \left( -\frac{\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) \right) \cos(\gamma_1 d_1) \end{array} \right. \quad (2.37)$$

Comme les ondes sont évanescentes dans le substrat et le superstrat,  $\gamma_{sub} = -ia_{sub}$  et  $\gamma_{sup} = -ia_{sup}$ . En injectant les éléments de la matrice (2.37) dans l'équation de dispersion, le paramètre  $z_0$  se simplifie et l'équation (2.34) s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
& -ia_{sup} \left[ \left( \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) - \frac{\sin(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \cos(\gamma_1 d_1) \right. \\
& + i \left( \frac{i \cos(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \frac{i \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \gamma_1 \sin(\gamma_1 d_1) \left. \right] \\
& + \left[ i \left( \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) - \frac{\sin(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \sin(\gamma_1 d_1) \gamma_1^{-1} \right. \\
& + \left. \left( \frac{i \cos(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \frac{i \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2)}{\gamma_3} \right) \cos(\gamma_1 d_1) \right] - ia_{sup} - ia_{sub} \\
& + [i\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) + i \cos(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)] \cos(\gamma_1 d_1) \\
& + i \left[ -\frac{\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) \right] \gamma_1 \sin(\gamma_1 d_1) \\
& - ia_{sub} \left[ \frac{i(i\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) + i \cos(\gamma_3 d_3) \gamma_2 \sin(\gamma_2 d_2)) \sin(\gamma_1 d_1)}{\gamma_1} \right. \\
& + \left. \left( -\frac{\gamma_3 \sin(\gamma_3 d_3) \sin(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \cos(\gamma_3 d_3) \cos(\gamma_2 d_2) \right) \cos(\gamma_1 d_1) \right] = 0
\end{aligned} \tag{2.38}$$

En développant l'équation (2.38) et en simplifiant par le terme  $\cos(\gamma_1 d_1) \cos(\gamma_2 d_2) \cos(\gamma_3 d_3)$ , on obtient :

$$\begin{aligned}
& -ia_{sub} - ia_{sup} + i\gamma_1 \tan(\gamma_1 d_1) + i\gamma_2 \tan(\gamma_2 d_2) + i\gamma_3 \tan(\gamma_3 d_3) \\
& - ia_{sup} a_{sub} \left[ \frac{\tan(\gamma_1 d_1)}{\gamma_1} + \frac{\tan(\gamma_2 d_2)}{\gamma_2} + \frac{\tan(\gamma_3 d_3)}{\gamma_3} \right] \\
& + i \tan(\gamma_1 d_1) \tan(\gamma_2 d_2) \left( a_{sub} \frac{\gamma_2}{\gamma_1} + a_{sup} \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \right) \\
& + i \tan(\gamma_2 d_2) \tan(\gamma_3 d_3) \left( a_{sub} \frac{\gamma_3}{\gamma_2} + a_{sup} \frac{\gamma_2}{\gamma_3} \right) \\
& + i \tan(\gamma_3 d_3) \tan(\gamma_1 d_1) \left( a_{sub} \frac{\gamma_3}{\gamma_1} + a_{sup} \frac{\gamma_1}{\gamma_3} \right) \\
& + \frac{ia_{sup} a_{sub} \gamma_2 \tan(\gamma_1 d_1) \tan(\gamma_2 d_2) \tan(\gamma_3 d_3)}{\gamma_1 \gamma_3} \\
& - \frac{i\gamma_1 \gamma_3 \tan(\gamma_1 d_1) \tan(\gamma_2 d_2) \tan(\gamma_3 d_3)}{\gamma_2} = 0
\end{aligned} \tag{2.39}$$

qui peut être factorisée en :

$$\begin{aligned}
& \left( 1 + \frac{a_{sub} \tan(\gamma_1 d_1)}{\gamma_1} \right) \left( \tan(\gamma_2 d_2) \left[ 1 + \frac{a_{sup} \tan(\gamma_3 d_3)}{\gamma_3} \right] + \frac{\gamma_3}{\gamma_2} \left[ \tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3} \right] \right) \\
& + \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \left( \tan(\gamma_1 d_1) - \frac{a_{sub}}{\gamma_1} \right) \left( 1 + \frac{a_{sup} \tan(\gamma_3 d_3)}{\gamma_3} - \tan(\gamma_2 d_2) \frac{\gamma_3}{\gamma_2} \left[ \tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3} \right] \right) = 0
\end{aligned} \tag{2.40}$$

En divisant l'équation (2.40) par le terme :

$$\left(1 + \frac{a_{sub} \tan(\gamma_1 d_1)}{\gamma_1}\right) \left(1 + \frac{a_{sup} \tan(\gamma_3 d_3)}{\gamma_3} - \tan(\gamma_2 d_2) \frac{\gamma_3}{\gamma_2} \left[\tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3}\right]\right)$$

il est possible de l'écrire sous la forme :

$$\frac{\tan(\gamma_2 d_2) + \frac{\gamma_3}{\gamma_2} \frac{\tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3}}{1 + \frac{a_{sup}}{\gamma_3} \tan(\gamma_3 d_3)}}{1 - \tan(\gamma_2 d_2) \frac{\gamma_3}{\gamma_2} \frac{\tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3}}{1 + \frac{a_{sup}}{\gamma_3} \tan(\gamma_3 d_3)}} + \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \frac{\tan(\gamma_1 d_1) - \frac{a_{sub}}{\gamma_1}}{1 + \frac{a_{sub}}{\gamma_1} \tan(\gamma_1 d_1)} = 0 \quad (2.41)$$

Le champ étant propagatif dans la couche centrale, on peut écrire  $\gamma_2 = a_2 = k_0 \sqrt{|n_2^2 - \beta_2^2|}$ , (2.41) devient alors :

$$\tan\left(a_2 d_2 + \arctan\left[\frac{\gamma_3}{a_2} \frac{\tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3}}{1 + \frac{a_{sup}}{\gamma_3} \tan(\gamma_3 d_3)}\right]\right) + \frac{\gamma_1}{a_2} \frac{\tan(\gamma_1 d_1) - \frac{a_{sub}}{\gamma_1}}{1 + \frac{a_{sub}}{\gamma_1} \tan(\gamma_1 d_1)} = 0 \quad (2.42)$$

soit :

$$a_2 d_2 + \arctan\left[\frac{\gamma_1}{a_2} \frac{\tan(\gamma_1 d_1) - \frac{a_{sub}}{\gamma_1}}{1 + \frac{a_{sub}}{\gamma_1} \tan(\gamma_1 d_1)}\right] + \arctan\left[\frac{\gamma_3}{a_2} \frac{\tan(\gamma_3 d_3) - \frac{a_{sup}}{\gamma_3}}{1 + \frac{a_{sup}}{\gamma_3} \tan(\gamma_3 d_3)}\right] - m\pi = 0 \quad (2.43)$$

Quatre types de guidage sont possibles dans une structure tricouche en fonction de l'ordre du mode. Sur la figure 2.4 sont représentées les différentes propagations dans le guide tricouche en fonction de l'ordre du mode et du rapport des indices  $n_1$  et  $n_3$ . Les modes d'ordre faible sont guidés dans la couche centrale seule (Fig. 2.4a). Ensuite, il existe un mode  $m_1$  pour lequel a lieu le changement de guidage, par la suite le terme de rupture sera employé pour désigner ce mode. Les modes d'ordre supérieur ou égal à  $m_1$  sont soit guidés dans la couche inférieure et la couche centrale si  $n_1 < n_3$  (Fig. 2.4b), soit guidés dans la couche supérieure et la couche centrale si  $n_1 > n_3$  (Fig. 2.4c). Enfin, il existe une deuxième rupture définie par le mode d'ordre  $m_2$  (où  $m_1 < m_2$ ). Les modes d'ordre supérieur ou égal à  $m_2$  sont guidés dans les trois couches (Fig. 2.4d).

Pour déterminer les équations de dispersion correspondant à ces différents guidages, il suffit de partir de l'équation générale (2.43) et d'exprimer les valeurs de  $\gamma_1$  et  $\gamma_3$  en fonction du type de champ dans les couches 1 et 3. Si le champ est propagatif  $\gamma_j = a_j$ , s'il est évanescent  $\gamma_j = -ia_j$ .

Quand seule la couche centrale est guidante (Fig. 2.4a), les champs sont évanescents dans la couche supérieure et dans la couche inférieure, l'équation de dispersion générale (2.43) devient :

$$a_2 d_2 - \arctan\left\{\frac{a_1}{a_2} \times \frac{\tanh(a_1 d_1) + \frac{a_0}{a_1}}{1 + \frac{a_0}{a_1} \times \tanh(a_1 d_1)}\right\} - \arctan\left\{\frac{a_3}{a_2} \times \frac{\tanh(a_3 d_3) + \frac{a_4}{a_3}}{1 + \frac{a_4}{a_3} \times \tanh(a_3 d_3)}\right\} - m\pi = 0 \quad (2.44)$$

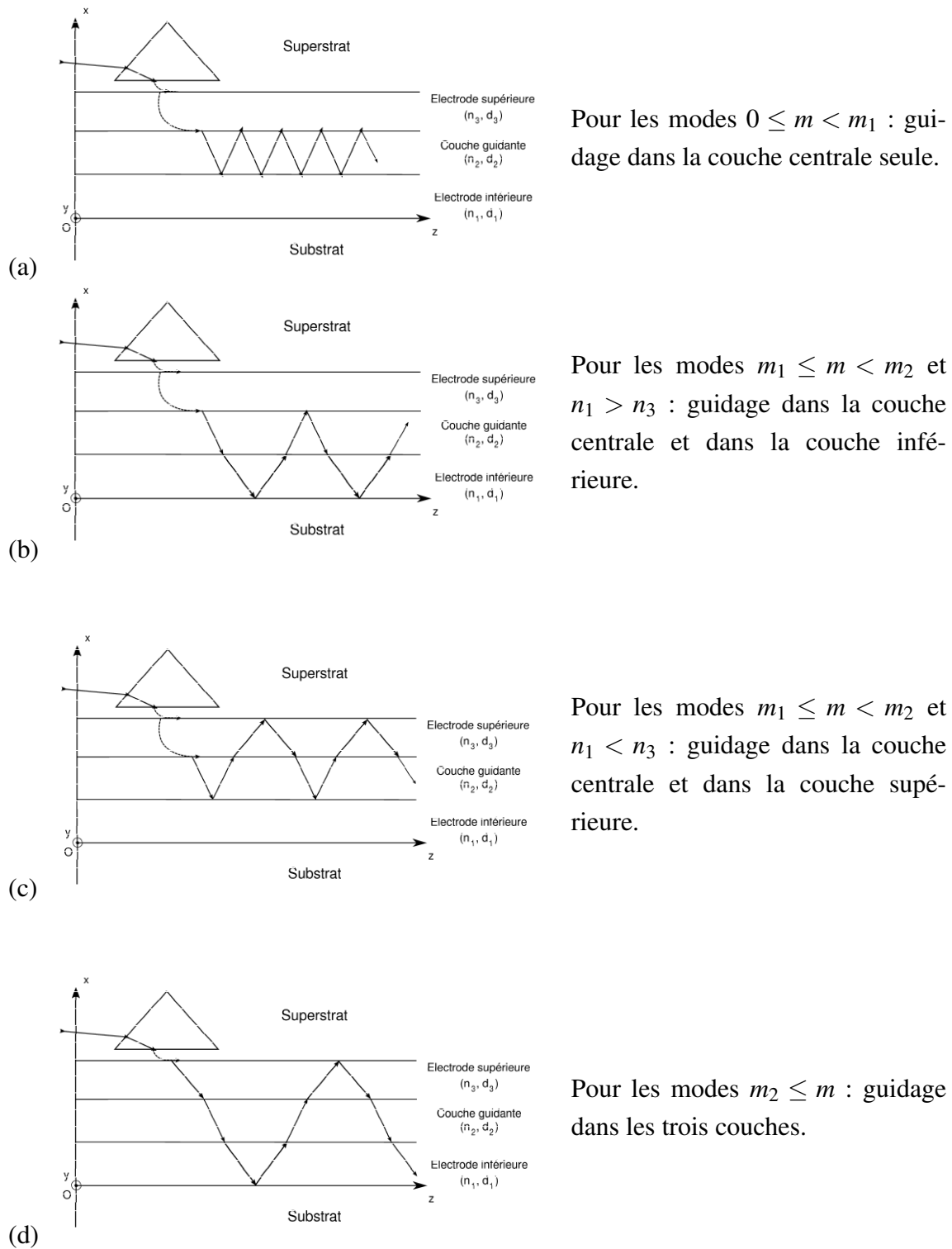


FIG. 2.4 – Représentation des quatre guidages possibles pour le guide tricouche



Quand la couche centrale et la couche inférieure sont guidantes ( $n_1 > n_3$ ) (Fig. 2.4b), seul le champ dans la couche supérieure est évanescent, l'équation de dispersion générale (2.43) s'écrit :

$$a_2 d_2 + \arctan \left\{ \frac{a_1}{a_2} \times \tan \left[ a_1 d_1 - \arctan \left( \frac{a_0}{a_1} \right) \right] \right\} - \arctan \left\{ \frac{a_3}{a_2} \times \frac{\tanh(a_3 d_3) + \frac{a_4}{a_3}}{1 + \frac{a_4}{a_3} \times \tanh(a_3 d_3)} \right\} - m\pi = 0 \quad (2.45)$$

Quand la couche centrale et la couche supérieure sont guidantes ( $n_3 > n_1$ ) (Fig. 2.4c), seul le champ dans la couche inférieure est évanescent, l'équation de dispersion générale (2.43) s'écrit :

$$a_2 d_2 - \arctan \left\{ \frac{a_1}{a_2} \times \frac{\tanh(a_1 d_1) + \frac{a_0}{a_1}}{1 + \frac{a_0}{a_1} \times \tanh(a_1 d_1)} \right\} + \arctan \left\{ \frac{a_3}{a_2} \times \tan \left[ a_3 d_3 - \arctan \left( \frac{a_4}{a_3} \right) \right] \right\} - m\pi = 0 \quad (2.46)$$

Dans le dernier cas où les trois couches sont guidantes (Fig. 2.4d), l'équation de dispersion générale (2.43) s'écrit :

$$a_2 d_2 + \arctan \left\{ \frac{a_1}{a_2} \times \tan \left[ a_1 d_1 - \arctan \left( \frac{a_0}{a_1} \right) \right] \right\} + \arctan \left\{ \frac{a_3}{a_2} \times \tan \left[ a_3 d_3 - \arctan \left( \frac{a_4}{a_3} \right) \right] \right\} - m\pi = 0 \quad (2.47)$$

D'autre part, le couplage de l'onde se faisant par la surface, il est important que l'épaisseur de la deuxième électrode soit relativement faible. En effet, l'amplitude du champ évanescent décroît exponentiellement avec la distance par rapport à l'interface air/ZnO de la couche supérieure. Il est donc utile de définir la profondeur de pénétration  $x_p$  qui traduit la rapidité de décroissance du champ. Elle correspond à la profondeur pour laquelle l'amplitude du champ est égale à  $\frac{E}{e}$ . Au-delà de cette épaisseur, le couplage par onde évanescente est impossible. La longueur de pénétration  $x_p$  est donnée par la relation suivante [53] :

$$x_p = \frac{\lambda}{2\pi \sqrt{n_p^2 \sin^2 \left[ A_p + \arcsin \left( \frac{n_{sup} \sin \phi}{n_p} \right) \right]^2 - n_{sub}^2}}$$

Sur la figure 2.5 est représentée la variation de la longueur de pénétration  $x_p$  en fonction de l'angle d'incidence  $\phi$  de la lumière sur le prisme et pour  $n_{sub} = 1.51$ ,  $n_{sup} = 1$  et l'indice du prisme  $n_p = 2.87$ . Les modes d'ordre faible qui correspondent à des mesures d'angles  $\phi$  élevés, seront affectés par l'épaisseur de la troisième couche. Pour mesurer ces modes, il est nécessaire que l'épaisseur de la deuxième électrode n'excède pas la centaine de nanomètre.

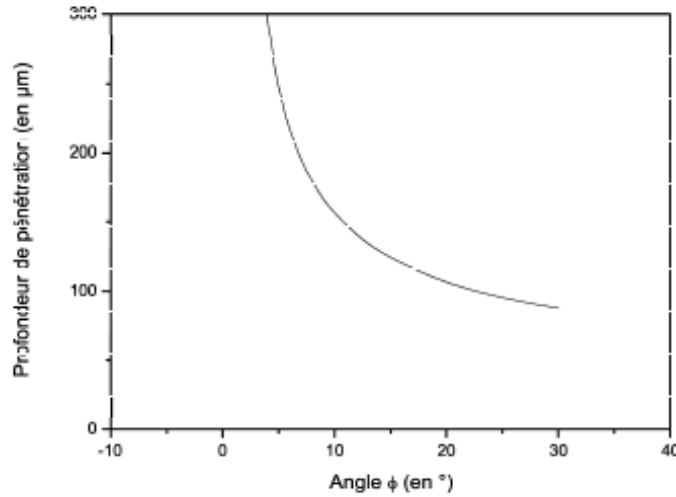


FIG. 2.5 – Profondeur de pénétration  $x_p$  en fonction de l'angle d'incidence  $\phi$

### 2.1.2 Structure bicouche

Les guides tricouches sont fabriqués couche par couche et nécessitent une caractérisation à chaque étape. Cela implique qu'il est nécessaire de disposer des équations de dispersion de modes guidés pour des structures à une et à deux couches. Si le cas du guide monocouche est bien connu, celui des structures bicouches a été peu étudié [2],[5]–[8]. Quoiqu'il en soit les équations de dispersions valides dans ce dernier cas peuvent être déduites des équations de dispersion du guide tricouche (2.43) en faisant tendre l'épaisseur  $d_3$  de la couche supérieure vers 0. La structure du guide bicouche est schématiquement représentée sur la 2.6 où l'indice et l'épaisseur de la couche inférieure sont définis par  $n_1$  et  $d_1$  et l'indice et l'épaisseur de la couche guidante par  $n_2$  et  $d_2$ .

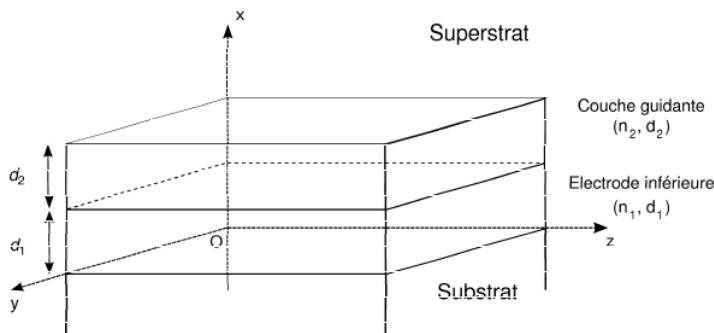


FIG. 2.6 – Guide bicouche étudié ( $n_2 > n_1$ )

L'équation générale du guide à deux couches dans le cas où le champ est toujours propagatif

dans la couche supérieure ( $n_2, d_2$ ) s'écrit :

$$a_2 d_2 + \arctan \left[ \frac{\gamma_1}{a_2} \frac{\tan(\gamma_1 d_1) - \frac{a_{sub}}{\gamma_1}}{1 + \frac{a_{sub}}{\gamma_1} \tan(\gamma_1 d_1)} \right] - \arctan \left[ \frac{a_{sup}}{a_2} \right] - m\pi = 0 \quad (2.48)$$

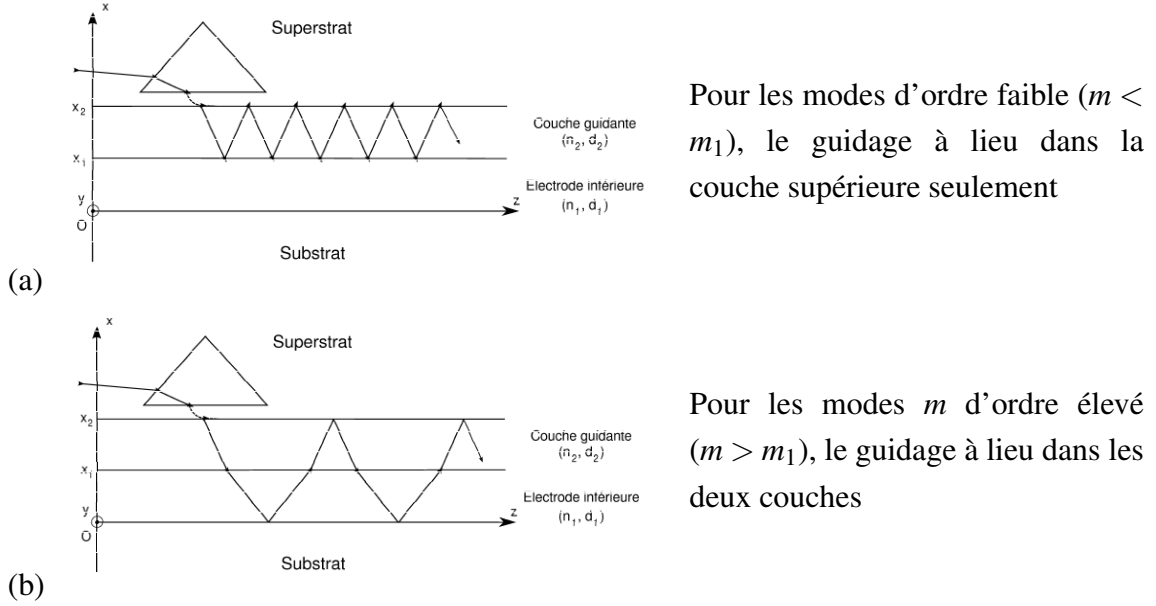


FIG. 2.7 – Représentation des deux guidages possibles pour le guide bicouche

Pour la structure à deux couches (Fig. 2.7), il existe deux guidages possibles. Les modes d'ordre faible sont guidés dans la couche supérieure seule et les modes d'ordre plus élevés sont guidés dans les deux couches. Comme pour le guide à trois couches, il existe une rupture  $m_1$  définissant l'ordre du mode à partir duquel le changement de guidage a lieu. Pour déterminer l'équation de dispersion dans la configuration une couche guidante (Fig. 2.7a), il faut considérer un champ propagatif dans la couche supérieure ( $\gamma_2 = a_2$ ) et un champ évanescent ( $\gamma_1 = -ia_1$ ) dans la couche inférieure. L'équation de dispersion du guide bicouche (2.48) s'écrit :

$$a_2 d_2 + \arctan \left\{ \frac{a_3}{a_2} \right\} - \arctan \left\{ \frac{a_1}{a_2} \times \frac{\tanh(a_1 d_1) + \frac{a_0}{a_1}}{1 + \frac{a_0}{a_1} \times \tanh(a_1 d_1)} \right\} - m\pi = 0 \quad (2.49)$$

Quand les deux couches du guide sont guidantes (Fig. 2.7b), les champs sont alors propagatifs dans les deux couches ( $\gamma_2 = a_2$  et  $\gamma_1 = a_1$ ), l'équation (2.48) devient :

$$b_2 d_2 + \arctan \left\{ \frac{a_3}{b_2} \right\} + \arctan \left\{ \frac{b_1}{b_2} \times \tan \left[ b_1 d_1 - \arctan \left( \frac{a_0}{b_1} \right) \right] \right\} - m\pi = 0 \quad (2.50)$$

Le formalisme analytique étant établi, nous étudierons dans la partie suivante la possibilité de l'utiliser afin de déterminer les paramètres optiques des guides.

## 2.2 Méthodologie d'analyse des résultats expérimentaux

Le programme de résolution numérique est le lien entre les mesures expérimentales *m*-lines réalisées sur un guide et ses paramètres optiques. Il s'appuie sur la résolution des équations de dispersion qui sont à la fois définies par la configuration de guidage considérée (cf. 2.1) et par les indices effectifs obtenus lors de la mesure *m*-lines. Le programme comprend deux types de résolution : une première résolution appelée «calcul direct» qui permet de déterminer les paramètres du guide à partir des mesures expérimentales (angles synchrones), et une deuxième résolution appelée «calcul inverse» qui permet de déterminer les angles synchrones à partir des paramètres du guide. Comme pour l'étude des modèles monocouches, l'algorithme de Newton-Raphson a été retenu pour résoudre les différentes équations de dispersion.

### 2.2.1 Comment résoudre le problème pour un système à deux couches

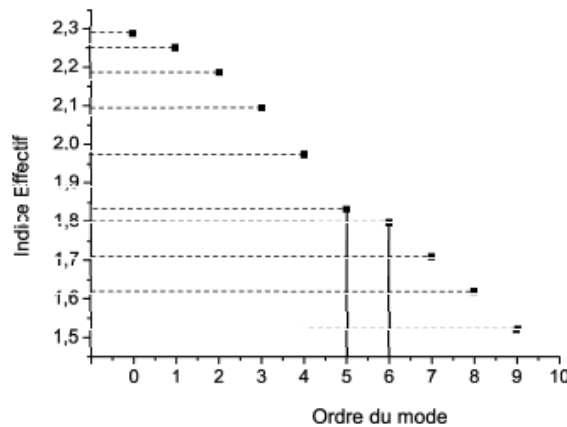


FIG. 2.8 – Variation des indices effectifs en fonction de l'ordre du mode

Lors d'une mesure *m*-lines,  $M$  angles synchrones sont mesurés et à chacun de ces angles correspond une équation de dispersion. Il est impossible de savoir si le premier mode mesuré  $m_0$  est le mode fondamental car les modes d'ordre faible sont difficilement excitables et il est donc possible que  $m_0 \neq 0$  (cf. chapitre 1). Les modes mesurés par la suite sont indexés à partir du mode  $m_0$  (i.e.  $m_0 + 1$ ,  $m_0 + 2$ , etc...). Le nombre d'inconnues pour notre problème étant de quatre ( $n_1$ ,  $d_1$ ,  $n_2$  et  $d_2$ ), il est indispensable de mesurer au minimum quatre modes. Si un nombre plus important  $M$  de modes est mesuré ( $M > 4$ ), la résolution utilisera alors  $C_M^4$  systèmes de quatre équations de dispersion ( $f_1$ ,  $f_2$ ,  $f_3$  et  $f_4$ ) à quatre inconnues par permutation des équations. Cependant, pour le guide bicouche, comme il y a deux équations de dispersion, la première difficulté est de déterminer l'ordre du mode  $m_1$  à partir duquel a lieu le changement de guidage. La détermination du mode  $m_1$  est réalisée à partir de l'étude de la variation des intervalles entre deux indices effectifs consécutifs (Fig.2.8). En effet, il y a croissance de ces intervalles tant que l'on est dans la configuration «une couche guidante». Lors du changement de guidage, on observe une rupture au niveau de la

croissance de ces intervalles qui permet de calculer  $m_1$  à un mode près, les valeurs détectées sont soit la valeur de  $m_1$  soit la valeur  $m_1 + 1$ . L'efficacité de ce critère et sa sensibilité au bruit ont été testées par une étude numérique dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 2.1. En prenant en compte l'ensemble des variations de ces paramètres, les spectres  $m$ -lines correspondant à 160 000 guides ont été simulés. Puis les angles synchrones ainsi déterminés ont été affectés d'un bruit pouvant prendre les valeurs  $\{0,01^\circ, 0,02^\circ, 0,05^\circ, 0,10^\circ, 0,20^\circ\}$  et la valeur de  $m_1$  a alors été calculée à l'aide du critère défini précédemment.

| Paramètres étudiés         | Variation           | Pas  |
|----------------------------|---------------------|------|
| Indice de réfraction $n_1$ | 1,60 à 2,00         | 0,01 |
| Indice de réfraction $n_2$ | 2,00 à 2,40         | 0,01 |
| épaisseur $d_1$            | 0,50 à 1,50 $\mu m$ | 0,1  |
| épaisseur $d_2$            | 0,50 à 1,50 $\mu m$ | 0,1  |

TAB. 2.1 – Ensemble des guides bicouches étudiés

Les résultats sont présentés sur la figure 2.9. Le programme de résolution numérique détecte majoritairement la bonne rupture.

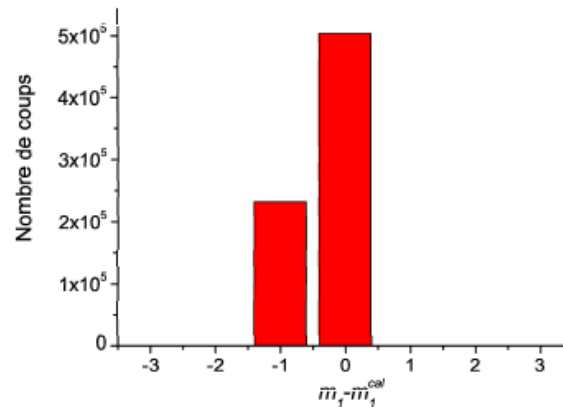


FIG. 2.9 – Répartition du mode  $m_1^{cal}$  calculé par rapport à la valeur réelle de  $m_1$  pour les 160 000 guides étudiés

Une fois l'indexation des fonctions  $f_1$ ,  $f_2$ ,  $f_3$  et  $f_4$  réalisée, il est nécessaire d'effectuer un redressement de phase sur les fonctions. En effet, les équations de dispersion font appel à des fonctions arctangentes qui sont à l'origine de problèmes de discontinuités dans la phase. Numériquement, la fonction " $y = \arctan(\tan(x))$ " se traduit par une courbe en dents de scie de périodicité  $\pi$  au lieu d'une droite d'équation " $y = x$ ". Dans les équations de dispersion déterminées, ce terme se retrouve sous la forme :

$$f(x_1, x_2, \dots, x_n) = \arctan(\tan(f(x_1, x_2, \dots, x_n)) + y(x_1, x_2, \dots, x_n)) \quad n \in \mathbb{N}$$

Pour corriger ce problème, il faut redéployer la phase en ajoutant le terme  $A$  suivant :

$$f(x_1, x_2, \dots, x_n) = \arctan(\tan(f(x_1, x_2, \dots, x_n)) + y(x_1, x_2, \dots, x_n)) + A(x_1, x_2, \dots, x_n)$$

où

$$A(x_1, x_2, \dots, x_n) = E \left\{ \frac{f(x_1, x_2, \dots, x_n) + \frac{1}{2} \frac{f(x_1, x_2, \dots, x_n)\pi}{|f(x_1, x_2, \dots, x_n)|}}{\pi} \right\} \pi$$

$E$  étant défini comme la valeur arrondie par défaut. Sur la figure 2.10 est représentée la variation des deux équations de dispersion à une dimension ( $N_{eff}$ ), une première sans redéploiement de phase et une deuxième avec redéploiement de phase.

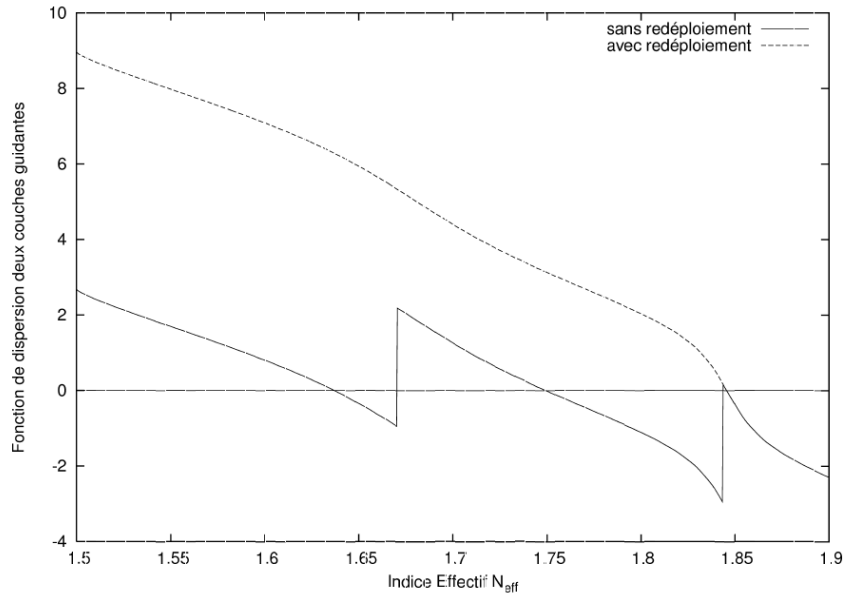


FIG. 2.10 – Variation de la deuxième équation de dispersion en fonction de l'indice effectif pour un guide de paramètres :  $n_1=1.9$ ,  $d_1=0.6 \mu m$ ,  $n_2=2.2$ ,  $d_2=0.8 \mu m$

Une fois les équations de dispersions et le redéploiement de phase correspondant définis, il est possible de résoudre le système. L'algorithme de Newton-Raphson a été choisi car il s'avère être un algorithme puissant et les codes de programme ont déjà été écrits pour les guides monocouches. Le principe de cet algorithme est de définir une nouvelle valeur au vecteur de solutions  $x_{i+1}$  à partir de l'ancien vecteur  $x_i$  en utilisant la relation [54] :

$$x_{i+1} = x_i - J.F \quad (2.51)$$

où

$$x_i = \begin{pmatrix} n_1 \\ d_1 \\ n_2 \\ d_2 \end{pmatrix}_i, \quad F = \begin{pmatrix} f_1(x_i) \\ f_2(x_i) \\ f_3(x_i) \\ f_4(x_i) \end{pmatrix}, \quad J = \begin{pmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial n_1} & \frac{\partial f_1}{\partial d_1} & \frac{\partial f_1}{\partial n_2} & \frac{\partial f_1}{\partial d_2} \\ \frac{\partial f_2}{\partial n_1} & \frac{\partial f_2}{\partial d_1} & \frac{\partial f_2}{\partial n_2} & \frac{\partial f_2}{\partial d_2} \\ \frac{\partial f_3}{\partial n_1} & \frac{\partial f_3}{\partial d_1} & \frac{\partial f_3}{\partial n_2} & \frac{\partial f_3}{\partial d_2} \\ \frac{\partial f_4}{\partial n_1} & \frac{\partial f_4}{\partial d_1} & \frac{\partial f_4}{\partial n_2} & \frac{\partial f_4}{\partial d_2} \end{pmatrix}$$

Il faut préalablement définir un vecteur solution  $x_0$  pour initialiser l'algorithme. Les valeurs initiales des indices de réfraction sont définies par rapport aux indices effectifs mesurés. L'indice  $n_2$  de la couche de PZT est par définition supérieur à la plus grande valeur d'indice effectif mesurée mais reste inférieur à l'indice du prisme  $n_p$ . La valeur de l'indice de la couche inférieure est quant à elle encadrée par les indices effectifs correspondant à la valeur  $m_1$  et  $m_1+1$ . Il est donc évident que si la valeur de  $m_1$  n'est pas correcte, la valeur de  $n_1$  ne le sera pas non plus. Les épaisseurs quant à elles, sont définies arbitrairement mais plus leur valeur est proche de l'épaisseur réelle plus l'algorithme peut déterminer rapidement une solution.

À chaque itération, il est indispensable de contrôler le nouveau vecteur de solutions, ce contrôle s'effectue à l'aide d'une procédure qui permet d'éviter la divergence des valeurs. Elle consiste à borner les épaisseurs par des valeurs déterminées de manière empirique, les indices restent bornés par les indices effectifs.

Numériquement,  $C_M^4$  systèmes sont résolus, mais en pratique seules  $\Lambda$  combinaisons donneront des solutions ( $\Lambda \leq C_M^4$ ) acceptables, c'est à dire des solutions pour lesquelles les valeurs d'indices  $n_1$  et  $n_2$  sont telles que :  $n_p < n_2 < n_1$  et  $n_2 < n_1 < n_{sup}$  et les valeurs des épaisseurs sont telles que :  $0 < d_1 < 20 \mu m$  et  $0 < d_2 < 20 \mu m$ . Cette vérification constitue un premier filtre. Si la valeur n'est pas acceptée l'algorithme continue ses itérations, jusqu'à une valeur limite fixée à 1000.

Si les conditions sur le premier filtre sont acceptées, les angles synchrones  $\phi_i^{cal}$  sont déterminés par le calcul inverse à partir du vecteur de solutions. L'écart quadratique  $s$  est alors évalué par rapport aux angles expérimentaux  $\phi_i^{exp}$  :

$$s = \sum_{i=1}^M \sqrt{\frac{(\phi_i^{exp} - \phi_i^{cal})^2}{M}}$$

Si la valeur de  $s$  est inférieure à une tolérance angulaire de  $0,1^\circ$ , permettant d'éliminer toutes solutions issues de minimums locaux, les valeurs sont alors solutions du problème. Dans le cas contraire, les valeurs sont rejetées et le programme continue ses itérations jusqu'à ce qu'une autre convergence ait lieu ou que le nombre maximum d'itération ait été atteint. En sortie de programme, une valeur moyenne pour chacun des paramètres calculés est obtenue à partir des  $\Lambda$  combinaisons ( $n_1^{cal}$ ,  $d_1^{cal}$ ,  $n_2^{cal}$  et  $d_2^{cal}$ ), ce vecteur correspond aux paramètres calculés du guide. Il est possible qu'aucune solution ne soit déterminée (i.e.  $\Lambda = 0$ ), généralement cet événement se produit quand

le calcul sur  $m_1$  n'est pas correct. Dans ce cas, la procédure suivie consiste à enlever une unité à la valeur calculée de  $m_1^{cal}$  et à recommencer les calculs.

La dernière étape consiste à indexer les modes. En effet, comme nous l'avons vu, le premier mode mesuré n'est pas forcément le mode fondamental. Pour déterminer l'ordre du premier mode mesuré, le calcul des caractéristiques du guide est effectué pour différentes valeurs de  $m_0$  telles que  $0 \leq m_0 \leq 9$  (cf. chapitre 1). Lors de chacun de ces calculs, la fonction coût  $\sigma_{m_0}$  correspondante est calculée :

$$\sigma_{m_0} = \sqrt{\sum_{j=1}^{\Lambda} \sum_{i=1}^M \frac{(\phi_i^{mes} - \phi_{ij}^{cal})^2}{M \times \Lambda^2}}$$

Le mode retenu pour l'indexation et donc la solution est celle qui présente la plus petite valeur de  $\sigma_{m_0}$ .

La mise en place du formalisme analytique de la structure bicouche a soulevé un grand nombre de difficultés qui ont facilité l'étude de la structure tricouche. Cette dernière fera l'objet de la partie suivante.

## 2.2.2 Extension à la structure tricouche

La méthode d'analyse numérique de la structure tricouche a été développée à partir de l'algorithme du modèle bicouche. Les différentes fonctions et leurs dérivées ont été réécrites et la procédure qui permet de faire converger les valeurs quand il y a divergence des paramètres a été adaptée. L'algorithme de Newton-Raphson est donc passé de quatre dimensions à six dimensions ( $n_1, d_1, n_2, d_2, n_3, d_3$ ). Cependant, il a fallu faire face à deux nouvelles difficultés qui sont la détection de deux ruptures  $m_1$  et  $m_2$  et la détermination du rapport des indices  $n_1$  et  $n_3$ .

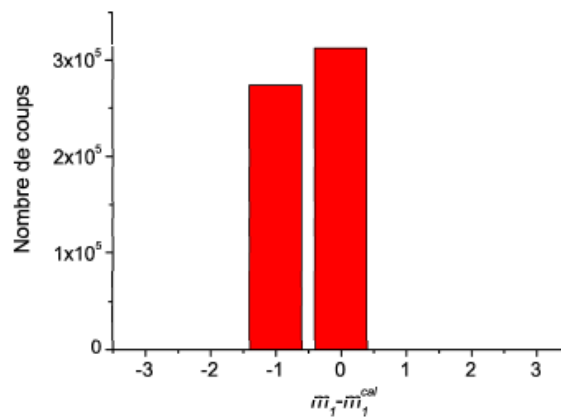


FIG. 2.11 – répartition du mode  $m_1$  calculé par rapport à la valeur réelle pour le guide tricouche

La première rupture est déterminée comme dans le cas de la structure bicouche. Sur la figure 2.11 est présentée la répartition de la détection de  $m_1$ . Cette étude a été réalisée à partir d'une



simulation de 150 000 guides et de quatre bruits  $\Phi \in \{0,01^\circ, 0,02^\circ, 0,05^\circ, 0,10^\circ\}$  différents représentant un total de 600 000 tests.

En revanche, il n'a pas été trouvé de critère pour déterminer la deuxième rupture à partir des indices effectifs. C'est pourquoi la procédure qui suit a été adoptée. Dans un premier temps,  $m_2$  est défini comme étant égal à  $m_1$  et  $n_1$  est supposé supérieur à  $n_3$ . Si aucune convergence du programme n'est observée, la valeur de  $m_2$  se voit incrémenter d'une unité jusqu'à ce qu'il y ait convergence. Il est possible qu'aucune convergence n'ait eu lieu alors que  $m_2$  est égale au dernier mode mesuré. Dans ce cas la valeur de  $m_1$  n'était pas correcte, il suffit d'enlever une unité à  $m_1$  et de recommencer l'incrémentation de  $m_2$  à partir de  $m_1$ . Si à l'issue de ces calculs, aucune solution n'a été déterminée cela signifie que l'hypothèse sur les indices des électrodes n'était pas correcte. Il suffit alors de la modifier en supposant  $n_1 < n_3$  et de recommencer l'ensemble des calculs précédents. Cette démarche sur la détection de la rupture augmente le temps de calcul mais s'avère efficace.

La bonne détermination des ruptures et du rapport entre  $n_1$  et  $n_3$  est essentielle car les valeurs des indices  $n_1$  et  $n_3$  sont bornées par les indices effectifs correspondant aux ruptures  $m_1$  et  $m_2$ . Si  $n_1$  est supérieur à  $n_3$ , sa valeur est encadrée par les indices effectifs correspondant aux modes  $m_1$  et  $m_1 + 1$  qui sont plus élevés que les indices effectifs correspondant aux modes  $m_2$  et  $m_2 + 1$  qui encadrent  $n_3$ . Si  $n_3$  est supérieur à  $n_1$ , l'encadrement est inversé. L'indice  $n_2$  est toujours encadré par la valeur la plus élevée des indices effectifs mesurés (mode le plus faible) et l'indice du prisme (Fig. 2.12).

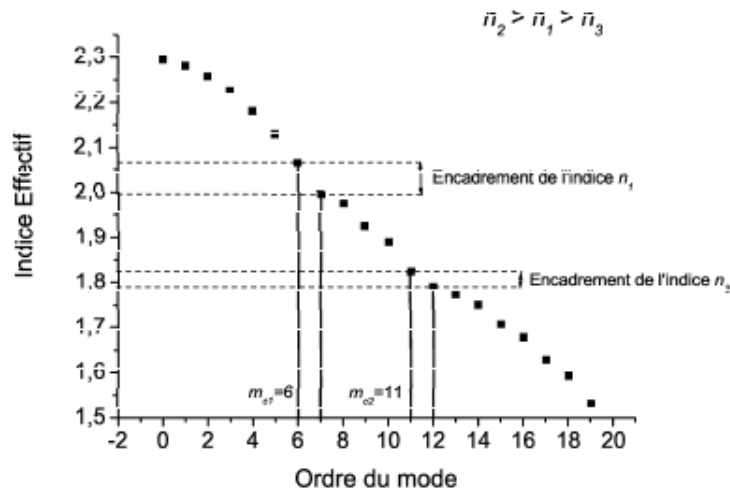


FIG. 2.12 – Variation des indices effectifs en fonction de l'ordre du mode

## 2.3 Bilan

L'objectif de ce chapitre était la mise en œuvre d'une méthode, permettant de remonter aux indices et épaisseurs d'une structure constituée de trois couches, à partir des spectres *m*-lines. Le formalisme analytique employé pour déterminer les équations de dispersion du guide a été présenté dans un premier temps. Ces équations ont été déterminées pour deux types de guide différents : une structure à deux couches qui constitue une étape de validation intermédiaire et une structure à trois couches qui constitue à notre connaissance un élément novateur par rapport à la littérature. Dans un second temps, l'architecture de la méthode de résolution inverse pour chacune des structures a été établie. Dans cette phase de l'étude, les différentes difficultés liées à la mise en place de la méthode inverse telle que : la détermination de la bonne équation de dispersion associée au mode guidé considéré ou encore la mise en œuvre de «redéploiement de phase» sur les fonctions trigonométriques mises en jeu ont été abordées.

# Chapitre 3

## Étude de la sensibilité des méthodes d'analyse

### Sommaire

---

|            |                                                                                                                             |           |
|------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>3.1</b> | <b>Étude de la méthode d'analyse du guide à deux couches . . . . .</b>                                                      | <b>50</b> |
| 3.1.1      | Influence des indices et épaisseurs du guide sur l'erreur . . . . .                                                         | 53        |
| 3.1.2      | Étude de l'erreur sur les paramètres calculés en fonction de la<br>précision des mesures <i>m</i> -lines . . . . .          | 56        |
| <b>3.2</b> | <b>Précision de la méthode d'analyse pour des structures constituées<br/>de trois couches. . . . .</b>                      | <b>58</b> |
| 3.2.1      | Étude de l'influence des indices et épaisseurs des guides en vue<br>de l'optimisation du protocole de fabrication . . . . . | 60        |
| 3.2.2      | Précision de la méthode en fonction du bruit . . . . .                                                                      | 62        |
| 3.2.3      | Précision de la méthode d'analyse en fonction du nombre de<br>données d'entrée . . . . .                                    | 62        |
| <b>3.3</b> | <b>Bilan . . . . .</b>                                                                                                      | <b>66</b> |

---

Dans le chapitre précédent, le cheminement suivi pour développer les méthodes d'analyse des structures à deux couches et à trois couches a été présenté. Il est également important de connaître la précision sur les paramètres calculés par ces méthodes d'analyse pour des données d'entrée bruitées. Pour estimer l'erreur sur les paramètres de chacune des structures, nous avons choisi une approche statistique. Dans un premier temps, le protocole d'étude de l'erreur pour le guide bicouche sera expliqué, l'influence des paramètres du guide sera discutée. Le même raisonnement sera appliqué, dans une deuxième partie, pour évaluer les erreurs dans le cas des guides tricouches.

### 3.1 Étude de la méthode d'analyse du guide à deux couches

L'étude de la sensibilité du programme est réalisée à partir de guides dont la valeur exacte des paramètres optiques est connue, ils seront par la suite appelés guides théoriques. Le programme inverse explicité dans le chapitre précédent permet de déterminer les angles synchrones liés aux guides théoriques. Ces angles synchrones correspondent aux grandeurs accessibles par la spectroscopie  $m$ -lines et sont des données qui tiennent lieu d'entrée du programme direct donnant accès aux paramètres du guide (indices et épaisseurs). Ainsi, le fait d'ajouter un bruit aléatoire aux valeurs des angles synchrones théoriques revient à simuler des résultats expérimentaux. Il est alors possible de comparer les paramètres obtenus par le calcul direct aux paramètres optiques des guides théoriques et d'évaluer l'erreur.

La première étape consiste à définir une gamme de guides théoriques pour l'étude. Les structures bicouches retenues sont constituées d'une électrode inférieure de ZnO (indice  $n_1$ , épaisseur  $d_1$ ) et d'une couche supérieure de PZT (indice  $n_2$ , épaisseur  $d_2$ ). Les différents guides théoriques qui seront exploités pour l'étude sont donc définis à partir des variables  $n_1$ ,  $n_2$ ,  $d_1$  et  $d_2$ . Afin d'être au plus proche des guides que nous réaliserons et analyserons expérimentalement, chacune des variables est choisie dans la gamme de valeurs présentée dans le tableau 3.1.

| Variable | Valeur minimale | Valeur maximale | Pas de discrétisation |
|----------|-----------------|-----------------|-----------------------|
| $n_1$    | 1,80            | 2,00            | 0,02                  |
| $n_2$    | 2,12            | 2,30            | 0,02                  |
| $d_1$    | 0,60 $\mu m$    | 1,05 $\mu m$    | 0,05 $\mu m$          |
| $d_2$    | 0,80 $\mu m$    | 1,25 $\mu m$    | 0,05 $\mu m$          |

TAB. 3.1 – Ensemble des guides bicouches simulés

Il convient également de définir les différentes valeurs qui seront utilisées pour bruite les angles synchrones théoriques. Ces valeurs ont été choisies afin de correspondre aux bruits rencontrés lors de mesures  $m$ -lines (cf. chapitre 1). La résolution de la platine de rotation, sur laquelle sont positionnés le prisme de couplage et l'échantillon sous test, a une précision de 0,001 °, mais le réglage sur l'origine des angles de la platine est effectué avec une précision estimée à 0,05 °.

D'autre part, nous avons observé lors de l'analyse du PZT en monocouche que la détermination des angles synchrones pouvait être entachée d'une incertitude de  $0,1^\circ$ . Nous avons alors choisi de retenir pour valeur de bruit  $\Phi^{MAX}$  telle que  $\Phi^{MAX} \in \{0,01^\circ, 0,02^\circ, 0,05^\circ, 0,10^\circ, 0,20^\circ\}$ .

Un algorithme et par la suite un programme en Fortran ont été établis afin de réaliser un grand nombre de tests. Ainsi, 10 000 guides bruités ont été simulés pour éprouver le programme et la méthode d'analyse. L'algorithme employé pour tester cette méthode est présenté sur la figure 3.1.

Dans un premier temps, à partir des paramètres d'un guide bicouche théorique ( $n_1^{th}, d_1^{th}, n_2^{th}, d_2^{th}$ ), les différents angles synchrones théoriques  $\phi_i^{th}$  sont calculés (avec  $0 \leq i \leq M$  et  $M$  est le nombre maximum de modes pouvant être couplés dans le guide). Un bruit aléatoire  $\phi_i^{al}$  est alors ajouté à chaque angle synchrone (tel que  $-\Phi^{MAX} \leq \phi_i^{al} \leq \Phi^{MAX}$ ) pour simuler des mesures expérimentales bruitées :

$$\phi_i^{exp} = \phi_i^{th} + \phi_i^{al}$$

Les valeurs bruitées des angles  $\phi_i^{exp}$  sont les paramètres d'entrée du programme de résolution numérique. Les solutions ( $n_1^{cal}, d_1^{cal}, n_2^{cal}, d_2^{cal}$ ) obtenues en sortie de programme représentent une valeur moyenne sur le nombre de combinaisons  $\Lambda$  ayant convergé ( $\Lambda \leq C_M^4$ , cf. chapitre 2). L'erreur sur chacun des paramètres est alors définie par :

$$\begin{cases} \delta n_1 = n_1^{th} - n_1^{cal} \\ \delta d_1 = d_1^{th} - d_1^{cal} \\ \delta n_2 = n_2^{th} - n_2^{cal} \\ \delta d_2 = d_2^{th} - d_2^{cal} \end{cases} \quad (3.1)$$

Pour chaque guide étudié, le calcul de l'erreur  $\delta p$  sur chaque paramètre  $p$  est effectué cent fois avec des bruits différents à chaque fois. Les répartitions des erreurs pour le guide  $n_1=1,98$ ,  $n_2=2,20$ ,  $d_1=1,0 \mu m$  et  $d_2=1,2 \mu m$  et pour un bruit aléatoire borné par la valeur  $0,05^\circ$  sont présentées sur la figure 3.2. Ces répartitions suivent une loi normale, cela implique que, si on considère une mesure bruitée prise au hasard, l'erreur sur  $n_1$  par exemple a 99 % de chance d'être comprise dans l'intervalle défini par 3 fois l'écart type sur les 100 spectres bruités. Par la suite cet intervalle sera utilisé comme définition de l'erreur, ainsi :

$$\Delta n_1 = 3 \sum_{j=1}^Y \sqrt{\frac{(\delta n_{1j} - \overline{\delta n_{1j}})^2}{Y}} \quad (3.2)$$

$Y$  étant le nombre de fois où le programme a convergé vers une solution parmi les 100 spectres analysés et leurs combinaisons de modes associés ( $Y \leq 100$ ).  $\overline{\delta n_{1j}}$  représente la valeur moyenne de  $\delta n_{1j}$ . Les erreurs sur les autres variables du problème seront définies de manière analogue.

Nous allons nous attacher dans un premier temps à analyser, pour chaque guide considéré dans l'intervalle de notre étude, l'erreur commise sur la détermination des variables à partir de 100 spectres bruités. Cette étude permet de déterminer la « stabilité » de la méthode en fonction du type de guide considéré.

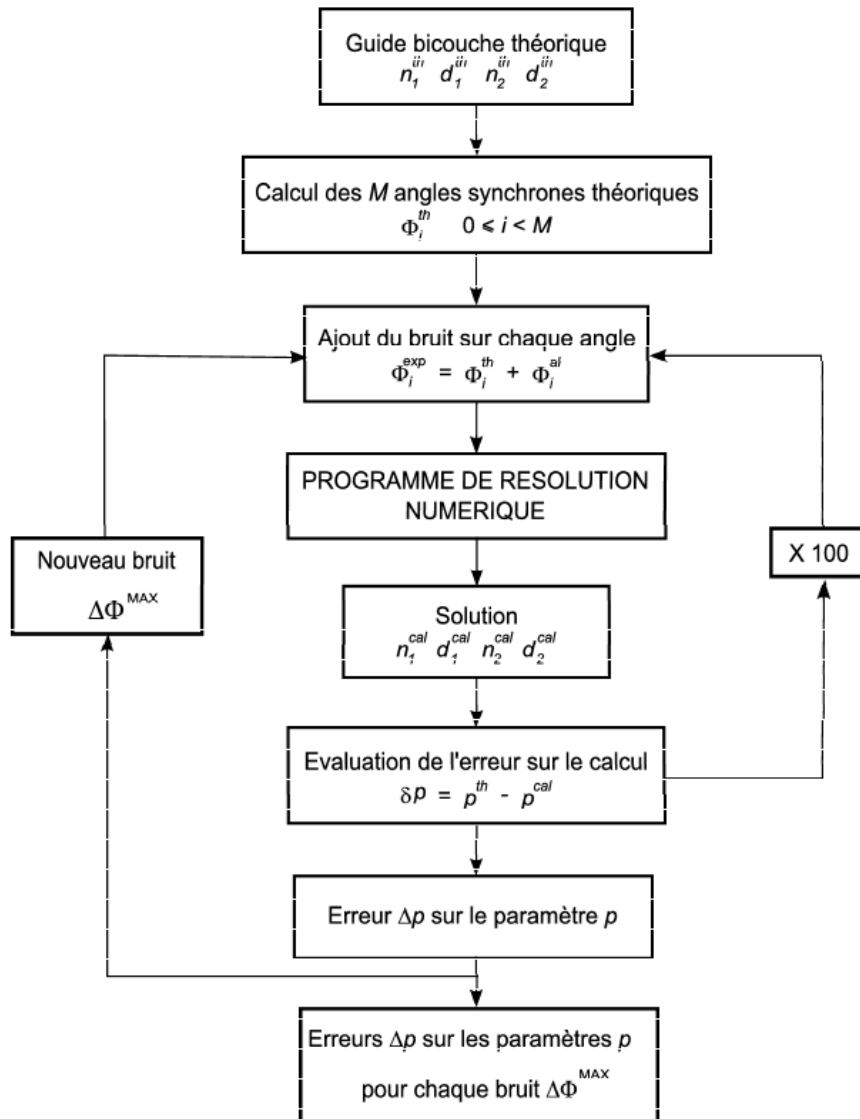


FIG. 3.1 – Algorithme de l'étude de la sensibilité du programme

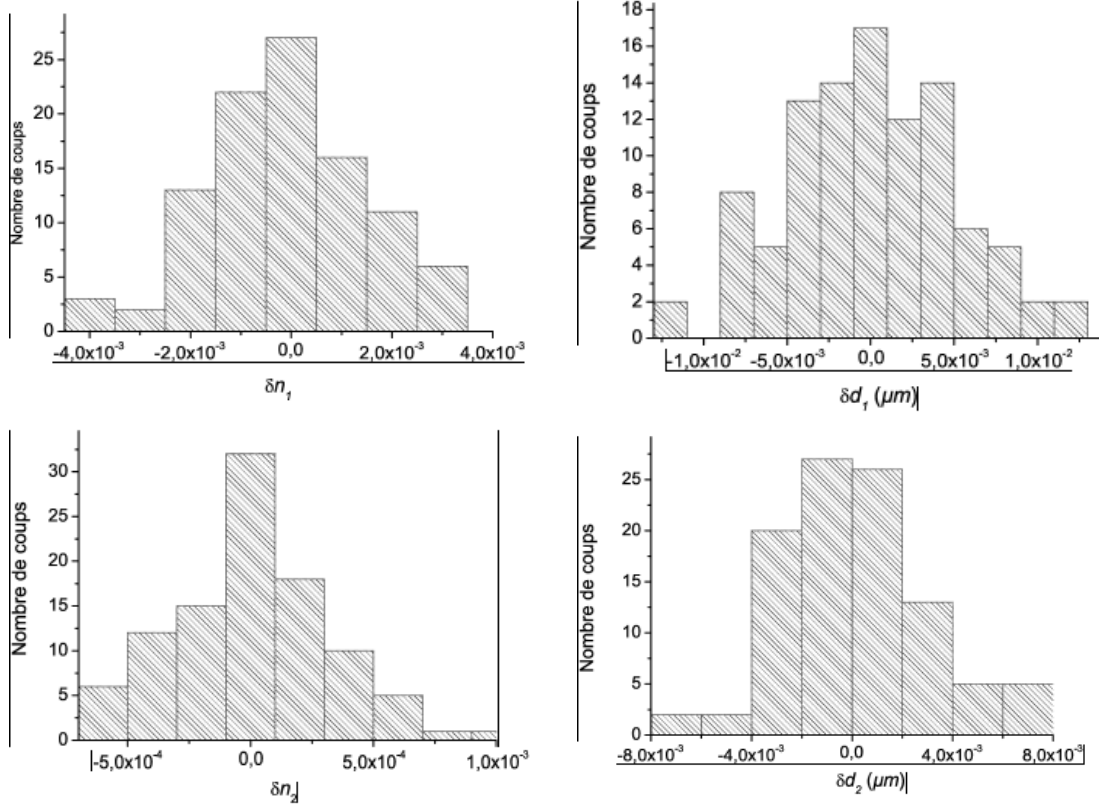


FIG. 3.2 – Dispersion des erreurs sur les paramètres  $n_1$ ,  $d_1$ ,  $n_2$  et  $d_2$  pour le bruit  $\Phi^{MAX} = 0,05^\circ$

### 3.1.1 Influence des indices et épaisseurs du guide sur l'erreur

Lors de l'analyse des spectres  $m$ -lines, il est préférable d'avoir un grand nombre de modes mesurés afin d'augmenter le nombre d'équations de dispersion utilisées pour la résolution. Ce nombre peut être accru de deux manières différentes, soit en augmentant les épaisseurs des couches, soit en augmentant la différence d'indice entre ces deux couches. Augmenter les épaisseurs des couches reste la solution la plus facilement réalisable expérimentalement. Il est donc intéressant de savoir si numériquement la variation de ces paramètres n'entraîne pas des erreurs plus importantes. Les graphiques des figures 3.3 et 3.4 montrent les variations de l'erreur sur  $n_2$  et  $d_2$  en fonction des paramètres des guides.

La lecture des différents graphiques des figures 3.3 et 3.4 permet de conclure que l'erreur sur  $n_2$  et  $d_2$  n'est pas liée à la variation des paramètres des guides. Il en est de même pour l'erreur sur  $n_1$  et  $d_1$ . L'erreur est plus sensiblement liée au bruit sur les angles synchrones ( $\Phi^{MAX}$ ) car sa répartition augmente de façon significative avec le bruit. N'étant pas limité par la variation des paramètres, les guides favorisant le couplage d'un maximum de modes seront donc retenus pour la réalisation expérimentale.

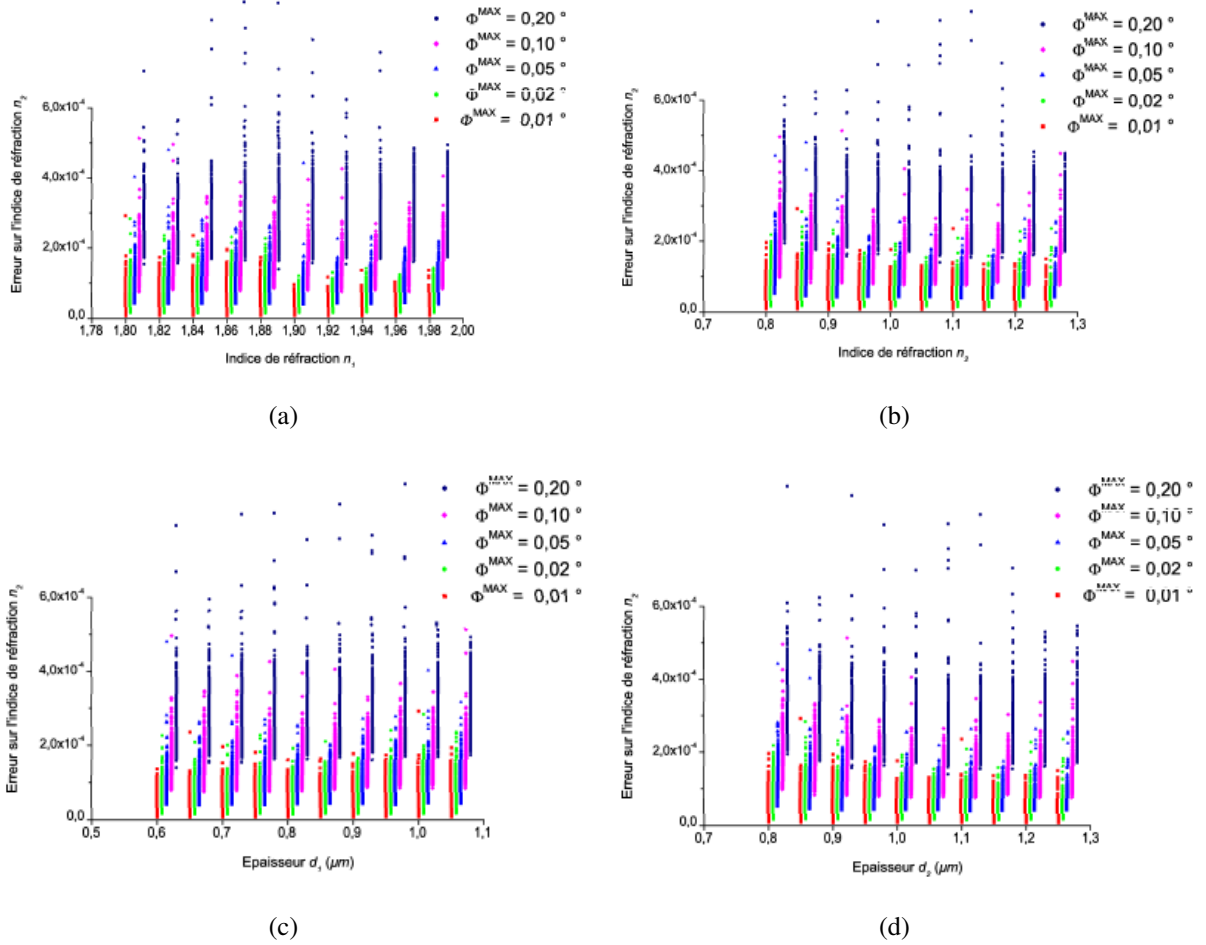


FIG. 3.3 – Variation de l'erreur sur  $n_2$  en fonction des paramètres  $n_1$  (a),  $n_2$  (b),  $d_1$  (c) et  $d_2$  (d).



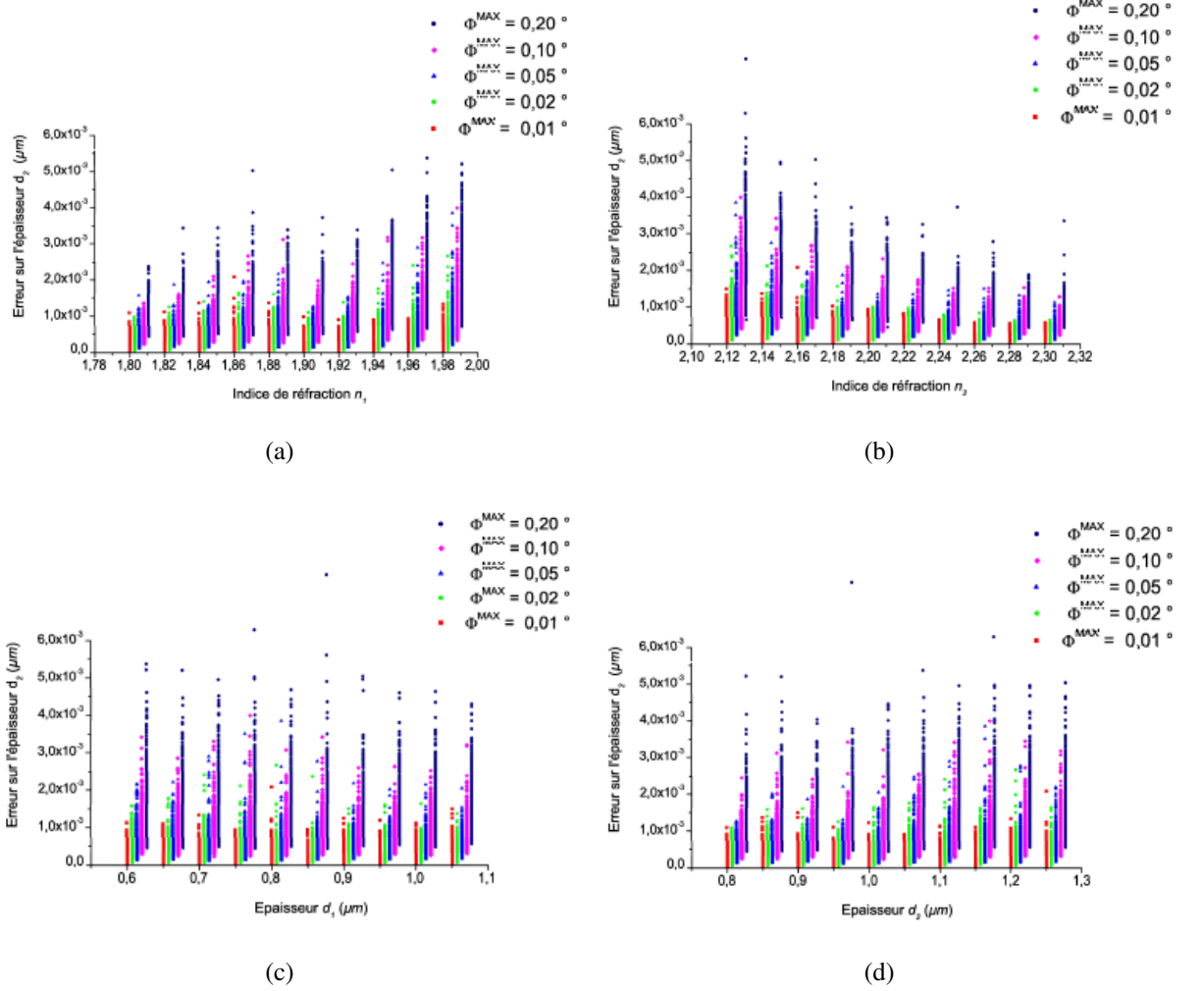


FIG. 3.4 – Variation de l'erreur sur  $d_2$  en fonction des paramètres  $n_1$  (a),  $n_2$  (b),  $d_1$  (c) et  $d_2$  (d).

### 3.1.2 Étude de l'erreur sur les paramètres calculés en fonction de la précision des mesures $m$ -lines

Nous nous sommes plus particulièrement intéressés aux répartitions des erreurs sur 10 000 guides choisis dans notre gamme d'étude en fonction du bruit considéré. La figure 3.5 représente les répartitions des erreurs sur les différents paramètres pour le bruit  $\Phi^{MAX} = 0,05^\circ$ . Ces répartitions suivent une loi en lognormal du type :

$$y(\Delta p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\omega\Delta p}} \exp \left[ -\frac{(\ln(\Delta p) - \mu)^2}{2\omega^2} \right]$$

comme le montrent les ajustements en traits pleins sur la figure.

Cette distribution est relativement classique en statistique et ne présente pas de comportement pathologique. Il est possible d'attribuer à la série une valeur moyenne  $\langle \Delta p \rangle = e^{\left(\mu + \frac{\omega^2}{2}\right)}$  et un écart type  $\Sigma_p = \sqrt{(e^{\omega^2} - 1)e^{(2\mu + \omega^2)}}$ .

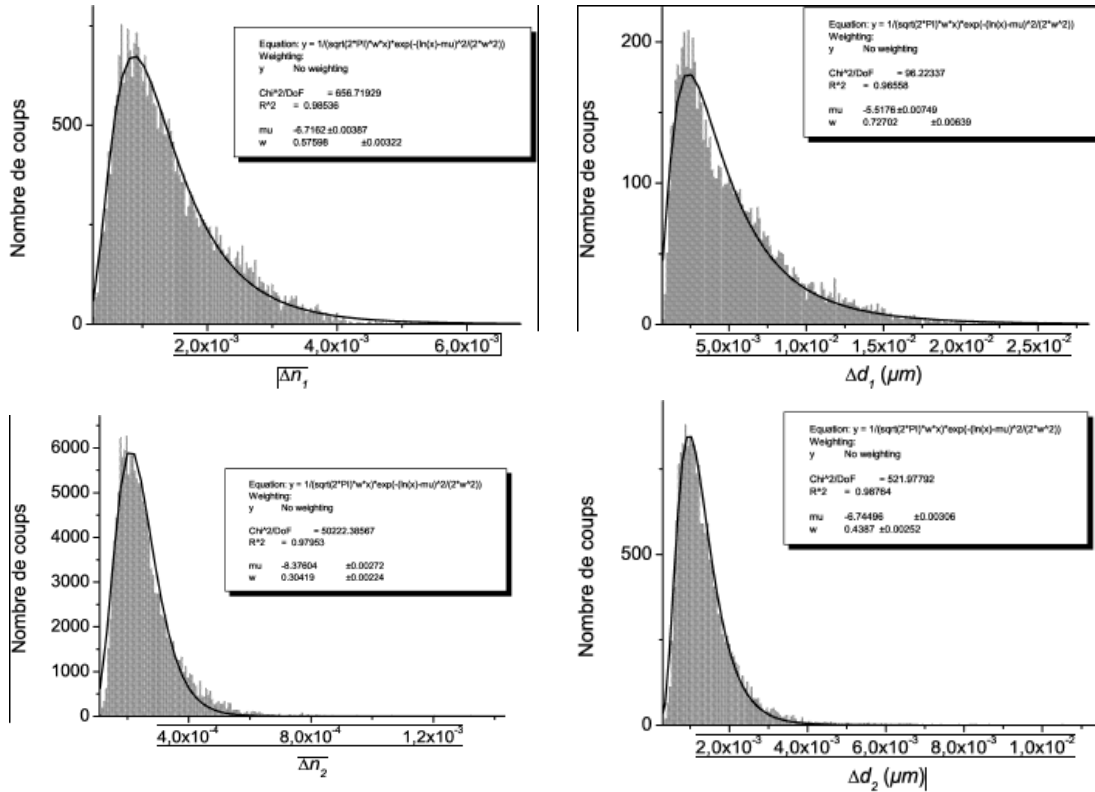


FIG. 3.5 – Dispersion des erreurs sur les paramètres pour le bruit  $\Phi^{MAX} = 0,05^\circ$

Ces considérations permettent d'affirmer par exemple que l'erreur sur  $n_1$  pour un guide pris au hasard dans le domaine défini par le tableau 3.1 a 85% de chance d'être comprise dans l'intervalle  $\langle \Delta n_1 \rangle \pm \Sigma_{n_1}$ , soit  $1,6 \cdot 10^{-3} \pm 2,1 \cdot 10^{-3}$ , si l'erreur sur la mesure des angles est égale à  $0,05^\circ$ .

L'évolution des erreurs  $\langle \Delta p \rangle$  sur les différents paramètres est tracée sur les figures 3.6 et 3.7. Les barres d'erreur correspondent à  $\pm \Sigma_p$ . Sur ces mêmes figures ont été ajoutées les erreurs maximales ( $Max \Delta p$ ) sur les 10 000 guides analysés pour chaque bruit.

Les erreurs maximales sur les indices peuvent atteindre quelques  $10^{-3}$  et les erreurs maximales sur les épaisseurs la vingtaine de nanomètres (Fig. 3.6 et 3.7). Étant donnée la forme de la distribution, ces valeurs ne concernent par contre qu'un nombre très restreint de guides. Les valeurs moyennes sont de meilleurs indicateurs et il apparaît que le programme de résolution des équations de dispersion tricouche est en mesure de fournir des solutions avec une précision meilleure que  $10^{-3}$  pour les indices de réfraction et  $10nm$  pour les épaisseurs dans la gamme de bruits attendue expérimentalement.

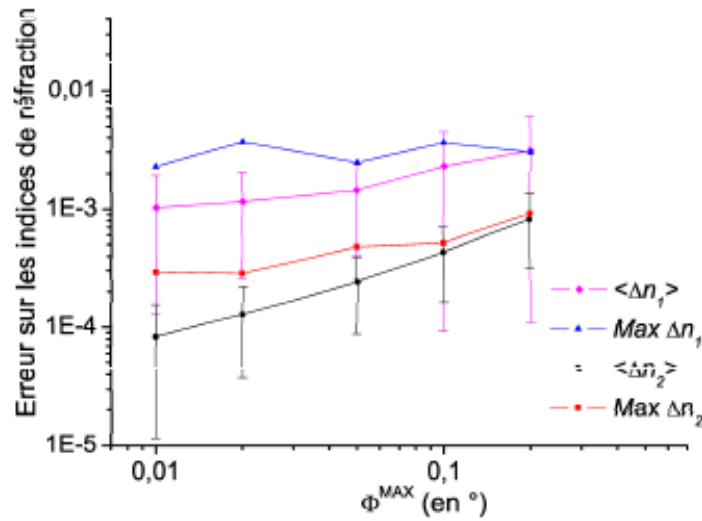
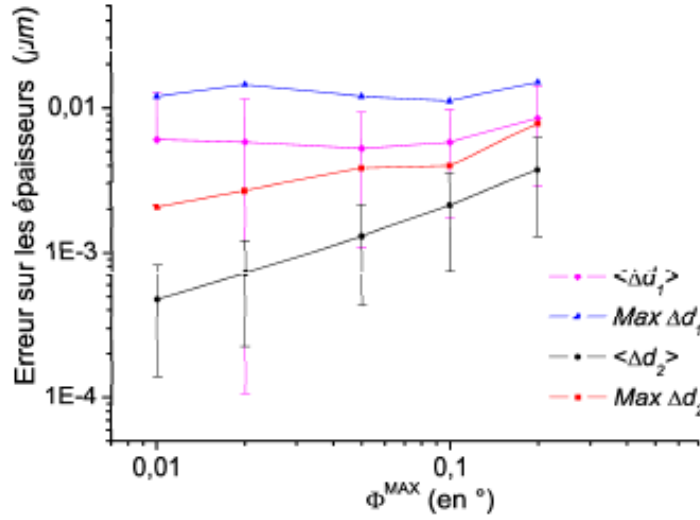


FIG. 3.6 – Variation de l'erreur sur  $n_1$  et  $n_2$  en fonction du bruit

FIG. 3.7 – Variation de l'erreur sur  $d_1$  et  $d_2$  en fonction du bruit

### 3.2 Précision de la méthode d'analyse pour des structures constituées de trois couches.

L'étude de la sensibilité de la méthode d'analyse des guides à deux couches a été adaptée à l'étude des guides à trois couches. Les bruits sur les angles synchrones ont été réduits aux quatre valeurs  $\Phi^{MAX} \in \{0,01^\circ, 0,02^\circ, 0,05^\circ, 0,10^\circ\}$  car tout au long de cette étude, il a été indispensable de faire des choix entre la restriction des paramètres d'étude et le temps de calcul. Dans les configurations de guides retenues, certaines pouvaient fournir un spectre  $m$ -lines comportant un grand nombre de modes. Là encore, en vue de limiter le temps de calcul, nous nous sommes restreints à neuf modes dans l'analyse. Ces neuf modes doivent être choisis judicieusement car certaines restrictions modales entraînent des problèmes de convergence. Il est essentiel de choisir des modes correspondant à chaque configuration de guidage et ce (si possible) en nombre égal<sup>1</sup>. C'est pour cette raison que l'étude a été limitée à environ 2 500 guides tricouches différents. Ces guides sont définis par des valeurs discrètes telles que :

- $1,6 < n_1, n_3 < (n_2 - 0,1) < 2,5$  avec un pas de discrétisation de 0,1
- $1,0 \mu m < d_1, d_2 < 2 \mu m$  avec un pas de discrétisation de 100 nm
- l'épaisseur  $d_3$  garde une valeur constante de 100 nm.

La procédure utilisée pour évaluer la sensibilité au bruit du programme est semblable à celle employée dans le cas de la structure bicouche décrite précédemment. Elle est résumée sur la figure 3.8.

<sup>1</sup>À titre informatif, le temps de calcul pour réaliser l'ensemble de l'étude a été de trois mois sans interruption sur un ordinateur Pentium 4.

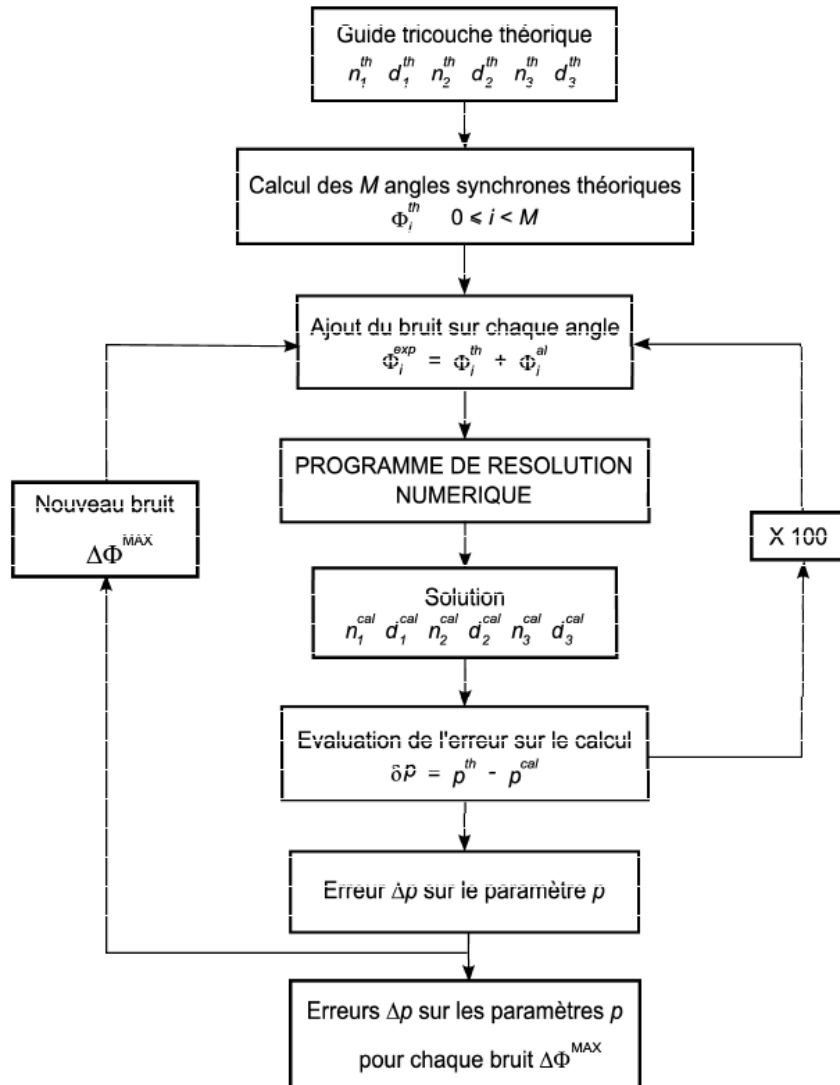


FIG. 3.8 – Algorithme de l'étude de la sensibilité du programme

### 3.2.1 Étude de l'influence des indices et épaisseurs des guides en vue de l'optimisation du protocole de fabrication

Les erreurs sur l'indice  $n_2$  et l'épaisseur  $d_2$  de la couche confinante, pour différents guides quand les épaisseurs  $d_1$  et  $d_2$  varient, sont présentées sur la figure 3.9. Aucune dépendance de la résolution numérique avec les épaisseurs  $d_1$  et  $d_2$  n'est observée. Expérimentalement, nous choisirons donc des épaisseurs conséquentes en vue d'augmenter le nombre de modes guidés : cela aura pour effet de fournir un nombre plus important de combinaisons pour l'analyse. De

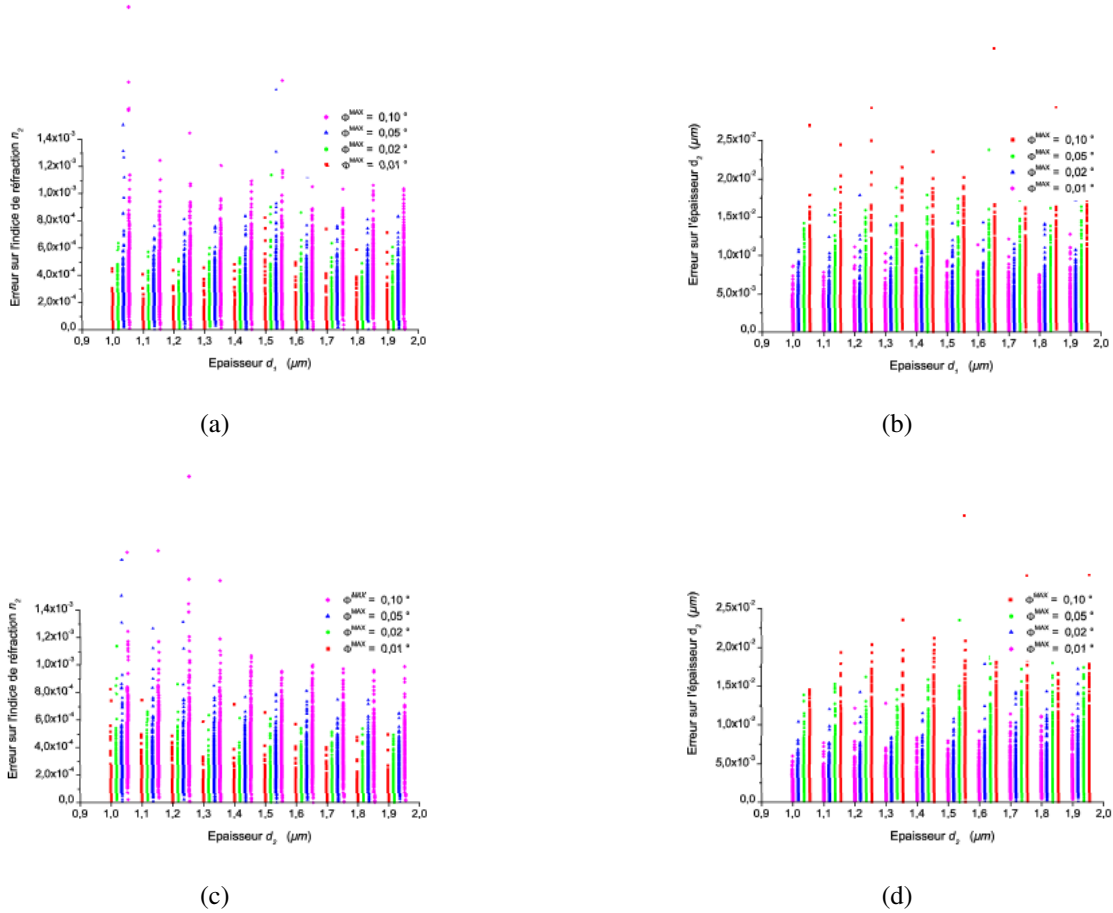


FIG. 3.9 – Influence de l'épaisseur  $d_1$  sur  $n_2$  (a) et  $d_2$  (b) et influence de l'épaisseur  $d_2$  sur  $n_2$  (c) et  $d_2$  (d).

manière analogue (Fig. 3.10), les indices  $n_1$ ,  $n_2$  et  $n_3$  n'affectent pas la précision de la méthode d'analyse.

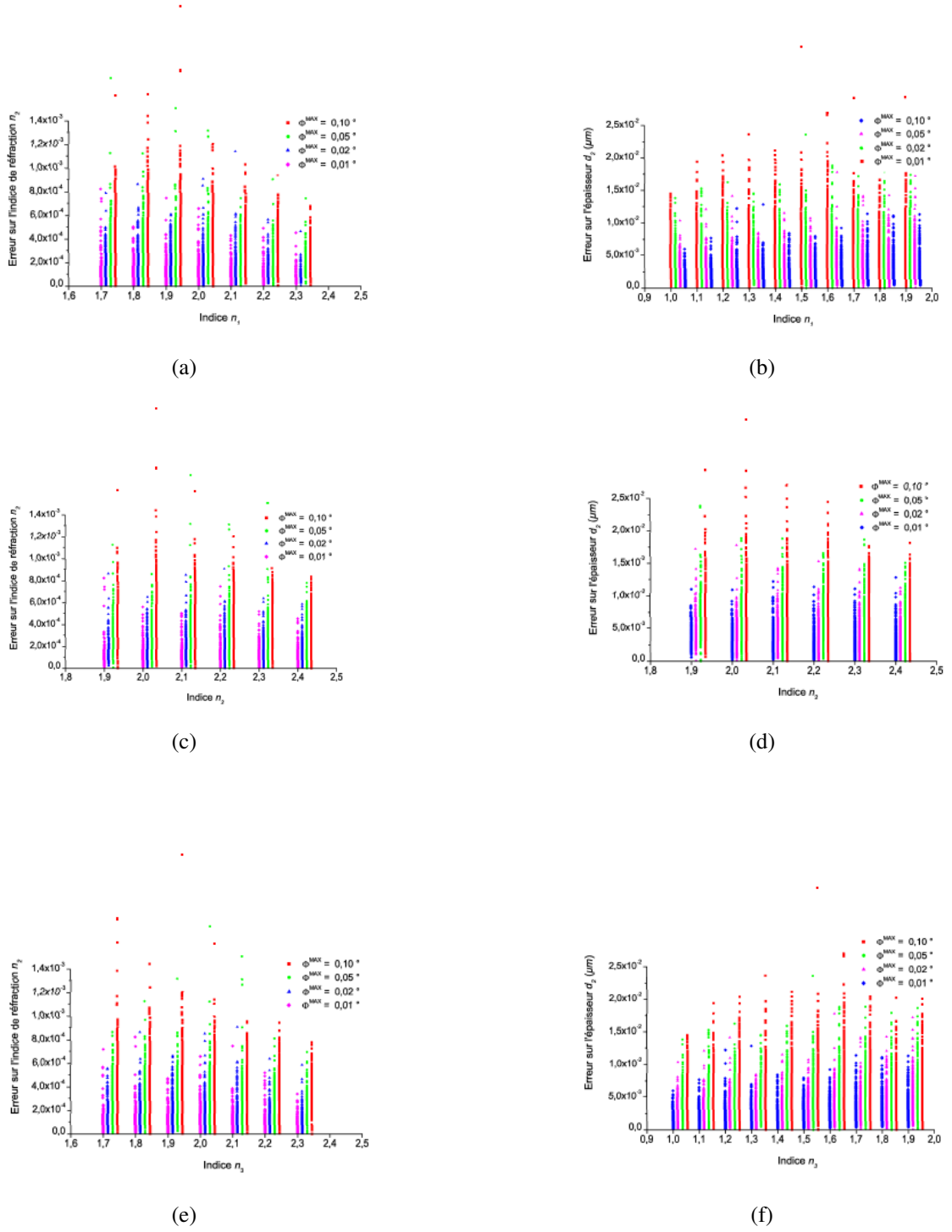


FIG. 3.10 – Influence des indices de réfraction  $n_1$  sur  $n_2$  (a) et  $d_2$  (b),  $n_2$  sur  $n_2$  (c) et  $d_2$  (d) et  $n_3$  sur  $n_2$  (e) et  $d_2$  (f).

### 3.2.2 Précision de la méthode en fonction du bruit

Comme lors de l'analyse des guides bicouches, nous nous sommes intéressés à l'évolution de l'erreur sur les paramètres en fonction du bruit lié à la mesure des angles synchrones. Là encore, la répartition des erreurs suit une loi en lognormal. À titre d'exemple, la figure 3.11 montre la distribution des erreurs sur les paramètres pour l'ensemble des 2 500 guides analysés pour un bruit  $\Phi^{MAX} = 0,05^\circ$ .

De manière analogue à la méthode de résolution pour un guide bicouche, il est aisé de déterminer l'évolution des erreurs  $\langle \Delta p \rangle$  sur les différents paramètres (Fig. 3.12 et 3.13) pour la méthode d'analyse à trois couches à partir de ces distributions. Les barres d'erreur correspondent à  $\pm \Sigma_p$ . Sur ces mêmes figures ont été ajoutées les erreurs maximales sur les 2 500 guides théoriques analysés pour chaque bruit.

Les résultats montrent qu'il est possible de mesurer une variation d'indice de réfraction de la couche centrale de l'ordre de  $10^{-3}$  et une variation d'épaisseur de 25 nm pour une erreur d'un dixième de degrés sur les angles synchrones. Cependant, des erreurs moyennes maximales très élevées sur l'épaisseur  $d_1$  de la couche inférieure et sur l'indice  $n_3$  de la couche supérieure peuvent être observées. Étant donnée que les distributions des erreurs suivent une loi en lognormal, les valeurs moyennes maximales ne présentent qu'une infime partie de la distribution. Mais il est envisageable de minimiser cette erreur. En effet, initialement, nous avons fait le choix de limiter le nombre de paramètres d'entrée car une augmentation de ce dernier correspond à une augmentation du temps de calcul.

### 3.2.3 Précision de la méthode d'analyse en fonction du nombre de données d'entrée

Une étude de l'évolution de l'erreur en fonction du nombre de modes utilisé a été effectuée pour quelques uns des guides dont l'erreur était élevée. La figure 3.14 présente l'évolution de l'erreur sur l'épaisseur  $d_1$  en fonction du nombre de modes utilisé comme données d'entrée de la méthode d'analyse. L'erreur diminue nettement en fonction du nombre de modes utilisé. Elle passe de 500 nm à 0,1 nm quand ce nombre augmente de 9 à 15. La même analyse a été réalisée sur l'erreur de détermination de l'indice de la couche supérieure (Fig. 3.15). L'augmentation du nombre de données d'entrée de 9 à 13 permet d'optimiser la sensibilité de la méthode de quatre décades. Dans ces conditions optimales, le temps de calcul est alors considérablement augmenté, il est multiplié par environ 1000 voire 6000. Aussi, l'emploi de quinze modes pour l'étude statistique n'aurait pu être réalisé dans la durée impartie pour mes travaux de thèse. Ainsi, l'erreur obtenue statistiquement pour neuf angles synchrones mesurés constituera une valeur supérieure des valeurs d'incertitudes pour la méthode. Expérimentalement, nous exploiterons l'ensemble des modes pour optimiser la résolution de la mesure.



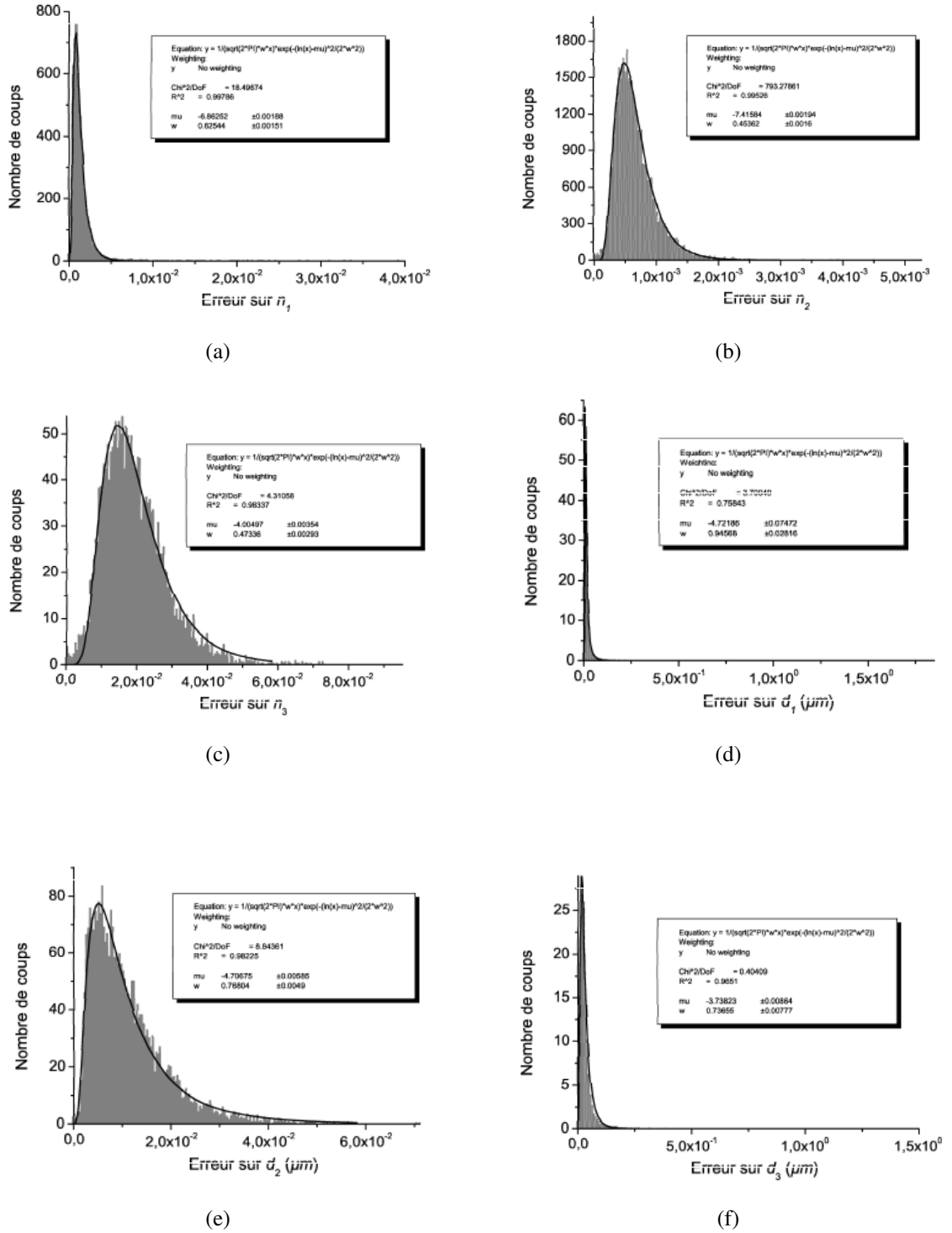


FIG. 3.11 – Dispersion des erreurs sur les paramètres pour le bruit  $\Phi^{MAX} = 0,05^\circ$

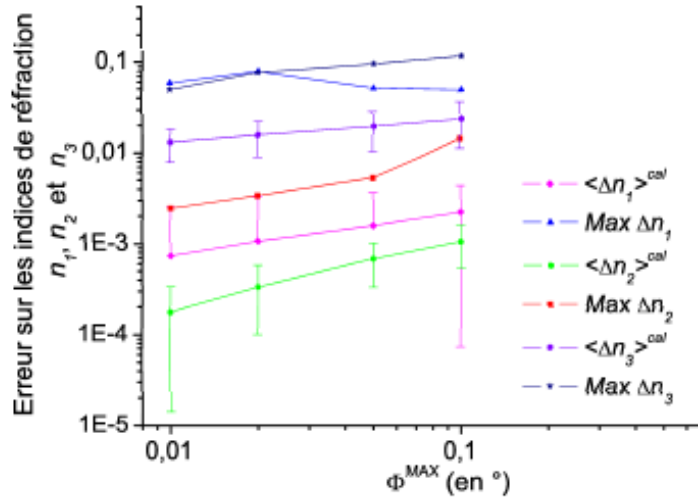


FIG. 3.12 – Variation des erreurs sur les indices en fonction du bruit

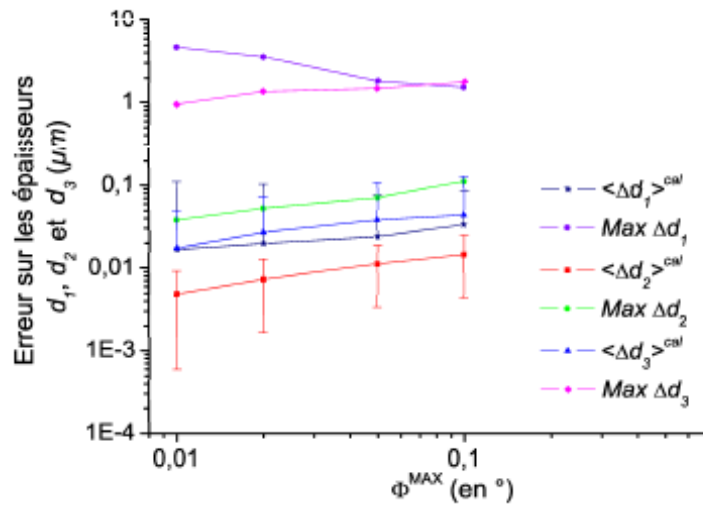


FIG. 3.13 – Variation des erreurs sur les épaisseurs en fonction du bruit

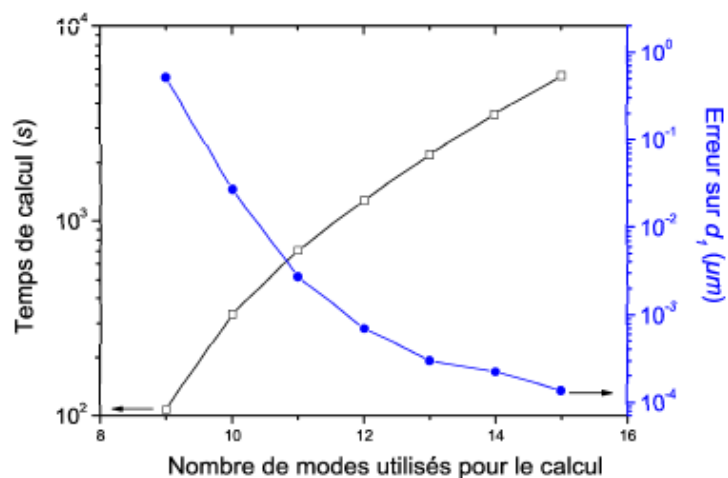


FIG. 3.14 – Variation de l'erreur et du temps de calcul en fonction du nombre de modes utilisés dans le calcul de résolution du guide défini par  $n_1 = 1,9$ ,  $n_2 = 2,3$ ,  $n_3 = 2,2$ ,  $d_1 = 1,1 \mu m$ ,  $d_2 = 1,9 \mu m$  et  $d_3 = 0,1 \mu m$  et pour un bruit  $\Phi^{MAX} = 0,01^\circ$ .

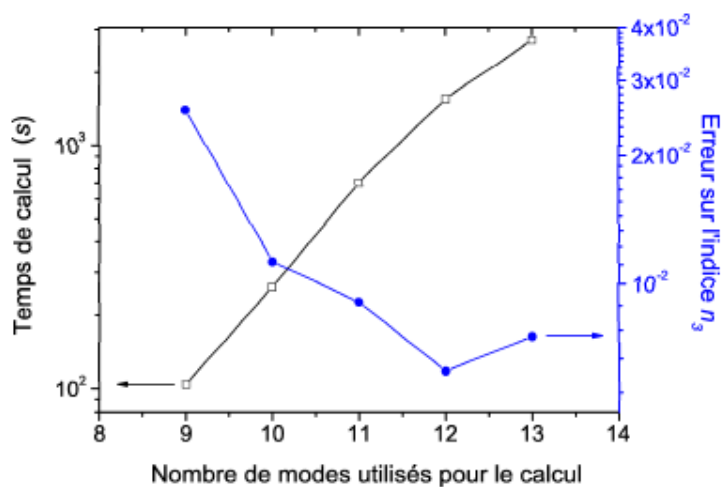


FIG. 3.15 – Variation de l'erreur et du temps de calcul en fonction du nombre de modes utilisés dans le calcul de résolution

### 3.3 Bilan

L'étude en sensibilité des méthodes de résolution a été réalisée par une approche statistique. Dans un premier temps, l'étude de la structure bicouche a permis d'établir une précision meilleure que  $10^{-3}$  sur la mesure des indices et une erreur inférieure à la dizaine de nanomètres sur les épaisseurs pour un bruit typiquement rencontré expérimentalement. Pour le guide tricouche, les résultats sont tout aussi encourageants car une erreur de l'ordre de  $10^{-3}$  est obtenue pour l'indice de la couche confinante et une incertitude de  $25\text{ nm}$  est obtenue pour l'épaisseur. Cependant, les erreurs sur l'épaisseur de la couche inférieure et de l'indice de la couche supérieure sont un peu élevées. Elles sont essentiellement dues au compromis «gain de temps/précision des calculs» que nous avons dû faire. En effet, l'étude statistique se faisant sur un nombre conséquent de guides simulés, nous avons choisi de tronquer le nombre d'angles synchrones utilisés pour réduire le temps de calcul. Or pour les guides ne donnant pas une grande précision, nous avons augmenté le nombre de données d'entrée et la précision gagnait jusqu'à quatre décades. En ce qui concerne l'expérimentation, la précision des mesures induite par le nombre de modes et donc l'épaisseur des couches, sera surtout limitée par des contraintes expérimentales.





# Chapitre 4

## Réalisation et caractérisation de guides à deux couches et à trois couches.

### Sommaire

---

|            |                                                                                       |           |
|------------|---------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>4.1</b> | <b>Élaboration et caractérisation du ZnO . . . . .</b>                                | <b>70</b> |
| 4.1.1      | Dépôt par pulvérisation cathodique radio fréquence magnétron .                        | 70        |
| 4.1.2      | Caractérisation structurale des couches minces de ZnO . . . . .                       | 71        |
| 4.1.3      | Caractérisation des couches minces de ZnO par spectroscopie <i>m</i> -lines . . . . . | 73        |
| <b>4.2</b> | <b>Élaboration et analyse des guides bicouches . . . . .</b>                          | <b>75</b> |
| 4.2.1      | Réalisation et caractérisation structurale . . . . .                                  | 75        |
| 4.2.2      | Mesures <i>m</i> -lines . . . . .                                                     | 77        |
| <b>4.3</b> | <b>Réalisation et caractérisation de guides tricouches . . . . .</b>                  | <b>82</b> |
| 4.3.1      | Élaboration et caractérisation structurale des guides . . . . .                       | 83        |
| 4.3.2      | Analyse optique des guides . . . . .                                                  | 84        |
| <b>4.4</b> | <b>Bilan . . . . .</b>                                                                | <b>89</b> |

---

Dans le chapitre 2, nous avons présenté les méthodes d'analyse pour des structures multicouches. Les incertitudes sur les mesures ont été définies pour différents bruits sur les mesures dans le chapitre 3. Dorénavant, il est possible de caractériser des guides à deux et trois couches par des mesures optiques en spectroscopie *m*-lines. Dans ce dernier chapitre, le protocole d'élaboration et la caractérisation structurale et optique des guides bicouches et tricouches seront discutés. Nous présenterons les propriétés du matériau utilisé pour la réalisation de la couche inférieure et supérieure : le ZnO. Dans un deuxième temps, les résultats des mesures obtenus sur les guides à deux et trois couches, à partir des méthodes d'analyse seront présentés.

### 4.1 Élaboration et caractérisation du ZnO

L'oxyde de zinc (ZnO) offre un grand nombre de possibilités d'utilisation en technologie couches minces. En effet, il présente l'intérêt d'être transparent pour des longueurs d'onde allant de 400 nm à 2  $\mu$ m. Le ZnO dopé est également un bon conducteur électrique [52]–[59], il est donc un matériau de choix pour notre étude. L'utilisation du ZnO en tant qu'électrode à d'abord été étudié par Darwish [60]–[62]. De part ses propriétés, il est fréquemment utilisé pour la réalisation de cellules photovoltaïques [63]. L'oxyde d'indium et d'étain (ITO) peut également jouer le rôle d'électrode transparente [64]–[66], mais il est parfois délaissé au profit du ZnO en raison de son indice de réfraction plus faible. Le ZnO utilisé a été déposé par pulvérisation magnétron au laboratoire LAMP<sup>1</sup> de l'Université de Nantes par N. Barreau.

#### 4.1.1 Dépôt par pulvérisation cathodique radio fréquence magnétron

La pulvérisation consiste à bombarder une cible par des particules très énergétiques qui sont des ions. Pour cela, la cible est reliée à une alimentation alternative constituant la cathode, qui par décharges ionise les atomes d'Argon constituant le milieu de l'enceinte. Les ions sont alors attirés par la cathode et viennent bombarder la cible éjectant des atomes qui viennent se déposer sur le substrat placé sous la cible. Les principaux paramètres influant sur la qualité du dépôt sont la pression du gaz utilisé dans l'enceinte, la différence de potentiel entre la cathode et l'anode qui va agir sur la vitesse de dépôt, et la température du substrat.

Le terme radio fréquence signifie que l'on utilise une alimentation alternative radio fréquence et le terme magnétron indique que des aimants sont placés derrière la cible. Le champ magnétique produit par ces aimants autour de la cible permet de donner une trajectoire elliptique aux électrons, de telle façon qu'ils restent piégés au niveau de la cible. En effet, les trajectoires électroniques s'enroulent autour des lignes de champ magnétique, augmentant considérablement la probabilité d'ioniser un atome de gaz au voisinage de la cathode. Cela entraîne une vitesse de pulvérisation, et donc de dépôt, beaucoup plus importante [67].

---

<sup>1</sup>LAMP, Laboratoire de Matériaux Photovoltaïques, EA 3825



Les conditions de dépôt du ZnO utilisé sont celles optimisées par le LAMP pour des applications photovoltaïques. Les critères requis sont une conductivité de  $5.10^{-3} \Omega.cm$  et une transparence maximale entre  $350 nm$  (correspondant au gap du ZnO environ  $3,4 eV$ ) et  $1300 nm$ . Ces propriétés conviennent également aux exigences des nos guides d'onde bicouches et tricouches.

La cible en céramique est constituée d'oxyde de zinc et d'aluminium dans les proportions massiques de 98%-2%, elle a un diamètre de  $7,5 cm$  environ. Avant le dépôt, un vide de  $2.10^{-7} mbar$  est créé, puis de l'argon est introduit jusqu'à ce que la pression atteigne la valeur de  $2.10^{-3} mbar$ . La puissance utilisée est de  $200 W$ , dans ces conditions, la vitesse de dépôt est de  $100 nm.min^{-1}$ .

Le protocole de dépôt des couches de ZnO consiste à positionner quatre substrats de verre Corning<sup>2</sup> de dimension  $25 \times 25 mm$  placés à  $5 cm$  sous la cathode. La cible étant de géométrie sphérique, les substrats sont placés de façon à ce que l'un de leur coin soit aligné sous le centre du dépôt (Fig. 4.1). Ainsi les quatre échantillons ont des propriétés similaires à la fin du processus de dépôt.

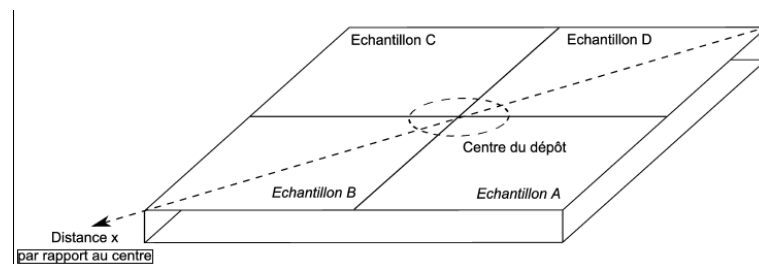


FIG. 4.1 – Répartition des échantillons sous la cible du dispositif de dépôt

## 4.1.2 Caractérisation structurale des couches minces de ZnO

En vue de réaliser la structure à trois couches ZnO/PZT/ZnO, la couche mince inférieure de ZnO sera soumise à traitement thermique lors de la cristallisation du PZT dans la phase pérovskite. En premier lieu, les propriétés structurales ont été analysées en diffraction X pour des couches de ZnO élaborées par le processus présenté ci-dessus. Dans un deuxième temps, les couches ont été recuites avec le même traitement thermique que celui imposé au PZT (recuit à  $650^{\circ} C$  avec refroidissement lent, cf. chapitre 1), puis l'analyse a été répétée. Un diffractomètre Siemens D5000 a été utilisé pour ces mesures. La source de rayons X est une anticathode de cuivre ayant une raie  $k_{\alpha}$  de longueur d'onde  $\lambda = 0,1540566 nm$  sélectionnée par un monochromateur. Les spectres obtenus

<sup>2</sup>Verre Corning 1737f

Densité (à  $25^{\circ} C$ ) :  $2,54 g.cm^{-3}$

Coefficient d'expansion thermique ( $0 - 300^{\circ} C$ ) :  $37,6.10^{-7} / ^{\circ} C$

Point de fusion :  $721^{\circ} C$

Indice de réfraction à  $632 nm$  :  $1,51724 \pm 5.10^{-5}$

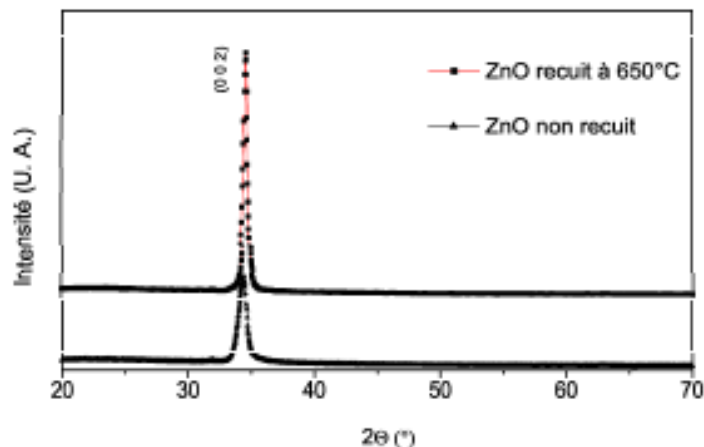


FIG. 4.2 – Spectres de diffraction X sur des films minces de ZnO avant et après recuit.

pour les échantillons recuits et non recuits sont présentés sur la figure 4.2. L'analyse de ces spectres révèle une orientation préférentielle suivant l'axe  $c$  [52, 68] pour les deux types d'échantillons. N'utilisant pas de substrats orientés, l'orientation cristalline du ZnO est donc probablement due à la propre texture du film déposé. En effet, dans la littérature [59, 69], il est montré que les couches minces de ZnO de type wurtzite (hexagonale) sont généralement polycristallines suivant l'axe  $c$  due à la faible énergie libre de surface de ce plan (002) (Fig. 4.3). À l'état d'équilibre, la croissance cristalline se fait dans le plan ayant la plus faible énergie libre de surface et ce plan est parallèle à la surface [70].

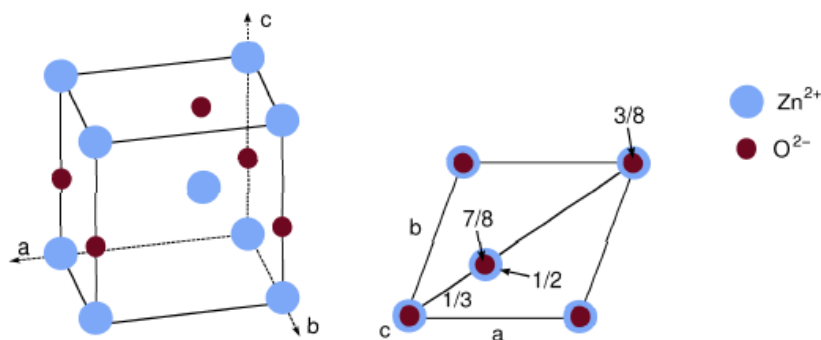


FIG. 4.3 – Représentation de la maille élémentaire du ZnO de type wurtzite

Cependant, une différence apparaît entre les échantillons recuits et non recuits. La cristallisation étant meilleure après recuit, le pic (002) est plus prononcé et présente une largeur à mi-hauteur plus faible (Fig. 4.2). Or d'après Lin et Huang, la taille des grains est liée à la largeur à mi-hauteur du pic (002) [71]. Plus la largeur est grande, plus la taille des grains est petite. Par

conséquent, le recuit aura eu pour effet de diminuer la taille des grains.

Il est possible de remonter aux paramètres de la maille définis pour la structure wurtzite par  $a = b = \frac{8}{3}c$ ,  $\alpha = 120^\circ$  et  $\beta = \gamma = 90^\circ$ , en utilisant les distances réticulaires  $d_{hkl}$  pour la structure hexagonale :

$$d_{hkl} = \frac{1}{\sqrt{\frac{4}{3a^2}(h^2 + k^2 + hk) + \frac{l^2}{c^2}}} \quad (4.1)$$

Ces distances sont liées aux angles de Bragg (angles  $2\theta$  figurant dans les spectres de diffraction X) par :

$$\sin \Theta = \frac{n\lambda}{2d_{hkl}} \quad (4.2)$$

permettant ainsi de déterminer les paramètres de maille de la structure considérée. Dans l'équation (4.2),  $n$  représente l'ordre d'interférence des plans cristallins. Si  $2\theta_{mes}$  correspond à la mesure du pic d'ordre d'interférence  $n = 1$ , le pic d'ordre d'interférence  $n = 2$  sera alors mesuré à la position  $2 \times 2\theta_{mes}$ . La littérature indique que le pic mesuré à  $2\theta_{mes} \simeq 35^\circ$  est bien celui correspondant à l'ordre d'interférence  $n = 1$  [55]. Les paramètres de maille obtenus montrent que ces derniers ne sont pas affectés par le recuit (Tab. 4.1).

| Échantillons | $\Theta_{[0,0,2]} (^\circ)$ | Paramètre a (Å) | Paramètre c (Å) |
|--------------|-----------------------------|-----------------|-----------------|
| Non recuit   | 17,2308                     | $2,0 \pm 0,1$   | $5,2 \pm 0,1$   |
| Recuit       | 17,2800                     | $1,9 \pm 0,1$   | $5,2 \pm 0,1$   |

TAB. 4.1 – Paramètres de maille du ZnO avant et après recuit.

### 4.1.3 Caractérisation des couches minces de ZnO par spectroscopie *m*-lines

Les couches minces de ZnO ont été analysées par spectroscopie *m*-lines afin de caractériser leur indice de réfraction et de déceler un éventuel changement des propriétés optiques entre les échantillons recuits et les échantillons non recuits.

La figure 4.4 montre un spectre *m*-lines d'une couche mince de ZnO recuite à  $650^\circ C$  pendant deux minutes. Les mesures ont été réalisées le long d'une diagonale des échantillons et espacées de  $5\text{ mm}$ . La figure 4.5 présente une synthèse des résultats obtenus en spectroscopie *m*-lines pour les divers échantillons analysés. Plusieurs observations peuvent être faites à partir de ces résultats. En premier lieu, il est bien visible que le dépôt n'est pas homogène en épaisseur. En effet, une décroissance de l'épaisseur est observée pour les deux types d'échantillons (recuit et non recuit) lorsqu'on s'éloigne du centre de la cible. Cette variation d'épaisseur est due à la disposition des échantillons lors du dépôt. En outre, une légère augmentation de l'épaisseur (inférieure à 10%) a été observée après recuit (Fig. 4.5a).

Par contre, le traitement thermique affecte de façon significative l'indice de réfraction. En effet, l'indice optique de l'échantillon non recuit augmente quand l'épaisseur diminue pour tendre

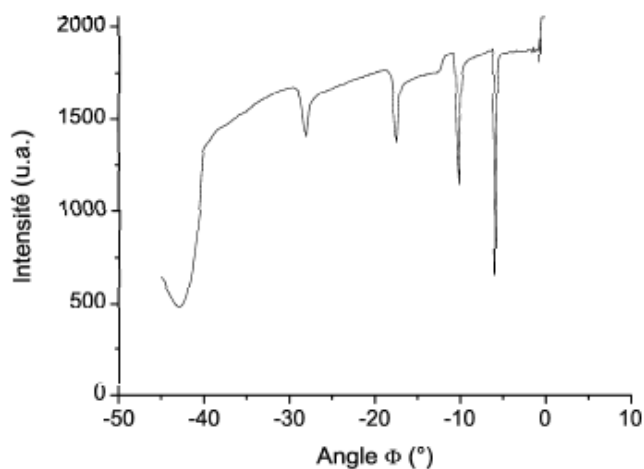
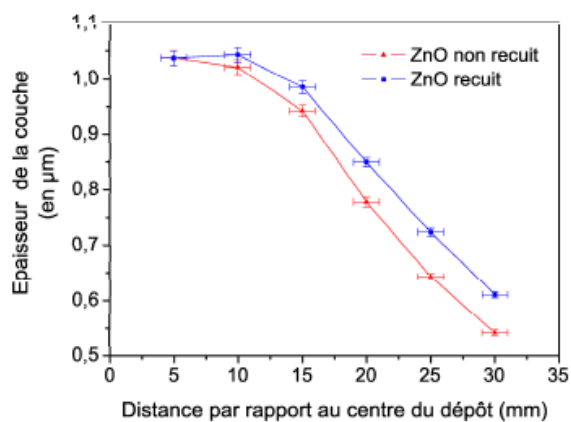
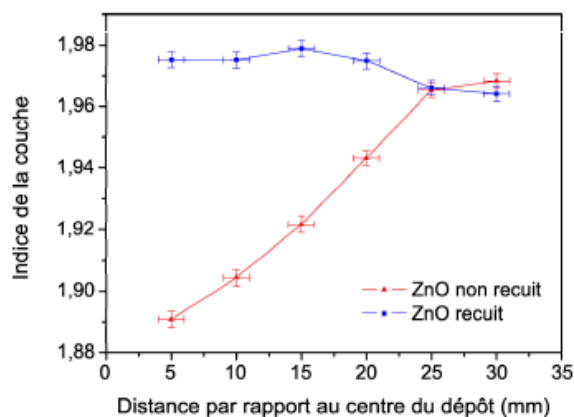


FIG. 4.4 – Spectre *m*-lines réalisé sur une couche mince de ZnO recuite



(a)



(b)

FIG. 4.5 – Variation de l'épaisseur (a) et de l'indice de réfraction (b) du ZnO par rapport au centre du dépôt pour les échantillons recuits et non recuits.

vers une valeur voisine de celle de l'échantillon recuit (Fig. 4.5b). Ce dernier garde quant à lui une valeur d'indice relativement constante. Rappelons que le recuit a pour effet de rendre plus homogène l'orientation cristalline du dépôt et d'augmenter la taille des grains. D'un point de vue optique, l'échantillon recuit est effectivement homogène, en revanche l'échantillon non recuit a des valeurs d'indice proches de celles des échantillons recuits uniquement quand l'épaisseur est inférieure à 600 nm.

Finalement, il ne faut pas oublier que ces couches seront à terme exploitées pour leur propriétés conductrices, aussi leur résistivité a été mesurée avant et après recuit. Une forte augmentation de 40  $\Omega$  à 15 M $\Omega$  a été observée après le recuit, indiquant que l'aluminium présent dans les couches a probablement été oxydé sous forme de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et n'intervient donc plus dans le dopage des couches de ZnO. La priorité du travail ayant été donnée à la validation de la méthode d'analyse des propriétés optiques d'une structure à trois couches, l'optimisation de la résistivité de l'électrode inférieure n'a pas fait l'objet d'étude dans nos travaux. Ce point reste cependant à ne pas négliger pour les analyses et mesures futures, des pistes pour l'utilisation d'autres types d'électrodes devraient être également exploitées.

## 4.2 Élaboration et analyse des guides bicouches

Après avoir réalisé une première étude sur la couche inférieure en ZnO, un dépôt de PZT a été effectué pour réaliser une structure ZnO/PZT. Dans un premier temps, une analyse structurale en diffraction X a permis d'établir l'organisation cristalline des différentes couches. En second lieu, la mesure *m*-lines a été appliquée aux échantillons réalisés.

### 4.2.1 Réalisation et caractérisation structurale

Le protocole de réalisation d'un guide ZnO/PZT reprend les phases établies pour l'élaboration des monocouches de ZnO (cf. 4.1.1) et de PZT (cf. 1.1.2). Les couches de ZnO sont déposées sur un substrat de verre Corning et subissent un traitement thermique à 650 °C avec un refroidissement lent. Elles sont ensuite exploitées comme substrat d'accueil pour une couche de PZT (40/60) ayant un excès de plomb de 40%. Cette dernière est déposée par centrifugation, cristallisée à 650 °C puis subit un refroidissement lent.

Dans un premier temps, cinq échantillons bicouches ont été fabriqués. Trois d'entre eux ont été réalisés avec un temps de dépôt de 10 minutes pour le ZnO et deux autres ont été réalisés avec un temps de dépôt de 11 minutes pour le ZnO. Sur ces derniers échantillons, le dépôt d'une couche de PZT a été effectué avec une vitesse de tournette de 1000 tours par minute (tours/min). Pour les autres échantillons, la vitesse de centrifugation était de 2000 tours/min. Les différents échantillons ainsi qu'un dépôt témoin T de PZT sur verre Corning sont indexés dans le tableau 4.2.

| Échantillons | Temps dépôt pour le ZnO<br>(min) | Vitesse de tournette pour<br>le PZT (rpm) |
|--------------|----------------------------------|-------------------------------------------|
| A            | 10                               | 2000                                      |
| B            | 10                               | 2000                                      |
| C            | 10                               | 2000                                      |
| D            | 11                               | 1000                                      |
| E            | 11                               | 1000                                      |
| T            | 0                                | 1000                                      |

TAB. 4.2 – Indexation des échantillons bicouches.

Afin d'observer un éventuel changement cristallographique sur les couches de PZT, des mesures de diffraction X ont été réalisées (Fig. 4.6). Les spectres des cinq échantillons bicouches réalisés (Fig. 4.6a), montrent la présence de ZnO par un pic très prononcé à la position  $2\theta \simeq 35^\circ$ . Les autres pics sont caractéristiques de la phase pérovskite du PZT. Les deux pics situés à

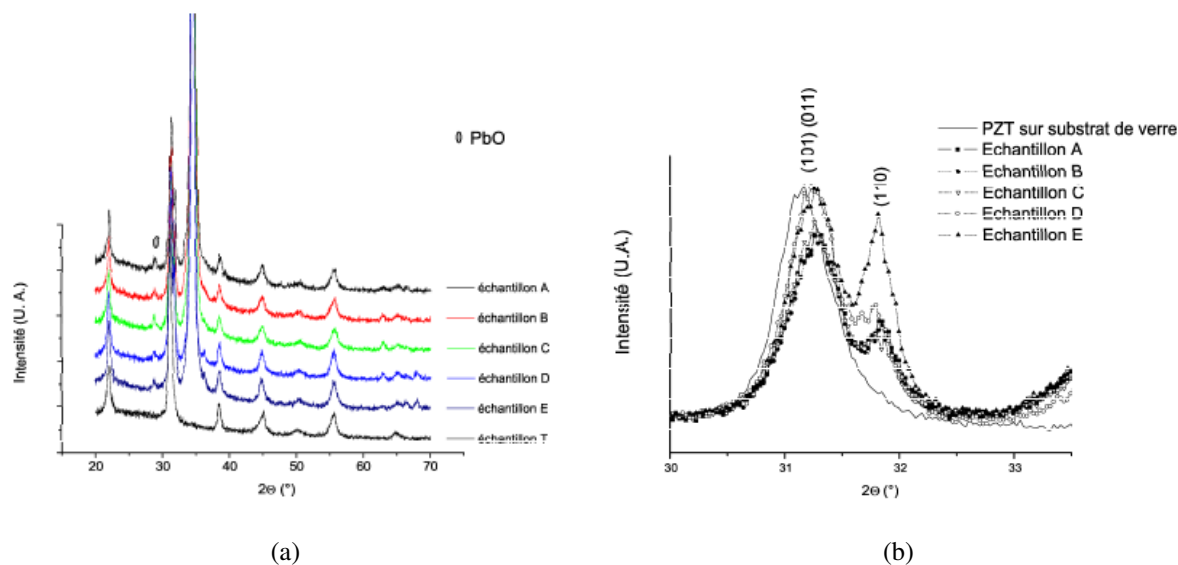


FIG. 4.6 – Spectres de diffraction X réalisés sur les films bicouches (a) et agrandissement sur une partie des spectres afin de montrer le dédoublement des pics de PZT (b).

$2\theta \simeq 31,2^\circ$  et  $2\theta \simeq 31,8^\circ$  (Fig. 4.6b) ont attiré notre attention car le PZT (40/60), déposé sur substrat de verre Corning, est normalement en phase rhomboédrique ( $a=b=c$ ) et ne devrait donc présenter qu'un seul pic de diffraction correspondant aux trois contributions des plans cristallins (110), (101) et (011). Or un dédoublement de pic est observé. Le pic de gauche du spectre de diffraction X (Fig. 4.6b) correspond à la contribution des pics (011) et (101) ( $a=b$ ) et le pic de droite correspond au pic (110). Ce dédoublement traduit la présence de la phase tétragonale du PZT. Le PZT (40/60) semble donc subir un changement de structure cristalline en fonction du substrat d'accueil. Quand il est déposé sur verre Corning, il est en phase rhomboédrique, mais

déposé sur ZnO, il est en phase tétragonale.

D'autre part, on observe pour chacun des échantillons bicouches, la présence d'un pic vers  $2\theta \simeq 28^\circ$  [72] que l'on ne rencontrait pas sur le PZT déposé sur verre (Fig. 4.6a). Ce pic correspond à celui du PbO [73, 72]. La présence de cet élément dans les échantillons bicouches peut s'expliquer par le fait que le plomb ne diffuse pas dans le ZnO comme il avait tendance à le faire sur substrat de verre. En effet, les photographies MEB montrent pour le PZT déposé sur substrat de verre une zone de diffusion du plomb dans le verre (Fig. 4.7a). Cette zone de diffusion n'est pas observée sur les échantillons bicouches (Fig. 4.7b). Le plomb se retrouverait alors sous forme de PbO dans la couche de PZT. Afin de confirmer ce résultat, des mesures sur la quantité de plomb dans les couches minces de PZT ont été réalisées. Ces dernières ont montré que la quantité de plomb dans les couches minces de PZT déposées sur verre variait entre 20% et 30%. Sur les échantillons de PZT déposé sur ZnO, une augmentation de plomb est bien mesurée car cette quantité variait entre 40% et 50%.

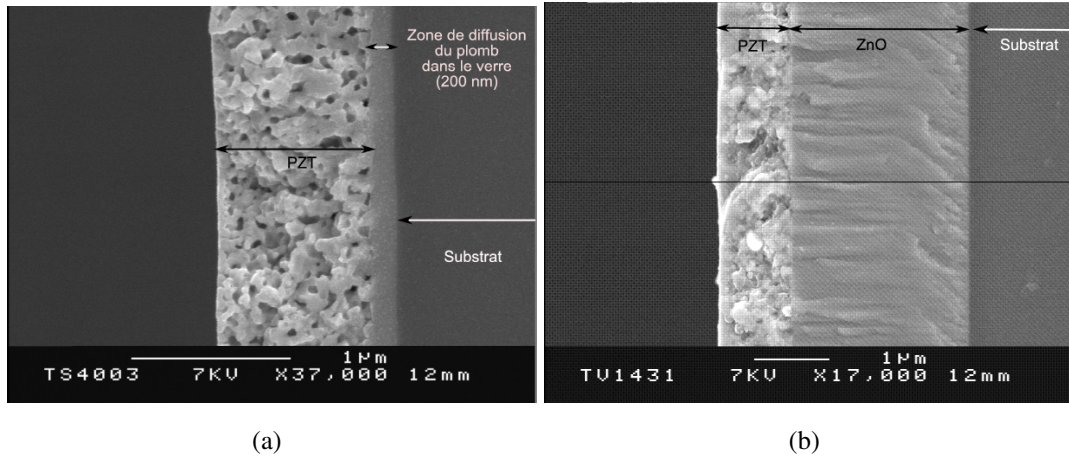


FIG. 4.7 – Photographies MEB des échantillons de PZT sur verre (a) et de ZnO/PZT sur verre (b).

#### 4.2.2 Mesures *m*-lines

Les spectres *m*-lines obtenus sur les structures bicouches ZnO/PZT comportent des pics d'aspects très différents (Fig. 4.8). Les premiers modes mesurés (angles  $\phi > 0^\circ$ ) ont des pics assez larges, ils correspondent aux modes guidés dans la couche supérieure de PZT. En effet, ces pics sont plus larges en raison de la diffusion qui a lieu dans les couches de PZT en phase pérovskite. En revanche, les pics à des angles  $\phi < 0^\circ$ , correspondant aux modes guidés dans les deux couches PZT et ZnO, sont plus fins. Le changement de configuration guidante est donc parfaitement visible en se basant sur la largeur des pics. Cette information visuelle est confirmée par la procédure de test établie dans le programme d'analyse qui localise une rupture dans le spectre au même endroit.

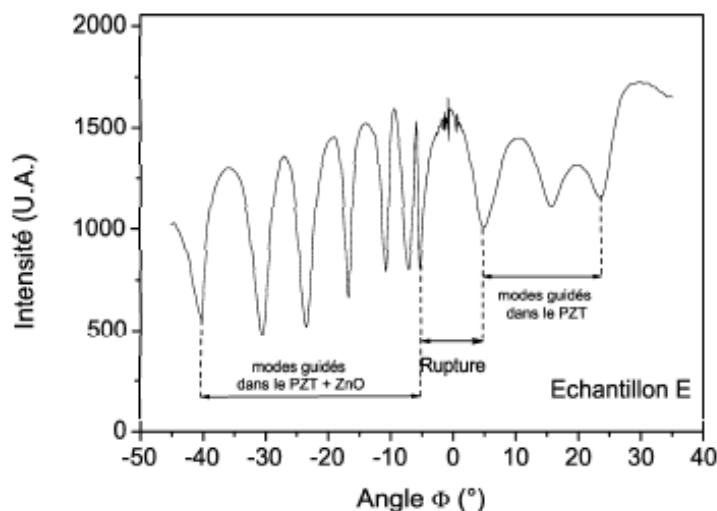


FIG. 4.8 – Spectre  $m$ -lines réalisé sur l'échantillon E.

Lors des mesures sur les échantillons monocouches, le bruit expérimental sur les mesures  $m$ -lines a été évalué à  $0,10^\circ$ . La figure 4.9 permet de mieux apprécier la précision des mesures d'angles synchrones par un agrandissement autour de deux pics d'absorption. Le pic de la figure 4.9a représente un angle synchrone mesuré pour un mode guidé dans la couche de PZT et de ZnO, le bruit est alors inférieur  $0,05^\circ$ . En revanche, le pic de la figure 4.9b est celui d'un angle synchrone correspondant à un mode guidé dans la couche de PZT, le bruit est alors de l'ordre de  $0,10^\circ$ . Dans le chapitre 3, nous avons déterminé de manière statistique l'erreur sur les indices de réfraction et les épaisseurs en fonction du bruit. Or le bruit retenu est le plus important rencontré lors d'une mesure (dans notre cas  $0,10^\circ$ ), l'erreur est alors donnée par le tableau 4.3. Les résultats

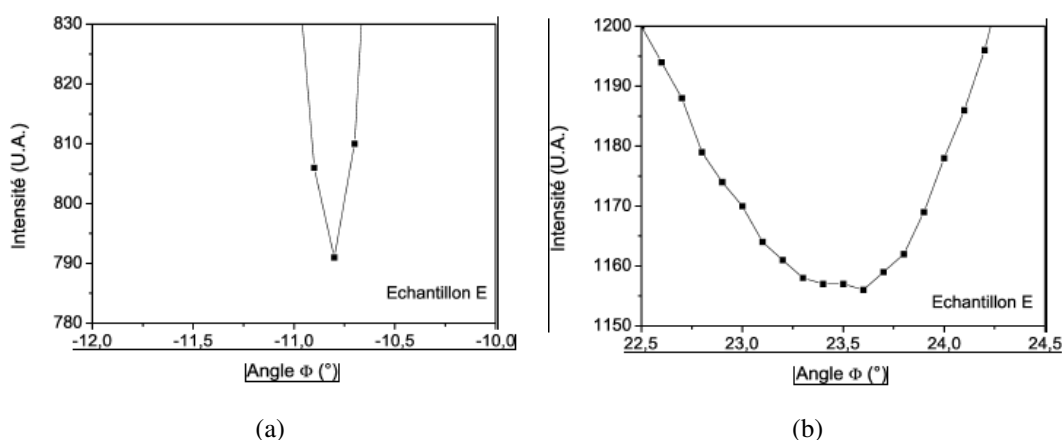


FIG. 4.9 – Agrandissement autour d'un pic  $m$ -lines mesuré pour un mode guidé dans le PZT et le ZnO (a) et mesuré pour un mode guidé dans le PZT seul (b).

sur les paramètres optiques de la couche de PZT sont plus précis d'environ un ordre de grandeur



par rapport à ceux du ZnO.

| Bruits $\Phi^{MAX}$ | $n_1^{err}$ | $d_1^{err}$ (en $\mu\text{m}$ ) | $n_2^{err}$ | $d_2^{err}$ (en $\mu\text{m}$ ) |
|---------------------|-------------|---------------------------------|-------------|---------------------------------|
| $0,10^\circ$        | $3.10^{-3}$ | $1.10^{-2}$                     | $3.10^{-4}$ | $3.10^{-3}$                     |

TAB. 4.3 – Erreur sur les paramètres pour un bruit de  $0,10^\circ$

Du point de vue de l'analyse, certains pics larges pour les modes d'ordre faible (angle  $\phi$  élevé) peuvent présenter des incertitudes supérieures au bruit de  $0,10^\circ$  défini auparavant. Dans la mesure où le spectre expérimental présente un nombre suffisant de modes mesurés pour obtenir la convergence du programme d'analyse, les modes présentant une forte incertitude de mesure peuvent alors être retirés. À titre d'exemple, des mesures  $m$ -lines effectuées sur l'échantillon D (Fig. 4.10) montrent la difficulté de déterminer s'il y a présence d'un mode ou de deux modes pour le mode d'ordre le plus faible observé (angles situés entre  $15 - 20^\circ$  sur la figure 4.10).

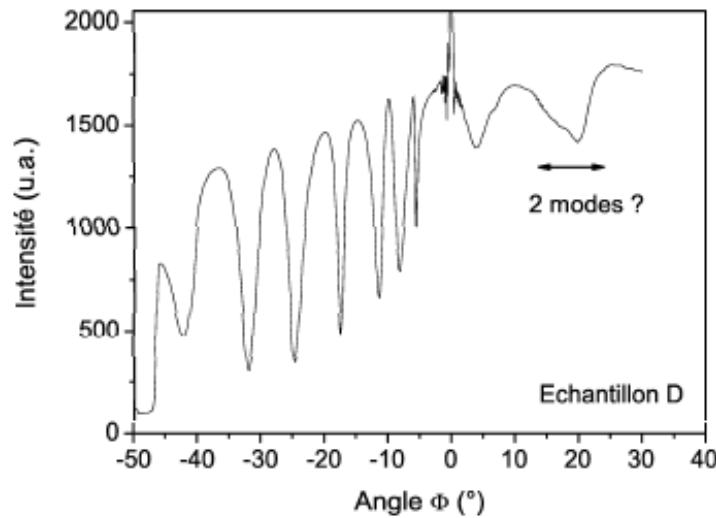


FIG. 4.10 – Spectres  $m$ -lines réalisés sur l'échantillon D ayant un pic large pour le premier mode mesuré.

Plusieurs mesures ont alors été effectuées sur ce même échantillon par un déplacement très léger de l'ensemble prisme/échantillon par rapport au faisceau incident. La figure 4.11 présente les différents spectres obtenus pour ces différents points de couplage, montrant une parfaite superposition pour les pics situés à des angles inférieures à  $10^\circ$ , mais différentes formes pour les pics situés à de plus grands angles. En effectuant l'analyse sur ces mesures sans prendre en compte ces deux derniers pics, les paramètres du guide ont été déterminés et les angles des pics manquants ou mal définis ont pu être déterminés (Tab. 4.4).

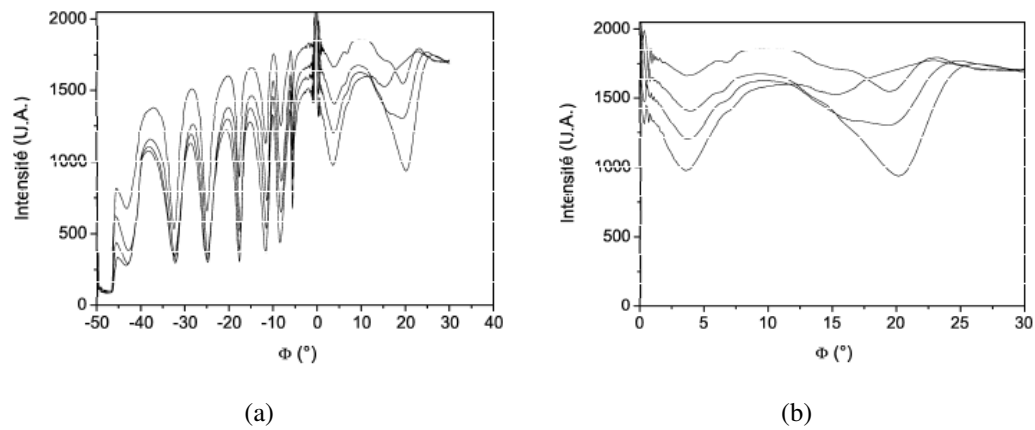


FIG. 4.11 – Spectre *m*-lines réalisé sur l'échantillon D avec différente translation du prisme perpendiculairement au faisceau incident (a) et grossissement sur la zone où les pics sont convolués (b).

| Ordre du mode | Angles mesurés (°) | Angles calculés (°) | Différence (°)     |
|---------------|--------------------|---------------------|--------------------|
| 0             |                    | 29,27               |                    |
| 1             |                    | 23,61               |                    |
| 2             |                    | 14,94               |                    |
| 3             | 3,90               | 3,90                | $< 10^{-2}$        |
| 4             | -5,60              | -5,60               | $< 10^{-2}$        |
| 5             | -8,20              | -8,16               | $4 \times 10^{-2}$ |
| 6             | -11,40             | -11,41              | $1 \times 10^{-2}$ |
| 7             | -17,50             | -17,43              | $7 \times 10^{-2}$ |
| 8             | -24,80             | -24,86              | $6 \times 10^{-2}$ |
| 9             | -32,10             | -32,02              | $8 \times 10^{-2}$ |

TAB. 4.4 – Comparaison des angles calculés et des angles mesurés

Ainsi, les angles synchrones obtenus numériquement pour le guide, déterminé à partir des valeurs expérimentales (Tab. 4.4), révèlent la présence de deux modes d'ordre faible à environ  $\Phi = 15^\circ$  et  $\Phi = 24^\circ$  qui sont difficilement observables expérimentalement. Cependant, l'analyse reste réalisable et exploitable même en écartant les modes d'ordre faible.

Dans un souci de comparaison de spectres, nous avons souhaité effectuer des mesures sur un appareil commercial de spectroscopie *m*-lines (Metricon). Cependant, nous n'avons pas réussi à coupler l'onde lumineuse dans les échantillons avec ce dispositif. En effet, pour coupler dans les échantillons bicouches, nous avons dû augmenter, dans notre dispositif, le serrage de la vis qui permet de réduire la couche d'air entre le prisme et le guide. Or il nous a été impossible d'augmenter suffisamment le serrage sur le dispositif commercial.

De manière comparable à l'étude des échantillons de ZnO, les mesures *m*-lines sur les échantillons bicouches ont été réalisées tous les 5 mm le long d'une diagonale. Les données expérimentales des échantillons A, B, C, D et E ont été traitées à l'aide du programme d'analyse numérique, les résultats sont présentés sur les figures 4.12 et 4.13. Les valeurs des indices de réfraction du ZnO (Fig. 4.12a) sont homogènes pour les cinq échantillons et sont de l'ordre de 1,97. Cette valeur est cohérente avec l'analyse des monocouches minces recuites de ZnO. Les couches de ZnO ont sensiblement le même gradient d'épaisseur (Fig 4.13a) et l'épaisseur maximale (premier point de mesure) est d'environ  $1,15 \mu\text{m}$  pour les échantillons D et E (temps de dépôt de 11 minutes). Pour les autres échantillons, l'épaisseur maximale est de l'ordre de  $1,05 \mu\text{m}$  (temps de dépôt de 10 minutes). Ces mesures correspondent bien à une vitesse de dépôt d'environ  $100 \text{ nm.min}^{-1}$ .

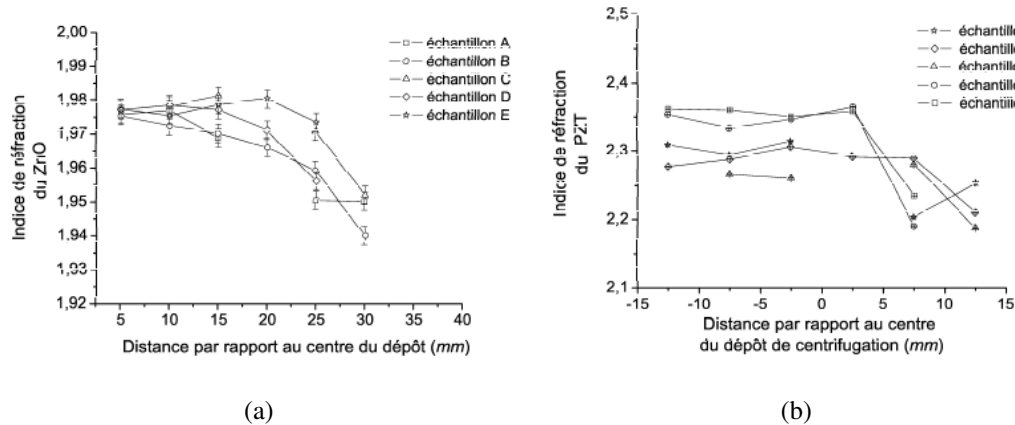


FIG. 4.12 – Variation des indices du ZnO (a) et du PZT (b) pour les différents guides bicouches.

En ce qui concerne l'indice de réfraction du PZT (Fig 4.12b), nous notons une augmentation de l'indice pour des couches déposées sur ZnO par rapport à celui du PZT déposé sur verre Corning (cf. 1.2). En effet, pour les échantillons D et E, l'indice est de l'ordre 2,35 et de 2,30 pour les autres échantillons (A, B et C) alors qu'il est proche de 2,23 pour du PZT déposé sur verre. Cette variation d'indice peut s'expliquer par les deux constatations faites lors de l'analyse structurale. Sur verre, le PZT (40/60) a une phase rhomboédrique (cf. 1.1.2) alors qu'il est en phase tétragonale sur substrat de ZnO (cf. 4.2.1). En outre, l'excès de plomb est plus important dans les couches de

PZT déposées sur ZnO et la présence de la structure PbO dans la couche de PZT a été relevée lors de la caractérisation en diffraction X de guides bicouches (cf. 4.2.1).

L'épaisseur de PZT (Fig 4.13b) pour les échantillons D et E est homogène et de l'ordre de  $1,0 \mu\text{m}$  (vitesse de dépôt de 1000 tours/min). Pour les autres échantillons, cette épaisseur est de l'ordre de  $600 \text{ nm}$  (vitesse de tournette de 2000 tours/min). Aucun gradient d'épaisseur n'est visible, car le PZT a été déposé individuellement par centrifugation sur chacun des échantillons. Les variations d'épaisseur aux points  $x = 7,5 \text{ mm}$  et  $x = 12,5 \text{ mm}$  sont probablement dues à des craquelures au bord de l'échantillon, entraînant également des inhomogénéités sur l'indice de réfraction (Fig. 4.12b).

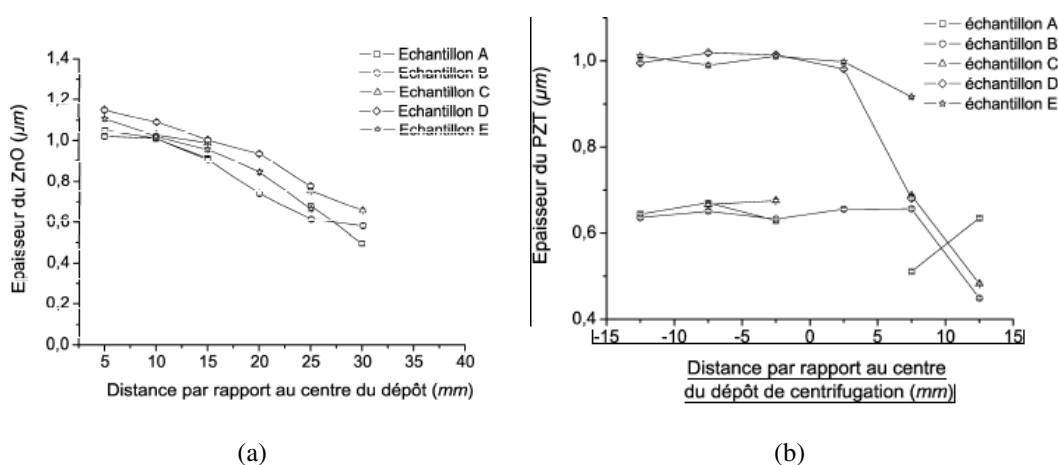


FIG. 4.13 – Variation des épaisseurs du ZnO (a) et du PZT (b) pour les différents guides bicouches.

### 4.3 Réalisation et caractérisation de guides tricouches

Lors de l'étude en sensibilité du programme d'analyse numérique des guides à trois couches, il a été montré l'importance d'avoir un nombre de modes mesuré suffisamment élevé. N'étant pas limité par la dimension des épaisseurs d'un point de vue numérique, l'épaisseur de la couche inférieure en ZnO a été augmentée (cf. 3.2.1). L'épaisseur de PZT quant à elle, n'a pas été modifiée, afin de limiter les phénomènes de diffusion. En effet, plus les épaisseurs sont importantes, plus le bruit sur les angles synchrones est important. Une épaisseur d'environ  $1 \mu\text{m}$  a donc été retenue pour le PZT. L'épaisseur de la troisième couche est de l'ordre d'une centaine de nanomètre, permettant un couplage efficace par prisme.

### 4.3.1 Élaboration et caractérisation structurale des guides

Initialement, une série d'échantillon bicouche a été réalisée de la manière suivante : quatre échantillons de verre Corning ont été disposés sous la cible selon la figure 4.14. Les deux échantillons situés le plus près du centre de dépôt sont appelés F et F' et les deux autres échantillons placés aux extrémités sont appelés G et G'. Ainsi, les échantillons F et F' d'une part et les échantillons G et G' d'autre part, ont le même profil de dépôt. Cependant, l'épaisseur de ZnO est plus importante pour les échantillons F et F' que pour les échantillons G et G'. Les couches de PZT

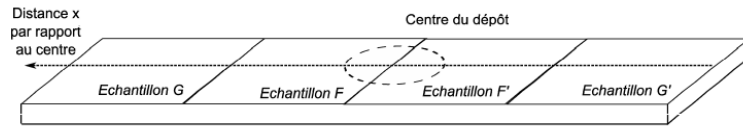


FIG. 4.14 – Emplacement des échantillons sous la cible

sont déposées individuellement par centrifugation sur les quatre échantillons (vitesse de 1000 tours/min). Sur les échantillons F' et G', une deuxième électrode de faible épaisseur est immédiatement déposée par pulvérisation magnétron afin d'obtenir des échantillons tricouches (temps de dépôt d'environ une minute). Ils ne sont pas analysés lors de leur étape en guide bicouche afin de ne pas les détériorer. Par la suite, il sera possible de comparer les épaisseurs et indices des différentes couches des échantillons bicouches (F et G) avec les résultats des deux premières couches des échantillons tricouches (F' et G'). Ceci permet de comparer les résultats fournis par les programmes de résolution des guides à deux couches et à trois couches et de vérifier des éventuelles modifications des guides lors des différentes étapes de leur réalisation.

Une analyse en diffraction X a été réalisée sur les quatre échantillons F, G, F' et G'. Les spectres de diffraction X sont présentés sur la figure 4.15a. Sur l'échantillon à trois couches F', la présence d'un faible pic (103) du ZnO a été observé à  $2\theta \simeq 63^\circ$ . Ce faible pic est dû à une cristallisation différente de la troisième couche en ZnO de faible épaisseur. En effet, il existe lors du dépôt des couches de ZnO par pulvérisation, une compétition entre différentes croissances cristallines possibles. Cette compétition prend fin quand la croissance cristalline se fait suivant un seul axe, généralement quand l'épaisseur de ZnO est supérieure à  $500\text{nm}$  [71]. Knuyt et al. ont montré que parmi différents plans à faibles surfaces d'énergie, la croissance se fera préférentiellement sur le plan ayant la plus faible inclinaison par rapport à la surface du dépôt [74, 75]. C'est probablement, pour cette raison que parmi les différentes croissances cristallines possibles du ZnO, seule celle suivant l'axe  $c$  est majoritaire après une certaine épaisseur [76]. En revanche pour la couche supérieure de faible épaisseur de ZnO (i.e. inférieure à  $500\text{nm}$ ), la cristallisation ne sera pas homogène. Nous avons alors réalisé des mesures de diffraction X avec un pas de résolution plus fin autour du pic (103) pour chaque échantillon F, G, F' et G' (Fig. 4.15b). Cette fois ci, il est également possible de voir la présence du faible pic (103) pour l'échantillon G' qui était peu visible sur la figure 4.15a. Ainsi, seuls les échantillons à trois couches (F' et G') présentent le pic (103),

confirmant une croissance cristalline de la troisième couche différente de la première couche. Cela pourra avoir également une influence sur l'indice optique des deux couches de ZnO.

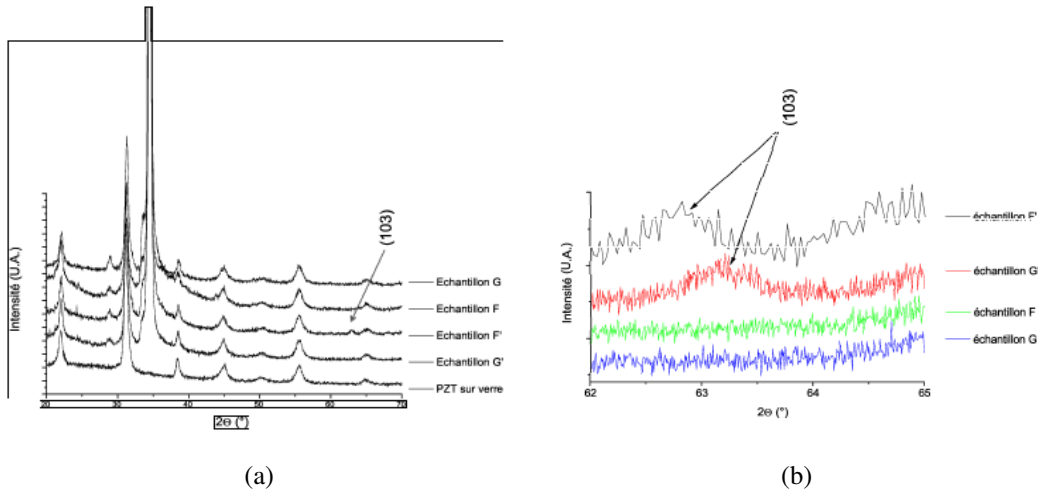


FIG. 4.15 – Diffraction X sur les échantillons F, G, F' et G' (a) et mesures avec un pas plus fin autour du pic (103) (b).

### 4.3.2 Analyse optique des guides

Les quatre échantillons F, F', G et G' ont été analysés à l'aide du dispositif de spectroscopie *m*-lines tous les 4 mm le long d'une ligne parallèle à une arête et passant par le centre du substrat. Sur la figure 4.16 est présenté un spectre *m*-lines pour l'échantillon G' où les deux ruptures dé-

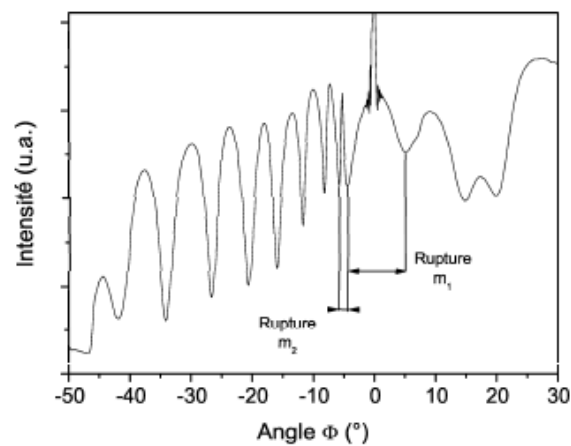


FIG. 4.16 – Spectre *m*-lines d'une structure à trois couches.

terminées par le programme d'analyse sont représentées. Les angles synchrones obtenus ont été exploités comme données d'entrée du programme d'analyse de la structure à trois couches. Étant

donné l'arrangement des échantillons lors du dépôt de la couche inférieure de ZnO, les résultats peuvent être présentés sous forme d'un graphique par rapport au centre de ce dépôt (Fig. 4.17). Les variations des paramètres entre les échantillons sont délimitées par un trait vertical, cependant, il est rappelé que le dépôt du PZT est effectuée individuellement par centrifugation sur chaque échantillon. Sur la figure 4.17, une épaisseur décroissante de ZnO par rapport au centre du dépôt est de nouveau mesurée. L'épaisseur est légèrement plus élevée dans le cas des échantillons tricouches. Cette différence peut s'expliquer par un léger décalage des échantillons par rapport au centre de la cible. Les couches de PZT quant à elles présentent bien les mêmes épaisseurs que celles déterminées pour les échantillons D et E dont la vitesse de tournette était identique (1000 tours/min). Les épaisseurs du PZT sont plus élevées sur le bord de l'échantillon bicouche G et également dans le cas de l'échantillon tricouche G'. D'autre part, pour des épaisseurs plus élevées de ZnO, on observe des épaisseurs plus faibles de PZT. La troisième couche montre un léger gradient d'épaisseur sur l'échantillon G' (Fig. 4.17). Ce dernier n'a pas lieu dans le même sens que celui de la couche inférieure car les échantillons n'ont probablement pas été placés dans le même sens sous la cible. Pour confirmer ces résultats, des mesures de microscopie à balayages ont été réalisées sur

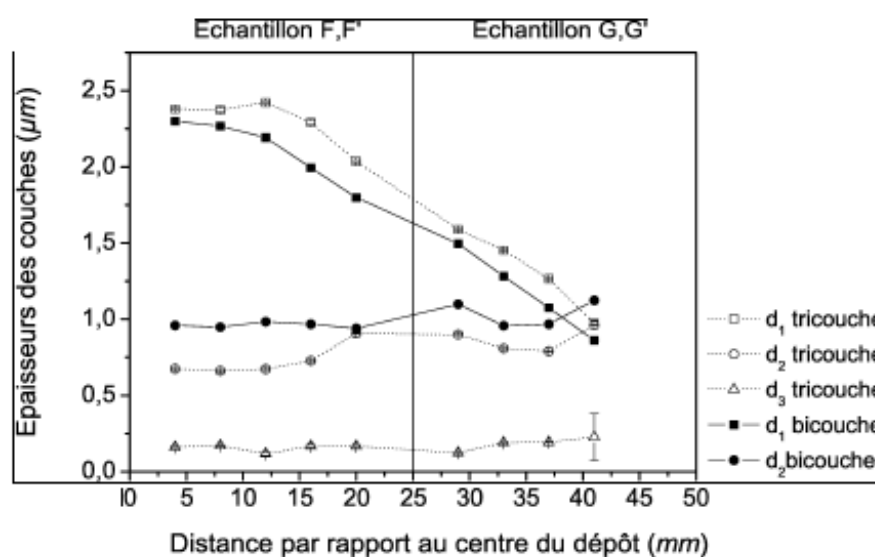


FIG. 4.17 – Variation des épaisseurs des différentes couches pour les échantillons F, F', G et G'.

les échantillons F, G, F' et G'. Ces dernières n'ont pas pu être effectuées au même point de mesure que la spectroscopie *m*-lines. Pour chaque échantillon, quatre mesures d'épaisseur ont été réalisées le long d'un axe passant par le centre de l'échantillon, les résultats pour les échantillons bicouches sont présentés dans le tableau 4.5. Les épaisseurs déterminées par le MEB sont du même ordre de grandeur que celles déterminées par le programme de résolution analytique.

Cependant, il n'a pas été possible de mesurer l'épaisseur de la troisième couche par microscopie à balayage. Soit le contraste n'est pas assez prononcé pour permettre une distinction

| Échantillons | Épaisseur ZnO ( $\mu m$ ) | Épaisseur PZT ( $\mu m$ ) |
|--------------|---------------------------|---------------------------|
| F            | 2,46                      | 0,88                      |
|              | 2,36                      | 0,95                      |
|              | 2,16                      | 0,97                      |
|              | 1,83                      | 0,92                      |
| G            | 1,57                      | 0,98                      |
|              | 1,32                      | 0,98                      |
|              | 0,94                      | 0,99                      |
|              | 0,64                      | 0,98                      |

TAB. 4.5 – Épaisseur des échantillons bicouches F et G déterminées par la microscopie à balayages.

entre les deux couches (couche centrale et couche supérieure), soit la couche supérieure s’est décrochée lors du clivage. Sur une des rares photographies MEB où la troisième couche est bien visible (Fig. 4.18), l’épaisseur déterminée est du même ordre de grandeur que celles obtenues lors de la caractérisation optique (i.e. une centaine de nanomètre).

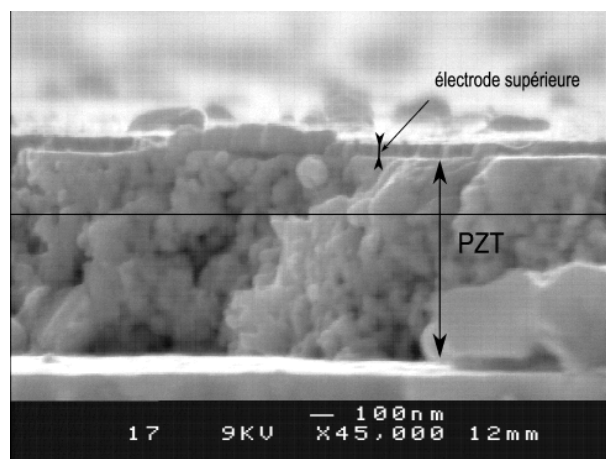


FIG. 4.18 – Photographies MEB de l’échantillon F’.

Les mesures d’indice montrent de nouveau une bonne homogénéité de la couche inférieure de ZnO (Fig. 4.19), car ils restent constants et sont environ égaux à 1,97. L’indice du PZT, quant à lui, varie légèrement le long de l’axe de mesure, ces variations peuvent traduire éventuellement une présence inhomogène de PbO. D’autre part, le PZT semble être moins homogène quand il est déposé sur du ZnO de faible épaisseur, car l’indice du PZT des échantillons G et G’ varie plus sensiblement que celui des échantillons F et F’. D’autre part, un indice homogène de la couche supérieure de ZnO est observée. La valeur à ( $x = 35\text{ mm}$ ) pourrait s’expliquer par une différence



de croissance cristalline dans cette zone (cf. 4.1.3). Dans le chapitre 3, nous avons obtenu des

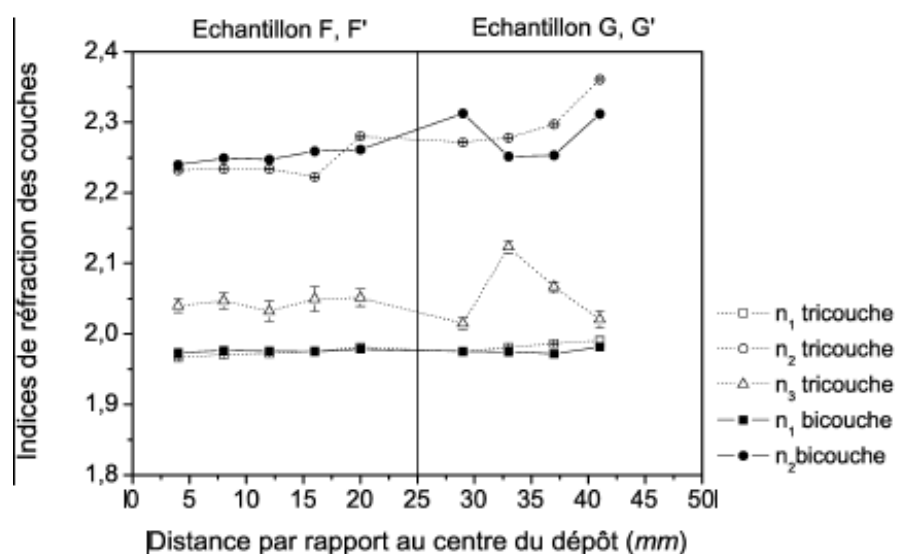


FIG. 4.19 – Variation des indices de réfraction des différentes couches pour les échantillons F, F', G et G'.

erreurs qui sont assez élevées. Afin de mieux définir l'incertitude sur les indices de réfraction et les épaisseurs des guides à trois couches calculés, nous avons réalisé une étude statistique. À chaque point de mesure, les paramètres des guides calculés ont servi de données d'entrée. Ces dernières ont été bruitées par la valeur maximale de  $0,1^\circ$  et cent calculs ont été réalisés. Étant donnée que l'erreur pour un guide suit une loi normale, l'erreur a alors été définie comme étant égale à trois fois la valeur de l'écart type. Les résultats sont résumés dans les tableaux 4.6 et 4.7.

| Distance par rapport au centre du dépôt (mm) | $d_1$ ( $\mu m$ ) | $\Delta d_1$ ( $\mu m$ ) | $d_2$ ( $\mu m$ ) | $\Delta d_2$ ( $\mu m$ ) | $d_3$ ( $\mu m$ ) | $\Delta d_3$ ( $\mu m$ ) |
|----------------------------------------------|-------------------|--------------------------|-------------------|--------------------------|-------------------|--------------------------|
| 4                                            | 2,379             | $7.10^{-3}$              | 0,676             | $5.10^{-3}$              | 0,161             | $8.10^{-3}$              |
| 8                                            | 2,38              | $1.10^{-2}$              | 0,662             | $4.10^{-3}$              | 0,170             | $6.10^{-3}$              |
| 12                                           | 2,423             | $9.10^{-3}$              | 0,673             | $6.10^{-3}$              | 0,12              | $1.10^{-2}$              |
| 16                                           | 2,29              | $1.10^{-2}$              | 0,728             | $4.10^{-3}$              | 0,168             | $8.10^{-3}$              |
| 20                                           | 2,037             | $8.10^{-3}$              | 0,908             | $4.10^{-3}$              | 0,168             | $7.10^{-3}$              |
| 29                                           | 1,589             | $4.10^{-3}$              | 0,901             | $5.10^{-3}$              | 0,123             | $4.10^{-3}$              |
| 33                                           | 1,453             | $3.10^{-3}$              | 0,809             | $6.10^{-3}$              | 0,190             | $4.10^{-3}$              |
| 37                                           | 1,266             | $3.10^{-3}$              | 0,790             | $2.10^{-3}$              | 0,193             | $2.10^{-3}$              |
| 41                                           | 0,97              | $2.10^{-2}$              | 0,962             | $2.10^{-3}$              | 0,2               | $2.10^{-1}$              |

TAB. 4.6 – Erreurs sur les épaisseurs des guides tricouches obtenues statistiquement.

| Distance par rapport au centre du dépôt (mm) | $n_1$  | $\Delta n_1$ | $n_2$  | $\Delta n_2$ | $n_3$ | $\Delta n_3$ |
|----------------------------------------------|--------|--------------|--------|--------------|-------|--------------|
| 4                                            | 1,9667 | $6.10^{-4}$  | 2,2324 | $5.10^{-4}$  | 2,04  | $1.10^{-2}$  |
| 8                                            | 1,9708 | $5.10^{-4}$  | 2,2341 | $5.10^{-4}$  | 2,05  | $1.10^{-2}$  |
| 12                                           | 1,9725 | $8.10^{-4}$  | 2,2341 | $7.10^{-4}$  | 2,03  | $1.10^{-2}$  |
| 16                                           | 1,9759 | $5.10^{-4}$  | 2,2227 | $5.10^{-4}$  | 2,05  | $2.10^{-2}$  |
| 20                                           | 1,9811 | $5.10^{-4}$  | 2,2805 | $9.10^{-4}$  | 2,05  | $1.10^{-2}$  |
| 29                                           | 1,9749 | $5.10^{-4}$  | 2,2718 | $5.10^{-4}$  | 2,015 | $8.10^{-3}$  |
| 33                                           | 1,981  | $9.10^{-4}$  | 2,2784 | $4.10^{-4}$  | 2,123 | $8.10^{-3}$  |
| 37                                           | 1,9864 | $7.10^{-4}$  | 2,2973 | $4.10^{-4}$  | 2,067 | $7.10^{-3}$  |
| 41                                           | 1,991  | $5.10^{-3}$  | 2,3610 | $5.10^{-4}$  | 2,02  | $1.10^{-2}$  |

TAB. 4.7 – Erreurs sur les indices de réfraction des guides tricouches obtenues statistiquement.

Les échantillons F' et G' n'ayant pas été mesurés lors de l'étape bicouche pour éviter de les détériorer, la comparaison F/F' et G/G' reste délicate. L'échantillon bicouche E étudié au chapitre précédent a été exploité afin de permettre une réelle comparaison des indices et épaisseurs déterminés par la méthode d'analyse numérique des guides bicouches et tricouches. Une couche de ZnO de faible épaisseur a été déposée sur l'échantillon E et une analyse  $m$ -lines a été réalisée au point de référence  $x = 5\text{ mm}$  où le nombre de modes mesuré est le plus élevé. Le tableau 4.8 présente la synthèse des résultats obtenus en configuration bicouche et tricouche.

| Échantillons | $n_1$       | $d_1 (\mu\text{m})$ | $n_2$       | $d_2 (\mu\text{m})$ | $n_3$       | $d_3 (\mu\text{m})$ |
|--------------|-------------|---------------------|-------------|---------------------|-------------|---------------------|
| Bicouche     | 1,977       | 1,11                | 2,3601      | 1,020               |             |                     |
| Incertitude  | $3.10^{-3}$ | $1.10^{-2}$         | $3.10^{-4}$ | $3.10^{-3}$         |             |                     |
| Tricouche    | 1,9794      | 1,087               | 2,3681      | 0,956               | 1,99        | 0,135               |
| Incertitude  | $8.10^{-4}$ | $4.10^{-3}$         | $3.10^{-4}$ | $2.10^{-3}$         | $1.10^{-2}$ | $4.10^{-3}$         |

TAB. 4.8 – Comparaisons des indices de réfraction et des épaisseurs d'une structure analysée initialement avec le programme bicouche puis analysée avec le programme d'analyse tricouche après l'ajout d'une deuxième électrode.

L'erreur de mesures, sur un échantillon de PZT en phase pérovskite, avait été défini à  $8.10^{-3}$  pour l'indice et  $30\mu\text{m}$  pour l'épaisseur [9], les mesures peuvent être considérées similaires.

## 4.4 Bilan

La réalisation d'un guide d'onde multicouche composite passe par différentes étapes intermédiaires : après avoir retenu pour électrode le ZnO dopé à l'aluminium, il a été nécessaire de vérifier que les processus de réalisation des différentes couches n'altéraient pas la qualité optique de ces dernières. Le premier point a été de vérifier la tenue en température des couches de ZnO par l'analyse de leurs propriétés électriques et optiques pré et post traitement thermique. Le recuit montre une amélioration des propriétés optiques au détriment des propriétés électriques. Par la suite, des échantillons à deux couches ont été élaborés, à partir des monocouches de ZnO recuites, en déposant par centrifugation du PZT. Les études réalisées sur ces échantillons ont permis de montrer que la méthode d'analyse de guide à deux couches développée dans ces travaux et par ailleurs reportée dans la littérature, menait à des résultats encourageants pour l'analyse de guide à trois couches. Nous avons en outre pu démontrer une modification de structure de la couche de PZT liée à la couche tampon que constituait l'électrode de ZnO. Enfin, le dépôt d'une fine couche de ZnO sur les échantillons a pu être effectuée et là encore, la méthode d'analyse développée dans ces travaux a permis de déterminer les indices de réfraction et les épaisseurs des différentes couches du guide composite.

## CONCLUSION

---

# Conclusion

L'objectif de mes travaux de thèse a été de développer une méthode d'analyse numérique permettant de relier les résultats expérimentaux, issus de mesures par spectroscopie  $m$ -lines d'un guide d'onde composite à trois couches, aux indices de réfraction et aux épaisseurs de chaque couche. À notre connaissance, la littérature ne fait pas état d'une telle technique de caractérisation des guides d'onde composites. D'autre part, il s'est avéré intéressant d'étudier préalablement une structure à deux couches, qui, quant à elle, a déjà été sujet à des recherches. Cette dernière permet notamment de réduire les difficultés de mise en place du formalisme analytique.

La démarche de mes travaux a été la suivante : détermination des équations de dispersion de chacune des propagations envisageables et mise en place du formalisme analytique, étude statistique sur un grand nombre de guides simulés afin d'éprouver les méthodes d'analyse, élaboration et caractérisation de guides à partir des méthodes de résolution ainsi établies. Ce synoptique a été adopté pour l'étude des structures bicouches et tricouches.

La structure finale est constituée d'un dépôt de trois couches tel que «gaine ( $n_{g1}$ )/couche guidante ( $n_{cg}$ )/gaine ( $n_{g2}$ )». Ainsi, étant donné le rapport des indices ( $n_{cg} > n_{g1}$ ,  $n_{g2} > n_{\text{substrat}}$ ,  $n_{\text{superstrat}}$ ), il existe quatre propagations possibles en fonction du rapport des indices des gaines optiques. Une équation de dispersion générale a été établie et les quatre équations de dispersion s'en déduisent facilement. Pour la structure à deux couches définie par le dépôt «gaine ( $n_{g1}$ )/couche guidante ( $n_{cg}$ )» telle que ( $n_{cg} > n_{g1}$ ), deux équations de dispersion définissent les propagations dans ce guide. Afin de les déterminer il suffit de faire tendre l'épaisseur de la gaine supérieure de la structure à trois couches vers zéro. Les deux équations bicouches ainsi définies à partir de la structure tricouche sont en accord avec la littérature. Ce résultat laisse présager la véracité des équations établies pour la structure à trois couches. Ensuite de la détermination des équations de dispersion a suivi la mise en place du formalisme analytique. Le choix de l'algorithme de Newton-Raphson pour résoudre ces équations fait suite aux bons résultats obtenus lors de son utilisation pour les systèmes monocouches. En revanche, la conception des codes de programme s'est avérée être une des parties les plus fastidieuses de mes travaux de recherches. En effet, il est important de noter que la convergence de l'algorithme était loin d'être acquise et la conception d'une procédure permettant la détermination de solutions a été indispensable. Cette procédure consiste à borner les indices à partir des indices effectifs correspondant aux ruptures et les épaisseurs par des valeurs obtenues empiriquement. Une fois les programmes établis, une étude a été menée afin d'évaluer la précision sur les indices de réfraction et les épaisseurs calculés. Étant donné la complexité des équations et

de leurs dérivées, une approche statistique a été retenue. Pour les guides à deux couches, les indices de réfraction et les épaisseurs ont été choisis dans une gamme correspondant à des couches réalisables expérimentalement au laboratoire. En revanche, pour les guides tricouches, les indices et épaisseurs ont été étendus à une étude plus large étant donné l'aspect novateur de ces recherches, ainsi rendant la méthode d'analyse plus générale et également applicable à d'autres structures. Un programme annexe, appelé calcul direct, permet d'établir les angles synchrones d'un guide à partir des indices de réfraction et des épaisseurs des différentes couches constituant le guide. Il est alors facile, à partir des guides simulés, d'obtenir des données d'entrée pour tester les méthodes de résolution. Dans cet objectif, ces données ont été bruitées par de valeurs typiquement rencontrées expérimentalement et l'algorithme d'analyse a été appliqué. Ainsi pour les guides bicouches, les erreurs pour les indices et épaisseurs ont été obtenues à partir d'une étude sur 10 000 guides simulés et pour cinq bruits différents. L'analyse des erreurs a montré une répartition suivant une loi de type lognormal. Une étude statistique a permis de déterminer une erreur inférieure à  $10^{-3}$  pour l'indice et de l'ordre de  $10\text{ nm}$  sur l'épaisseur dans le cas des guides bicouches. En ce qui concerne l'étude sur les guides à trois couches, les erreurs sont du même ordre de grandeur que dans le cas précédent. Cependant, il arrive que ces erreurs deviennent plus importantes. Nous avons alors démontré qu'elles pouvaient être diminuées en augmentant le nombre de données d'entrée pour la résolution (nombre d'angles synchrones). Le désavantage est d'engendrer une augmentation du temps de calcul.

L'algorithme d'analyse établi, il est possible d'envisager l'étude expérimentale de guides à deux et à trois couches. Des guides d'une épaisseur minimale de la couche inférieure en ZnO de  $1\text{ }\mu\text{m}$  et d'une épaisseur optimum de PZT de l'ordre du micromètre ont été retenus en vue d'optimiser le nombre d'angle synchrones disponibles et par conséquent la résolution de la méthode d'analyse. Dans le cas de la structure tricouches, l'épaisseur de la couche supérieure en ZnO était de l'ordre de la centaine de nanomètres afin de permettre un couplage par champ évanescent.

Jusqu'à présent, au laboratoire, seuls des guides monocouches à partir de PZT, ont été élaborés. Le choix de l'oxyde de zinc (ZnO) dopé à l'aluminium comme matériau constitutif d'une gaine optique/électrode, a été fait de part ses propriétés électriques et optiques qui correspondent à celles requises pour nos guides. Ce matériau a été déposé par pulvérisation magnétron en collaboration avec le laboratoire LAMP de l'Université de Nantes. Une étude préliminaire sur des monocouches de ZnO, déposées sur substrat Corning, a été réalisée pour étudier l'influence du traitement thermique imposé par la cristallisation des couches de PZT en phase pérovskite. Les spectres de diffraction X et les mesures *m*-lines réalisés sur ces couches indiquent une homogénéisation de la structure cristalline du matériau, au détriment de la conductivité. Les recherches étant surtout orientées sur la méthode d'analyse des guides composites à trois couches, l'optimisation des paramètres électriques n'ont pas fait l'objet d'étude. Cependant ce point n'est pas à négliger pour les mesures futures. Par dépôt d'une couche de PZT par centrifugation sur les échantillons monocouches de ZnO, une structure bicouche est obtenue. L'étude structurale a révélé deux points importants. Tout d'abord, le PZT (36/64), avec un excès de plomb de 40%, déposé sur ZnO a une structure tétragonale, contrairement au PZT déposé sur verre Corning qui est de structure rhombo-

édrique. La proximité de la composition du PZT (36/64) par rapport à la frontière morphotropique des phases (Fig. 1.10) et l'influence sur la cristallisation provenant du substrat (amorphe dans le cas du verre et cristalline dans le cas du ZnO) est probablement à l'origine du changement de structure cristalline de la couche mince de PZT. D'autre part, la quantité de plomb est plus importante et une présence de PbO a été démontrée par diffraction X. En microscopie à balayages, la zone de diffusion du Plomb n'est pas observée dans le ZnO comme elle l'était dans le verre. Les mesures optiques avec les programmes d'analyse bicouche et tricouche confortent ces résultats en montrant un changement de la valeur de l'indice de réfraction. Les mesures sur des échantillons bicouches et tricouches dont les deux premières couches sont élaborées dans les mêmes conditions, montrent une bonne cohérence des valeurs. Pour deux mesures consécutives, réalisées sur un échantillon bicouche et au même point de l'échantillon, après dépôt de la troisième couche, seule une très faible variation des paramètres des deux premières couches est observée.

D'une manière générale, les travaux décrits dans ce manuscrit constituent une étape dans la réalisation d'un composant électro-optique monomode pour les télécommunications à fibre optique. En effet, la méthode d'analyse peut permettre de déterminer les variations d'indice optique d'une couche confinante sous l'effet d'un champ électrique appliqué par l'intermédiaire des électrodes transparentes. L'efficacité des matériaux développée en couches minces pourra donc être évaluée à partir de ces mesures. À titre d'exemple, un matériau de type PZT dont le coefficient électro-optique serait de l'ordre de  $40 \text{ pm.V}^{-1}$  et soumis à une différence de potentiel de  $10 \text{ V}$  verra son indice de réfraction optique modifié de  $0,002$ . Dans le cas du guide tricouche analysé expérimentalement (13 angles synchrones mesurés avec une incertitude sur leur détermination de  $0,1^\circ$ ), l'étude statistique réalisée sur la méthode montre que l'erreur commise sur la détermination de l'indice de la couche confinante est de quelques  $10^{-4}$ . La méthode développée serait donc suffisamment sensible pour détecter les variations d'indice. Elle semble donc appropriée à l'évaluation des coefficients électro-optiques des matériaux développés au laboratoire et peut également être extrapolée à d'autres études en prenant soin d'évaluer l'erreur liée à la méthode sur la structure considérée.

## BIBLIOGRAPHIE

---



# Bibliographie

- [1] P. K. Tien, R. Ulrich, and R. J. Martin. Modes propagating light waves in thin deposited semiconductor films. *Applied Physics Letters*, 14 :291–294, 1969.
- [2] P. K. Tien and R. Ulrich. Theory of prism-film coupler and thin-film light guides. *Journal of Optical Society of America*, 60(10) :1325–1337, 1970.
- [3] R. Ulrich. Theory of the prism-film coupler by plane-wave analysis. *Journal of Optical Society of America*, 60(10) :1337–1350, 1970.
- [4] R. Ulrich and R. Torge. Measurement of thin film parameters with a prism coupler. *Applied Optics*, 12(12) :2901–2908, 1973.
- [5] W. Stutius and W. Streifer. Silicon nitride on silicon for optical waveguides. *Applied Optics*, 16(12) :3218–3222, 1977.
- [6] M. Matyáš, J. Bok, and T. Sikora. Determination of refractive indices and thicknesses of double-film composite waveguides. *Physica Status Solidi (a)*, 126 :533–543, 1991.
- [7] J. Aarnio, P. Kersten, and J. Lauckner. Determination of refractive indices and thicknesses of silica double layer slab waveguides on silicon. *IEE Proc. Optoelectron.*, 142(5) :241–247, 1995.
- [8] E. Auguściuk and M. Roszko. Investigation of organic materials by generalized m-line spectroscopy method. *Proceedings of SPIE*, 5451 :495–502, 2004.
- [9] J. Cardin. *Elaboration et caractérisation de couches minces ferroélectriques pour des applications optiques*. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2004.
- [10] F. Jona and G. Shirane. *Ferroelectric crystals*. Pergamon Press, 1962.
- [11] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod, 1998. ISBN : 2-10-003267-4.
- [12] P. Papon, J. Leblond, and Paul H. E. Meijer. *Physique des transitions de phases*. Dunod, 1999. ISBN : 2-10-004388-9.
- [13] B. Jaffe, W. R. Cook, and H. Jaffe. *Piezoelectric Ceramics*. Academic Press, London, 1971.
- [14] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. P. Cambridge University Press, 1999.
- [15] G. Teowee, J. T. Simpson, T. Zao, M. Mansuripur, J. M. Boulton, and D. R. Uhlmann. Electro-optic properties of sol-gel derived PZT and PLZT thin films. *Microelectronic Engineering*, 29 :327–330, 1995.

- [16] G. Haertling. Dielectric and electrooptic properties of acetate derived plzt x/65/35 thin films. *Proceeding of The 4th Symposium on Integrated Ferroelectrics*, pages 426–435, 1992.
- [17] A. C. Adams, D. P. Schinke, and C. D. Capio. An evaluation of the prism coupler for measuring the thickness and refractive index of dielectric films on silion substrates. *Journal of The Electrochemical Society*, 126(9), 1979.
- [18] E. Dogheche and D. R  miens. Deposition and optical characterization of lead-based ferroelectric film for integrated optics. *Integrated Ferroelectrics*, 25 :71–82, 1999.
- [19] J. R. Busch, S. D. Ramamurthi, S. L. Swartz, and V. E. Wood. Linear electro-optic response in sol-gel PZT planar waveguides. *Electronics Letters*, 28(17) :1591–1592, 1992.
- [20] C. E. Land, M. A. Butler, and S. J. Martin. New devices using ferroelectric thin films. *Journal of Lightwave Technology*, 20(1) :114–119, 2002.
- [21] H. Adachi and K. Wasa. Sputtering preparation of ferroelectric PLZT thin films and their optical applications. *IEEE Transactions On Ultrasonics, Ferroelectrics And Frequency Control*, 38(6) :645–655, 1991.
- [22] G. Yi, Z. Wu, and M. Sayer. Preparation of  $\text{Pb}(\text{ZrTi})\text{O}_3$  thin films by sol-gel processing : Electrical optical and electro-optic properties. *Journal of Applied Physics*, 64(5) :2717–2724, 1988.
- [23] R. W. Vest and J. Xu. Preparation and properties of PLZT films from metallo-organic precursors. *Ferroelectrics*, 93 :21–29, 1989.
- [24] C. V. R. Vasant Kumar, M. Sayer, R. Pascual, D. T. Amm, Z. Wu, and D. M. Swanson. Lead zirconate titanate films by rapid thermal processing. *Applied Physics Letters*, 58(11) :1161–1163, 1991.
- [25] G. Haertling. *Ceramics Materials for Electronics*. R. C. Buchanan, 1986.
- [26] S. Saito. *Fine ceramics*. Elsevier, 1988.
- [27] J.A. de Toro, M.D. Serrano, A. Garc  a Caba  es, and J.M. Cabrera. Accurate interferometric measurement of electro-optic coefficients : application to quasi-stoichiometric  $\text{linbo}_3$ . *Optics Communications*, 154 :23–27, 1998.
- [28] B. Jaffe, R. S. Roth, and S. Marzullo. Piezoelectric properties of lead zirconate-lead titanate solid-solution ceramic ware. *J. Appl. Phys.*, 25 :809, 1954.
- [29] D. Dausch and G. Haertling. The domain switching and strucural characteristics of PLZT bulk ceramics and thin films chemically prepared from the same acetate precursor solutions. *Journal of Materials Science*, 31 :3409–3417, 1996.
- [30] P. D. Thacher. Refractive index and surface layers of ceramic  $(\text{Pb}, \text{La})(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  compounds. *Applied Optics*, 16 :3210–3213, 1977.
- [31] G. Haertling. Hot pressed ferroelectric lead zirconate titanate ceramics for electro-optical applications. *Ceramic Bulletin*, 49 :564–567, 1970.
- [32] V. Ya. Shur, N. Yu. Ponomarev, N. A. Tonkacheva, S. D. Makarov, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin L. A. Suslov, N. N. Salashchenko, and E. B. Klyuenkov. Fatigue in epitaxial lead zirconate titanate films. *Physics of the Solid State*, 39(4) :609–610, 1997.

- 
- [33] C. M. Foster, G.-R. Bai, R. Csenesits, J. Vetrone, R. Jammy, L. A. Wills, E. Carr, and Jun Amano. Single-crystal  $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$  thin films prepared by metal-organic chemical vapor deposition : Systematic compositional variation of electronic and optical properties. *Journal of Applied Physics*, 81 :2349–2357, 1997.
- [34] K. Nashimoto. PLZT thin film optical waveguides and devices. [www.nozomiphotonics.com/Nozomi/WhitePaper.pdf](http://www.nozomiphotonics.com/Nozomi/WhitePaper.pdf), 2003.
- [35] P. R. Coffman and S. K. Dey. Structure evolution in the  $PbO - ZrO_2 - TiO_2$  sol-gel system : Part 1- characterization of prehydrolyzed precursors. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 1 :251–265, 1994.
- [36] R. W. Schwartz. Chemical solution deposition of perovskite thin film. *Chemistry of Materials*, 9 :2325–2340, 1997.
- [37] R. Seveno. *Réalisation et Caractérisation de couches minces ferroélectriques et antiferroélectriques de PZT*. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2000.
- [38] P. Limousin. *Contributions à l'étude des propriétés dynamiques des films minces ferroélectriques de  $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$  réalisés par voie chimique*. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2001.
- [39] C.K. Kwok and S.B. Desu. Pyrochlore to perovskite phase transformation in sol-gel derived lead-zirconate-titanate thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 60 :1430–1432, 1992.
- [40] F. Abeles. *Methods for determining optical parameters of thin films*, *Progress in optics*, volume 2. North-Holland, 1963.
- [41] J.-M. Frigerio. Caractérisation optique des couches minces et des cristaux massifs (spectrophotométrie et ellipsométrie spectroscopique). *Les Houches 23-27 avril*, 2001.
- [42] P. K. Tien. Light waves in thin films and integrated optics. *Applied Optics*, 10(11) :2395–2413, 1971.
- [43] R. T. Kersten. The prism-film coupler as a precision instrument Part I. Accuracy and capabilities of prism couplers as instruments. *Optica acta*, 22 :503–513, 1975.
- [44] R. T. Kersten. A new method for measuring refractive index and thickness of liquid and deposited solid thin film. *Optics Communications*, 13(3) :327–329, 1975.
- [45] R. Petit and M. Cadilhac. Théorie électromagnétique du coupleur à prisme. *Journal Of Optics (Paris)*, 8(1) :41–49, 1977.
- [46] J. M. White and P. F. Heidrich. Optical waveguide refractive index profiles determined from measurement of mode indices : a simple analysis. *Applied Optics*, 15 :151–155, 1976.
- [47] K. S. Chiang. Construction of refractive-index profiles of planar dielectric waveguides from the distribution of effective indexes. *Journal of Lightwave Technology*, 3 :385–391, 1985.
- [48] P. Mathey and P. Jullien. Numerical analysis of a WKB inverse method in view of index profile reconstruction in diffused waveguides. *Optics Communications*, 122 :127–134, 1996.
- [49] S. Faß. *L'oxyde de zinc par dépôt chimique en phase vapeur comme contact électrique transparent et diffuseur de lumière pour les cellules solaires*. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2003.

- [50] F. Couzinie-Devy. *Étude de couches minces de ZnO dopées à l'aluminium déposées par pulvérisation cathodique magnétron*. PhD thesis, Université de Nantes, France, 2005.
- [51] J. Chilwell and I. Hodgkinson. Thin-films field-transfer matrix theory of planar multilayer waveguides and reflection from prism-loaded waveguides. *J. Opt. Soc. Am.*, 1(7) :742–753, 1984.
- [52] N. Mehan, M. Tomar, V. Gupta, and A. Mansingh. Optical waveguiding and birefringence properties of sputtered zinc oxide (ZnO) thin films on glass. *Optical Materials*, 27 :241–248, 2004.
- [53] F. de Fornel. *LES ONDES ÉVANESCENTES en optique et en optoélectronique*. EDP Sciences, 1992.
- [54] Cambridge University Press. *Numerical Recipes in Fortran 77 :The art of Scientific Computing*, 1986-1992.
- [55] R.G. Heideman and J.G.E. Gardeniers P.V. Lambeck. High quality zno layers with adjustable refractive indices for integrated optics applications. *Optical Materials*, 4 :741–755, 1995.
- [56] L.Z. Zhang and G.Q. Tang. Preparation, characterization and optical properties of nanostructured zno thin films. *Optical Materials*, 27 :217–220, 2004.
- [57] E.M. Bachari, G. Baud, S. Ben Amor, and M. Jacquet. Structural and optical properties of sputtered zno films. *Thin Solid Films*, 348 :165–172, 1999.
- [58] J. Lee, Z. Li, M. Hodgson, J. Metson, A. Asadov, and W. Gao. Structural, electrical and transparent properties of zno thin films prepared by magnetron sputtering. *Current Applied Physics*, 4 :398–401, 2004.
- [59] X. Jiang, C.L. Jia, and B. Szyska. Manufacture of specific structure of aluminum-doped zinc oxide films by patterning the substrate surface. *Applied Physics Letters*, 80(17) :3090–3092, 2002.
- [60] N. Darwish and G.W. Herzog. The potential of zn/zno electrodes in borax buffered solutions containing oxygen. *Electrodeposition and Surface Treatment*, 3 :379–384, 1973.
- [61] K. Ohji. Highly oriented zno films by rf sputtering of hemispherical electrode. *Journal of Applied Physics*, 47 :1726–1728, 1976.
- [62] S. Takata, T. Minami, and H. Nanto. The stability of aluminium-doped zno transparent electrodes fabricated by sputtering. *Journal of Applied Physics*, 135 :183–187, 1986.
- [63] R.L. Call, N.K. Jaber, K. Seshan, and J.R. Whyte. Structural and electronic properties of three aqueous-deposited films : Cds, cdo, zno, for semiconductor and photovoltaic applications. *Solar Energy Materials*, 2 :373–380, 1980.
- [64] P.C. Lacaze, J.E. Dubois, A. Desbene-Monvernay, P.L. Desbene, J.J. Basselier, and D. Richard. Polymer-modified electrodes as electrochromic material : Part iii. formation of poly-n-vinylcarbazole films on transparent semiconductor ito surfaces by electropolymerization of nvk in acetonitrile. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 147 :107–121, 1983.

- 
- [65] I. Rodriguez, M.L. Marcos, and J. González-Velasco. Mechanism of electrochemical growth of polypyrrole on a glass electrode doped with  $\text{SnO}_2$  (ITO) from aqueous solutions. *Electrochimica Acta*, 32 :1181–1185, 1987.
- [66] A. Corradini, A.M. Marinangeli, and M. Mastragostino. ITO as counter-electrode in a polymer based electrochromic device. *Electrochimica Acta*, 35 :1757–1760, 1990.
- [67] S. LIEBUS. *Couches minces ferroélectriques appliquées aux dispositifs microondes accordables en fréquence*. PhD thesis, Université de Limoges, France, 2003.
- [68] R. Cebulla, R. Wendt, and K. Ellmer. Al-doped oxide films deposited by simultaneous rf and dc excitation of a magnetron plasma : Relation between plasma parameters and structural and electrical film properties. *American Institute of Physics*, 83 :1087–1095, 1997.
- [69] N. Fujimura, T. Nishihara, S. Goto, J. Xu, and T. Ito. Control of preferred orientation for  $\text{ZnO}_x$  films : control of self-texture. *J. of Cryst. Growth*, 130 :269–279, 1993.
- [70] W.K. Burton, N. Carberry, and F.C. Frank. The growth of crystals and the equilibrium structure of their surfaces. *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. Ser. A*, 243 :299–358, 1951.
- [71] S. Lin and J. Huang. Effect of thickness on the structural and properties of ZnO films by r.f. magnetron sputtering. *Surface & Coatings Technology*, 185 :222–227, 2004.
- [72] R. Hansch, S. Seifert, W. Braue, D. Sporn, and G. Müller. The effects of the PBO content upon the microstructure and the ferroelectric properties of undoped sol-gel derived PZT(53/47) fibers. *Journal of the European Ceramic Society*, 24 :2485–2497, 2004.
- [73] C. Zhua, Z. Yong, Y. Chentao, and Y. Bangchao. PBO volatilization and annealing conditions investigation of  $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$  thin films fabricated by sol-gel method. *Materials Science and Engineering B*, 123 :143–148, 2005.
- [74] G. Knuyt, C. Quaeys, J. D'Haen, and L. M. Stals. A quantitative model for the evolution from random orientation to a unique texture in PVD thin film growth. *Thin Solid Films*, 258 :159–169, 1994.
- [75] G. Knuyt, C. Quaeys, J. D'Haen, and L. M. Stals. A model for thin film texture evolution driven by surface energy effects. *physica status solidi (b)*, 195 :179–193, 1996.
- [76] P.B. Barna and M. Adamik. Fundamental structure forming phenomena of polycrystalline films and the structure zone models. *Thin Solid Films*, 317 :27–33, 1998.

## BIBLIOGRAPHIE

---

## Annexe A

# Mesures sur les échantillons à trois couches

### A.1 Mesure à 4 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9667 | 6.E-04 | 2.3793                | 2.E-02             |
| Couche centrale   | 2.2324 | 2.E-06 | 0.6755                | 4.E-03             |
| Couche inférieure | 2.0401 | 2.E-02 | 0.1606                | 1.E-02             |

TAB. A.1 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 14.80                            | 14.80                             | 0.00                         |
| 7.20                             | 7.20                              | 0.00                         |
| -4.40                            | -3.56                             | 0.84                         |
| -5.50                            | -5.48                             | 0.02                         |
| -6.50                            | -6.53                             | 0.03                         |
| -8.20                            | -8.20                             | 0.00                         |
| -10.40                           | -10.44                            | 0.04                         |
| -13.10                           | -13.17                            | 0.07                         |
| -16.00                           | -16.20                            | 0.20                         |
| -19.30                           | -19.34                            | 0.04                         |
| -23.20                           | -23.03                            | 0.17                         |
| -27.90                           | -27.66                            | 0.24                         |

TAB. A.2 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.2 Mesure à 8 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9708 | 1.E-03 | 2.3750                | 1.E-02             |
| Couche centrale   | 2.2341 | 9.E-04 | 0.6620                | 8.E-03             |
| Couche inférieure | 2.0470 | 7.E-03 | 0.1704                | 4.E-03             |

TAB. A.3 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 14.90                            | 14.89                             | 0.01                         |
| 7.10                             | 7.13                              | 0.03                         |
| -4.10                            | -3.66                             | 0.44                         |
| -5.30                            | -5.17                             | 0.13                         |
| -6.30                            | -6.24                             | 0.06                         |
| -7.90                            | -7.92                             | 0.02                         |
| -10.20                           | -10.17                            | 0.03                         |
| -12.80                           | -12.93                            | 0.13                         |
| -15.80                           | -16.02                            | 0.22                         |
| -19.00                           | -19.21                            | 0.21                         |
| -22.90                           | -22.86                            | 0.04                         |
| -27.50                           | -27.46                            | 0.04                         |
| -32.90                           | -32.84                            | 0.06                         |
| -38.50                           | -38.60                            | 0.10                         |

TAB. A.4 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés



### A.3 Mesure à 12 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9725 | 4.E-04 | 2.4233                | 9.E-03             |
| Couche centrale   | 2.2341 | 1.E-05 | 0.6728                | 1.E-03             |
| Couche inférieure | 2.0325 | 5.E-03 | 0.1168                | 3.E-03             |

TAB. A.5 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 14.90                            | 14.90                             | 0.00                         |
| 7.10                             | 7.10                              | 0.00                         |
| -3.90                            | -3.90                             | 0.00                         |
| -5.00                            | -5.04                             | 0.04                         |
| -6.00                            | -6.08                             | 0.08                         |
| -7.70                            | -7.71                             | 0.01                         |
| -9.90                            | -9.91                             | 0.01                         |
| -12.60                           | -12.64                            | 0.04                         |
| -15.60                           | -15.80                            | 0.20                         |
| -18.80                           | -19.21                            | 0.41                         |
| -22.70                           | -22.85                            | 0.15                         |
| -27.40                           | -27.20                            | 0.20                         |

TAB. A.6 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.4 Mesure à 16 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9759 | 5.E-04 | 2.2930                | 1.E-02             |
| Couche centrale   | 2.2227 | 2.E-03 | 0.7281                | 8.E-03             |
| Couche inférieure | 2.0496 | 9.E-03 | 0.1681                | 5.E-03             |

TAB. A.7 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 14.80                            | 14.24                             | 0.56                         |
| 7.20                             | 7.58                              | 0.38                         |
| -3.00                            | -2.06                             | 0.94                         |
| -4.80                            | -4.77                             | 0.03                         |
| -5.90                            | -5.86                             | 0.04                         |
| -7.60                            | -7.60                             | 0.00                         |
| -9.80                            | -9.90                             | 0.10                         |
| -12.50                           | -12.56                            | 0.06                         |
| -15.20                           | -15.31                            | 0.11                         |
| -18.50                           | -18.53                            | 0.03                         |
| -22.70                           | -22.66                            | 0.04                         |
| -27.40                           | -27.46                            | 0.06                         |
| -32.50                           | -32.51                            | 0.01                         |

TAB. A.8 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.5 Mesure à 20 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9811 | 2.E-03 | 2.0369                | 2.E-02             |
| Couche centrale   | 2.2805 | 2.E-03 | 0.9075                | 1.E-02             |
| Couche inférieure | 2.0513 | 2.E-02 | 0.1680                | 6.E-03             |

TAB. A.9 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 20.40                            | 15.20                             | 5.20                         |
| 7.10                             | 7.14                              | 0.04                         |
| -3.10                            | -2.62                             | 0.48                         |
| -4.90                            | -4.48                             | 0.42                         |
| -6.20                            | -5.87                             | 0.33                         |
| -8.30                            | -8.04                             | 0.26                         |
| -10.90                           | -10.85                            | 0.05                         |
| -13.80                           | -13.89                            | 0.09                         |
| -16.90                           | -16.93                            | 0.03                         |
| -21.00                           | -21.01                            | 0.01                         |
| -25.80                           | -26.04                            | 0.24                         |
| -31.10                           | -31.13                            | 0.03                         |
| -36.80                           | -36.65                            | 0.15                         |

TAB. A.10 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.6 Mesure à 29 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9749 | 9.E-04 | 1.5893                | 1.E-02             |
| Couche centrale   | 2.2718 | 4.E-03 | 0.9007                | 2.E-02             |
| Couche inférieure | 2.0146 | 1.E-02 | 0.1234                | 3.E-02             |

TAB. A.11 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 19.49                            | 14.16                             | 5.33                         |
| -4.00                            | -4.04                             | 0.04                         |
| -5.30                            | -5.37                             | 0.07                         |
| -7.60                            | -7.58                             | 0.02                         |
| -10.90                           | -10.94                            | 0.04                         |
| -14.90                           | -15.05                            | 0.15                         |
| -19.00                           | -19.08                            | 0.08                         |
| -24.10                           | -24.10                            | 0.00                         |
| -30.70                           | -30.83                            | 0.13                         |
| -38.00                           | -37.83                            | 0.17                         |

TAB. A.12 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.7 Mesure à 33 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9810 | 4.E-04 | 1.4529                | 2.E-03             |
| Couche centrale   | 2.2784 | 1.E-04 | 0.8088                | 3.E-03             |
| Couche inférieure | 2.1234 | 4.E-03 | 0.1901                | 4.E-03             |

TAB. A.13 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 19.90                            | 19.90                             | 0.00                         |
| 14.80                            | 13.94                             | 0.86                         |
| 5.10                             | 5.06                              | 0.04                         |
| -4.40                            | -4.40                             | 0.00                         |
| -5.70                            | -5.44                             | 0.26                         |
| -8.20                            | -7.85                             | 0.35                         |
| -11.70                           | -11.71                            | 0.01                         |
| -16.00                           | -16.30                            | 0.30                         |
| -20.60                           | -20.62                            | 0.02                         |
| -26.60                           | -26.59                            | 0.01                         |
| -34.10                           | -34.10                            | 0.00                         |

TAB. A.14 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.8 Mesure à 37 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9864 | 4.E-04 | 1.2658                | 3.E-03             |
| Couche centrale   | 2.2973 | 3.E-03 | 0.7903                | 2.E-03             |
| Couche inférieure | 2.0669 | 9.E-03 | 0.1933                | 1.E-03             |

TAB. A.15 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 21.62                            | 15.00                             | 6.62                         |
| 5.40                             | 5.35                              | 0.05                         |
| -4.30                            | -4.32                             | 0.02                         |
| -6.00                            | -5.85                             | 0.15                         |
| -9.10                            | -8.69                             | 0.41                         |
| -13.50                           | -13.50                            | 0.00                         |
| -18.20                           | -18.89                            | 0.69                         |
| -24.00                           | -24.07                            | 0.07                         |
| -31.80                           | -31.80                            | 0.00                         |
| -40.10                           | -40.07                            | 0.03                         |

TAB. A.16 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.9 Mesure à 41 mm du centre de dépôt

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9905 | 9.E-04 | 0.9723                | 6.E-02             |
| Couche centrale   | 2.3610 | 9.E-04 | 0.9621                | 4.E-03             |
| Couche inférieure | 2.0206 | 4.E-04 | 0.2265                | 5.E-02             |

TAB. A.17 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 28.98                            | 23.56                             | 5.42                         |
| 5.00                             | 5.05                              | 0.05                         |
| -4.50                            | -4.49                             | 0.01                         |
| -6.60                            | -6.56                             | 0.04                         |
| -10.80                           | -10.95                            | 0.15                         |
| -16.20                           | -17.16                            | 0.96                         |
| -21.80                           | -22.18                            | 0.38                         |
| -30.00                           | -30.35                            | 0.35                         |
| -39.40                           | -38.15                            | 1.25                         |

TAB. A.18 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés

## A.10 Échantillon E

|                   | Indice | Erreur | Épaisseur ( $\mu m$ ) | Erreur ( $\mu m$ ) |
|-------------------|--------|--------|-----------------------|--------------------|
| Couche supérieure | 1.9794 | 5.E-04 | 1.0873                | 5.E-03             |
| Couche centrale   | 2.3681 | 1.E-03 | 0.9564                | 2.E-03             |
| Couche inférieure | 1.9869 | 1.E-02 | 0.1346                | 2.E-03             |

TAB. A.19 – Indices de réfraction et épaisseurs déterminés par la méthode de résolution

| Angles mesurés<br>( $^{\circ}$ ) | Angles calculés<br>( $^{\circ}$ ) | Différence<br>( $^{\circ}$ ) |
|----------------------------------|-----------------------------------|------------------------------|
| 29.74                            | 24.14                             | 5.60                         |
| 4.90                             | 4.89                              | 0.01                         |
| -5.30                            | -5.21                             | 0.09                         |
| -7.20                            | -7.21                             | 0.01                         |
| -10.80                           | -10.82                            | 0.02                         |
| -16.70                           | -17.03                            | 0.33                         |
| -23.40                           | -23.41                            | 0.01                         |
| -30.40                           | -30.38                            | 0.02                         |
| -40.20                           | -40.22                            | 0.02                         |

TAB. A.20 – Comparaisons des angles calculés et des angles mesurés









## **Élaboration, étude et analyse par spectroscopie *m*-lines de guides d'ondes composites multicouches**

**Résumé :** Depuis une quarantaine d'années, la spectroscopie *m*-lines est utilisée pour la caractérisation optique de guides d'onde plans monocouches. L'objet de ces travaux de recherches a été d'en généraliser l'emploi à l'étude de guides composites à deux et trois couches. Une méthode d'analyse numérique permettant de relier les mesures *m*-lines aux valeurs des indices optiques et des épaisseurs d'un guide à trois couches a été développée. La précision de cette méthode a été étudiée par une approche statistique sur un grand nombre de guides simulés et estimée à environ  $10^{-3}$  pour l'indice de réfraction et à une dizaine de nanomètres pour l'épaisseur. Des guides multicouches ont été élaborés à partir de ZnO et de PZT et caractérisés par la spectroscopie *m*-lines. Les variations des indices de réfraction de chacune des couches des guides ZnO/PZT/ZnO ont pu être corrélées à des résultats d'analyse structurale. La méthode d'analyse des guides à trois couches a donc été validée expérimentalement.

**Mots clés :** dispositif *m*-lines, multicouches, couches minces, guides d'onde, PZT, ZNO

## **Elaboration, study and analysis of composite multilayer waveguides by the *m*-lines spectroscopy**

**Summary :** For forty years, the *m*-lines spectroscopy is used for the optical characterization of monolayer plane waveguides. The purpose of these researches was to generalize this spectroscopy to the study of composite waveguides with two and three layers. A method of numerical analysis allowing to link *m*-lines measurements to the values of the optical indices and thicknesses of a three layers waveguide was developed. The precision of this method was studied by a statistical approach on a great number of simulated waveguides and estimated at approximately  $10^{-3}$  for the index of refraction and at ten nanometres for the thickness. Multi-layer waveguides were elaborate with ZnO and of PZT and characterized by the *m*-lines spectroscopy. The variations of the refraction indexes of each layer of the ZnO/PZT/ZnO waveguides could be correlated with results of structural analysis. The method of analysis of the three layer waveguides was thus validated in experiments.

**Key words :** *m*-lines device, multilayer, thin films, waveguide, PZT, ZNO

Discipline : Physique

N° :