



**HAL**  
open science

# Conversion de fréquences dans des guides d'ondes fabriqués par implantation ionique dans des structures périodiquement polarisées de $\text{LiNbO}_3$ "

Brice Vincent

► **To cite this version:**

Brice Vincent. Conversion de fréquences dans des guides d'ondes fabriqués par implantation ionique dans des structures périodiquement polarisées de  $\text{LiNbO}_3$ ". Autre [cond-mat.other]. Université Paul Verlaine - Metz, 2003. Français. NNT : 2003METZ012S . tel-01749908

**HAL Id: tel-01749908**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749908>**

Submitted on 29 Mar 2018

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

Ecole doctorale EMMA

THESE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE METZ

Discipline : Physique (Option Optoélectronique)

Présentée par :

Brice VINCENT

N° inv	20030355
Cote	S/MZ 03/12
Loc	

***Conversion de fréquences dans des guides  
d'ondes fabriqués par implantation ionique  
dans des structures périodiquement  
polarisées de  $\text{LiNbO}_3$ .***

Date de soutenance : 30 octobre 2003

devant la commission d'examen :

- |                |   |
|----------------|---|
| A. CACHARD     | Professeur à l'Université Jean Monnet de Saint-Étienne. (Rapporteur)    |
| J.C. VAREILLE  | Professeur à l'Université de Limoges. (Rapporteur)                      |
| P. MORETTI     | Maître de conférences, HDR. Université de Lyon I. (Examinateur)         |
| P. ALNOT       | Professeur à l'Université Henri Poincaré de Nancy. (Invité)             |
| E. LALLIER     | Ingénieur. TRT Thalès Orsay. (Invité)                                   |
| J.C. LOULERGUE | Professeur à l'Université de Metz. (Directeur de thèse)                 |
| A. BOUDRIOUA   | Maître de conférences, HDR. Université de Metz. (Co-directeur de thèse) |
| R. KREMER      | Maître de conférences. Université de Metz. (Co-encadrant)               |

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



022 486118 8

-France  
' 85 59

## **Ecole doctorale EMMA**

# **THESE**

Pour l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE METZ**

**Discipline : Physique (Option Optoélectronique)**

Présentée par :

**Brice VINCENT**

***Conversion de fréquences dans des guides  
d'ondes fabriqués par implantation ionique  
dans des structures périodiquement  
polarisées de  $\text{LiNbO}_3$ .***

Date de soutenance : 30 octobre 2003

devant la commission d'examen :

A. CACHARD	Professeur à l'Université Jean Monnet de Saint-Étienne. (Rapporteur)
J.C. VAREILLE	Professeur à l'Université de Limoges. (Rapporteur)
P. MORETTI	Maître de conférences, HDR. Université de Lyon I. (Examinateur)
P. ALNOT	Professeur à l'Université Henri Poincaré de Nancy. (Invité)
E. LALLIER	Ingénieur. TRT Thalès Orsay. (Invité)
J.C. LOULERGUE	Professeur à l'Université de Metz. (Directeur de thèse)
A. BOUDRIOUA	Maître de conférences, HDR. Université de Metz. (Co-directeur de thèse)
R. KREMER	Maître de conférences. Université de Metz. (Co-encadrant)



**A mes parents, à Albert,**

# Remerciements

Le travail présenté dans ce manuscrit a été réalisé au laboratoire Matériaux Optiques Photonique et Systèmes (M.O.P.S.) de l'institut de recherche Centre Lorrain d'Optique et d'Electronique des Solides (C.L.O.E.S.) de l'Université de Metz et Supélec.

Je tiens à remercier la région Lorraine et l'état Français qui ont soutenu ce travail par l'intermédiaire du CPER « Nouveaux Matériaux Fonctionnels et Microtechnologies ». Je tiens de même à remercier le GDR « Matériaux et Fonctions de l'optique Non Linéaire » pour son soutien financier.

Je tiens tout d'abord à remercier Messieurs les Professeurs G. Kugel et D. Durand pour m'avoir successivement accueilli au sein de leur établissement.

J'exprime également ma reconnaissance à Monsieur le Professeur M. Fontana pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire MOPS en tant que directeur et qui a également su être un collègue attentif et compréhensif.

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur J.C. Loulergue ainsi qu'à Monsieur A. Boudrioua qui ont su encadrer et diriger ce travail pour m'aider à le mener à bien.

Je remercie l'ensemble des membres du jury qui m'ont fait l'honneur d'accepter de lire et de juger ce mémoire : Monsieur P. Alnot, Professeur à l'Université Henri Poincaré de Nancy, Monsieur A. Boudrioua, Maître de conférence à l'Université de Metz (co-directeur de thèse), Monsieur A. Cachard, Professeur à l'Université Jean Monnet de Saint-Etienne (rapporteur), Monsieur R. Kremer, Maître de conférence à l'Université de Metz, Monsieur E. Lallier, Ingénieur TRT. Thalès, Orsay, Monsieur J.C. Loulergue (directeur de thèse), Professeur à l'Université de Metz, Monsieur P. Moretti, Maître de conférence à l'Université C. Bernard de Lyon et Monsieur J.C. Vareille, Professeur à l'Université de Limoges (rapporteur).

Je tiens à remercier en particulier Monsieur A. Cachard qui a cru en mes capacités en m'accueillant en D.E.A. « Optique Optoélectronique et Micro-ondes » à l'Université Jean Monnet de Saint Etienne. J'espère, par ce travail, m'être montré digne de sa confiance. Je lui

suis également reconnaissant pour le temps qu'il a passé à la relecture de ce manuscrit et pour ses corrections qui ont permis d'améliorer la clarté et la rigueur du texte.

J'exprime toute ma reconnaissance à Monsieur J. C. Vareille pour les nombreuses remarques pertinentes ainsi que le travail de correction précis qu'il a effectué afin de parfaire ce manuscrit.

Je ne sais comment exprimer ma gratitude à Monsieur Paul Moretti avec qui cela fut toujours un plaisir immense de travailler. C'est la première fois qu'il m'a été donné de rencontrer un homme aussi passionné, patient et désireux de partager ses connaissances.

Je remercie particulièrement Azzedine Boudrioua et Régis Kremer avec qui j'ai passé beaucoup de temps à mettre au point les différents dispositifs expérimentaux présentés dans ce manuscrit. A vous deux, pour votre travail et votre amitié, merci.

Je suis reconnaissant à Monsieur Laurent Bouvot ingénieur au LPMIA de l'Université Henri Poincaré de Nancy qui m'a formé aux techniques de photolithographie en salle blanche et qui a su faire preuve de patience et de compréhension face à mon inexpérience. Plus généralement je remercie le LPMIA qui nous a permis d'utiliser ses équipements sans lesquels ce travail n'aurait jamais pu être réalisé.

Je remercie bien sûr le personnel technique du laboratoire MOPS et notamment Mademoiselle Evelyne Doriath et Monsieur Jean Claude Petit qui m'ont toujours répondu avec compétences et rapidité dans la mise au point des dispositifs expérimentaux.

Je ne saurais sans remercier l'ensemble des collègues et amis qui m'ont aidé et supporté (dans tous les sens du terme) durant les trois dernières années. Un grand merci à vous tous.

Enfin je tiens à te remercier, toi qui m'a soutenu durant ces longues années, toi qui a su si bien nourrir mon âme et mon corps. C'est aussi le fruit de ton travail qui est présenté ici. Pour tout, Stira, je ne te remercierai jamais assez.

# SOMMAIRE

## Introduction Générale

### Chapitre 1 : Optique non linéaire

1.	Introduction .....	4
2.	Théorie de l'optique non linéaire.....	5
2.1.	Interaction rayonnement matière .....	5
2.2.	Accord de phase dans le massif.....	10
2.2.1.	Accord de phase par biréfringence (APB).....	10
2.2.2.	Quasi-Accord de Phase (QAP) .....	12
3.	Optique non linéaire intégrée .....	16
3.1.	Guide d'onde plan : rappels théoriques. ....	16
3.2.	Génération de Second Harmonique (GSH) dans les guides .....	21
3.2.1.	Efficacité de conversion.....	22
3.2.2.	Accord de phase par dispersion modale .....	23
4.	Techniques de fabrication des guides d'ondes .....	26
4.1.	Procédés physico-chimiques.....	27
4.2.	Diffusion d'ions.....	28
4.3.	Fabrication de films minces.....	29
4.4.	Implantation d'ions Légers ( $\text{He}^+$ , $\text{H}^+$ ).....	29
5.	Techniques de caractérisation et reconstruction du profil d'indice .....	35
5.1.	Spectroscopie des lignes noires .....	35
5.2.	Méthode de la réflectivité .....	39
5.3.	Méthode i-WKB .....	42
6.	Conclusion.....	45
7.	Bibliographie .....	46

# Chapitre 2 : Fabrication et caractérisation de structures PPLN.

1	Introduction .....	50
2	Fabrication de structures périodiquement polarisées (PP) : état de l'art .....	51
2.1	Renversement de la polarisation.....	51
2.1.1	Polarisation durant la croissance.....	51
2.1.2	Polarisation post-croissance.....	52
2.2	Les matériaux pour le QAP .....	55
3	PPLN par application de champs électriques .....	56
3.1	Mécanisme de renversement de la polarisation.....	56
3.2	Description du procédé.....	62
3.2.1	Préparation des échantillons .....	62
3.2.2	Photolithographie : réalisation de réseaux d'électrodes .....	62
3.2.3	Présentation du dispositif expérimental .....	64
3.3	Fabrication .....	64
3.3.1	Etude préliminaire.....	65
3.3.2	Résultats de photolithographie sur niobate de lithium.....	68
3.3.3	Application de champs électriques .....	70
3.4	Contrôle et qualification des structures PPLN .....	75
3.4.1	Diffraction de rayons X .....	75
3.4.2	Attaque par acide fluorhydrique .....	75
3.4.3	Lumière polarisée .....	75
3.4.4	Etude micro Raman et luminescence.....	76
4	Conclusion .....	84

# Chapitre 3A : Caractérisation de guides implantés dans des PPLN de pas 10 $\mu\text{m}$ .

1	Introduction .....	87
2	Etude préliminaire .....	88
3	Caractérisation linéaire .....	88
3.1	Etude en fonction de l'énergie.....	89
3.1.1	Conditions d'implantations.....	89
3.1.2	Mesures des indices effectifs et calcul du profil d'indice.....	89
3.1.3	Mesures de pertes.....	93
3.2	Etude en fonction du recuit.....	98
3.2.1	Mesures des indices effectifs et calcul du profil d'indice.....	98
3.2.2	Mesures de pertes.....	99
3.3	Etude complémentaire : Spectroscopie des lignes noires en fonction de la longueur d'onde.....	101
4	Caractérisation non-linéaire.....	105
4.1	Description du dispositif.....	105
4.2	GSH dans PPLN :He+ plan de pas 10 $\mu\text{m}$ .....	108
5	Conclusion .....	115
6	Bibliographie .....	116

# **Chapitre 3B : Caractérisation de guides implantés dans des PPLN : Zn de pas 6.7 et 6.8 $\mu\text{m}$**

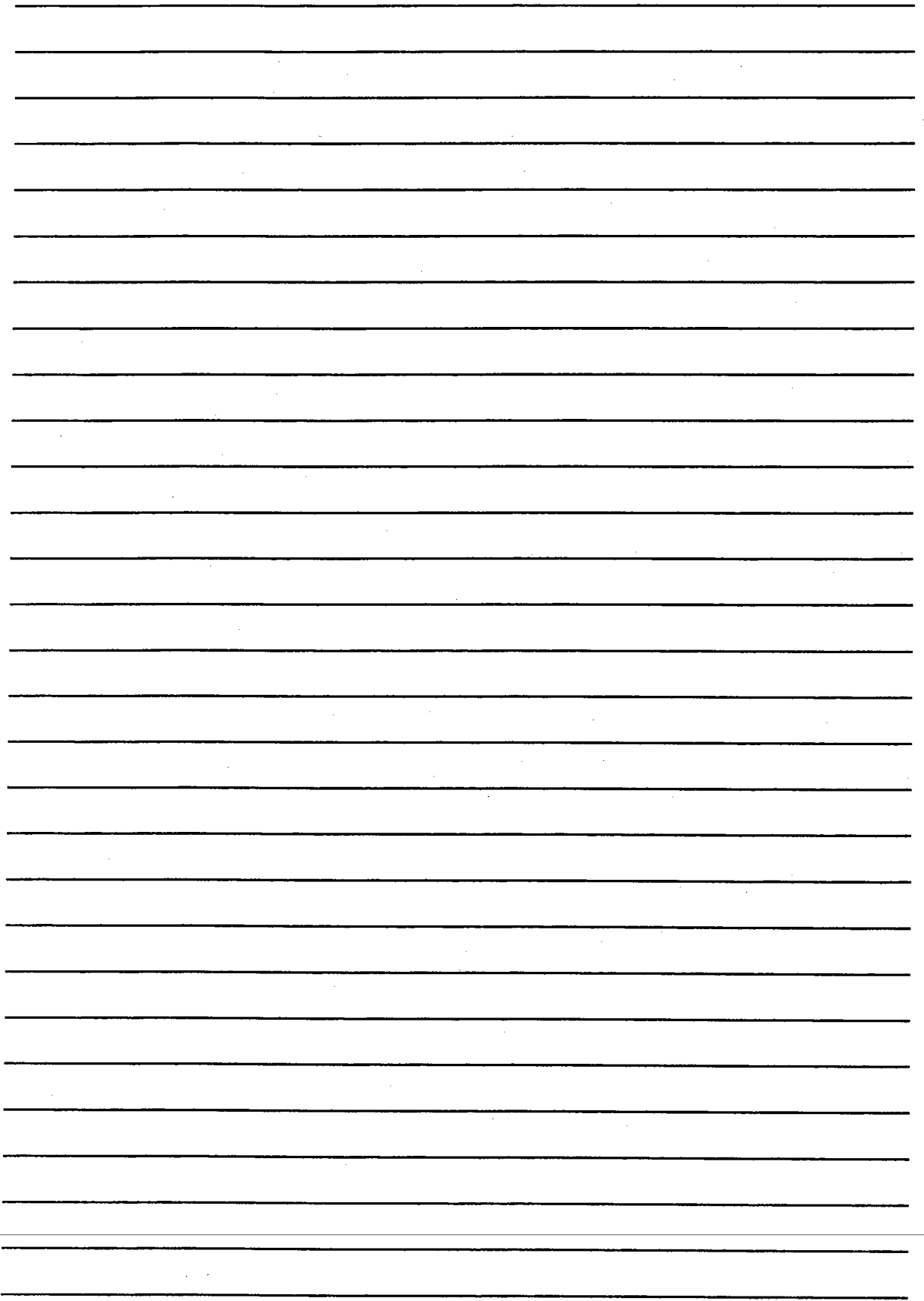
1	Introduction .....	118
2	Effet photo-réfractif.....	118
2.1	Dans un cristal mono domaine de niobate de lithium (« Single domain lithium niobate » SDLN.....	118
2.2	Dans un cristal périodiquement polarisé de niobate de lithium (PPLN).....	121
2.3	Effets du dopage .....	122
2.3.1	Dopage par MgO .....	122
2.3.2	Dopage par ZnO.....	123
3	Caractérisation linéaire .....	123
3.1	Présentation des échantillons et détermination du profil d'indice.....	123
3.1.1	Conditions d'implantation .....	123
3.1.2	Profil d'indice .....	124
3.1.3	Calcul des coefficients de Sellmeier .....	127
3.2	Mesures de pertes .....	130
4	Caractérisation non linéaire .....	135
5	Conclusion .....	139
6	Bibliographie .....	140

## **Conclusion Générale**

## **Annexes**







# **Introduction Générale**

Depuis les premières réalisations de sources lasers au début des années 1960, celles-ci ont été intégrées dans une multitude d'applications. Avec le développement de nouveaux secteurs industriels tels que le stockage de données ou bien les communications par fibres optiques, la demande en sources lasers est devenue de plus en plus exigeante en terme de coût, de robustesse et surtout de variété de longueurs d'onde.

La durée de vie et la miniaturisation ont sonné la fin des lasers à liquide ou à gaz, trop encombrants et fragiles. La recherche s'oriente à présent vers des lasers tout solides et compacts. Pour cela deux voies sont étudiées : les matériaux semi-conducteurs (SC) et les matériaux pour l'optique non linéaire (ONL) utilisant des diodes comme faisceaux pompes.

Les matériaux semi-conducteurs ont permis la réalisation de nombreux dispositifs notamment dans le domaine de l'infrarouge (IR) et plus récemment du bleu. Mais à l'heure actuelle il semble difficile de réaliser des diodes ultraviolettes (UV) et aucun produit commercialisable n'existe pour le domaine du vert. De plus, les diodes lasers ne permettent d'obtenir que des faisceaux de longueurs d'ondes fixes ou faiblement accordables. Enfin le coût de ces dispositifs dans le domaine des basses longueurs d'onde reste élevé et leur durée de vie faible.

Les matériaux ONL qui convertissent les longueurs d'onde de diodes IR constituent quant à eux une voie prometteuse pour pallier les problèmes qui persistent avec les matériaux SC. De nombreux cristaux ont été développés et caractérisés dans ce but. Parallèlement à ces travaux, différentes techniques de réalisation de guides d'ondes s'adaptant de façon spécifique à chaque matériau ont été explorées. On peut distinguer parmi ces techniques trois catégories, les procédés physico-chimiques d'échange ou de diffusion, les techniques de réalisation de couches minces et enfin l'implantation ionique. Les guides d'ondes permettent, en effet, d'améliorer les taux de conversion du faisceau pompe. Plusieurs sociétés commercialisent à l'heure actuelle des sources lasers basées le doublage de fréquence (COBOLT, RAINBOW PHOTONICS).

La micro-structuration de tels matériaux a permis récemment d'atteindre des performances inégalées ainsi que des fonctionnalités nouvelles. Récemment l'évolution des cristaux photoniques ou, depuis plus longtemps, la réalisation de structures périodiquement polarisées (PP) dans des cristaux ferroélectriques en sont des exemples représentatifs.

C'est en suivant cette voie que nous avons introduit au sein du laboratoire une nouvelle activité portant sur la fabrication et la caractérisation de structures PP dans le niobate de lithium (LN). L'originalité de ce travail consiste à combiner les propriétés des structures PPLN avec des guides d'ondes fabriqués par implantation ionique. Technique de fabrication qui préserve les propriétés optiques non linéaires originales du cristal.

Le travail de thèse rapporté dans le présent manuscrit s'articule selon trois chapitres :

Le premier chapitre traitera des principes de bases de l'optique non linéaire en configuration massive puis en optique intégrée. Les méthodes de caractérisation feront l'objet d'un détail tout particulier car ce sera pour nous l'occasion de présenter les outils utilisés plus tard dans l'exploitation des résultats. Enfin, nous ferons une revue des différentes techniques qui permettent de réaliser des guides d'ondes pour l'optique intégrée en détaillant la technique de l'implantation ionique.

Le deuxième chapitre s'attachera à expliquer le procédé qui a été suivi, afin d'obtenir des structures PPLN permettant l'obtention de la génération de second harmonique (GSH) par quasi accord de phase (QAP). Nous décrirons le banc automatisé qui a été mis en place pour renverser la polarisation. Ce sera aussi l'occasion de montrer, en plus des techniques classiques, une méthode qui a été développée au sein du laboratoire pour contrôler et qualifier ces structures.

Enfin le dernier chapitre qui sera séparé en deux sections s'attachera à présenter les résultats qui ont été obtenus sur les guides implantés dans les PPLN. La caractérisation comprend deux parties décrivant tout d'abord les propriétés linéaires puis non linéaires de nos guides. La première section traitant des structures PPLN de pas  $10\mu\text{m}$  et la deuxième section concernant les structures PPLN :Zn pour la GSH d'un laser Nd :YAG.

Nous concluons ce travail sur les possibilités de notre composant. Mais également en donnant des pistes pour l'amélioration de celui-ci tant au niveau de la fabrication du guide que de la réalisation des structures PPLN.

# **Chapitre 1 :**

## **Optique non linéaire**

# SOMMAIRE

1.	Introduction .....	4
2.	Théorie de l'optique non linéaire.....	5
2.1.	Interaction rayonnement matière .....	5
2.2.	Accord de phase dans le massif : APB et QAP .....	10
2.2.1.	Accord de phase par biréfringence APB.....	10
2.2.2.	Quasi-Accord de Phase (QAP) .....	12
3.	Optique non linéaire intégrée .....	16
3.1.	Guide d'onde plan : rappels théoriques. ....	16
3.2.	GSH dans les guides .....	21
3.2.1.	Efficacité de conversion.....	22
3.2.2.	Accord de phase par dispersion modale .....	23
4.	Techniques de fabrication des guides d'ondes .....	26
4.1.	Procédés physico-chimiques.....	27
4.1.1.	Echange protonique. ....	27
4.1.2.	Diffusion d'ions. ....	28
4.2.	Fabrication de films minces.....	29
4.3.	Implantation d'ions Légers ( $\text{He}^+$ , $\text{H}^+$ ).....	29
5.	Techniques de caractérisation et reconstruction du profil d'indice .....	35
5.1.	Spectroscopie des lignes noires .....	35
5.2.	Méthode de la réflectivité .....	39
5.3.	Méthode i-WKB .....	42
6.	Conclusion .....	45
7.	Bibliographie .....	46

## 1. Introduction

Ce chapitre est dédié aux concepts de base de l'optique non linéaire (ONL) et plus particulièrement de la génération de second harmonique (GSH) en optique guidée. Nous ferons les rappels nécessaires afin que l'on dispose des outils utiles à la compréhension et à l'exploitation des résultats qui seront présentés dans la suite du manuscrit.

Dans un premier temps nous nous attacherons à présenter la théorie de l'optique non linéaire pour comprendre comment l'interaction d'une onde électromagnétique avec un milieu dense peut donner lieu à la création d'une onde de fréquence différente. Nous nous attarderons plus longuement sur les conditions que doivent remplir l'onde fondamentale et l'onde harmonique pour obtenir une efficacité de conversion importante, en détaillant les deux principales techniques, dites de l'accord de phase par biréfringence (APB) et de quasi-accord de phase (QAP), permettant de satisfaire ces conditions.

Puis, en rappelant les principes de bases de l'optique intégrée, nous essayerons de comprendre comment l'on peut améliorer les performances d'un matériau pour l'optique non linéaire grâce à l'utilisation de structures guidantes et également comment de telles structures peuvent modifier les conditions d'accord de phase.

## 2. Théorie de l'optique non linéaire

### 2.1. Interaction rayonnement matière

Depuis la première démonstration expérimentale de l'effet laser [1], l'optique a subi de nombreux bouleversements et ceci en grande partie à cause de la nature cohérente du rayonnement émis par les sources lasers. Les conséquences sur la directivité, le grand degré de monochromaticité et l'importante densité d'énergie véhiculée par de tels faisceaux ont donné naissance à des applications jusqu'alors insoupçonnées. Les valeurs du champ électrique de tels rayonnements peuvent atteindre  $10^8$  V/cm, ce qui est l'ordre de grandeur du champ électrique atomique ou moléculaire qui lie les électrons de valences. Donc si l'on soumet un matériau à un rayonnement laser, les électrons de valence sont littéralement « tirés » de leurs orbitales, le matériau adopte alors le comportement d'un plasma dense hautement ionisé. La polarisation créée n'est donc plus proportionnelle à l'amplitude du champ appliqué. Il s'en suit que les lois de la réfraction linéaire (indice de réfraction constant) ne sont plus valables. Celles-ci ne doivent être en effet considérées que pour des valeurs de l'amplitude du champ beaucoup plus faibles. Lorsque Lorentz [2] au début du 20<sup>ème</sup> siècle calcule la susceptibilité diélectrique du premier ordre il considère l'électron comme un oscillateur harmonique, il lui manque le terme d'anharmonicité non négligeable lorsque l'amplitude du champ électrique appliqué devient voisine de celle vue par un électron de valence. La non linéarité se traduit dans les relations constitutives par le développement de la polarisation induite en une série de termes comme :

$$\vec{P} = \vec{P}_0 + \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots (1)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide,  $\vec{P}_0$  est la polarisation spontanée du milieu,  $\epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$  est la polarisation linéaire du matériau et  $\vec{P}^{nl} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots$  est la polarisation non linéaire.

$\chi^{(n)}$  est la susceptibilité non-linéaire d'ordre n (tenseur de rang (n+1)).



Si l'on désigne par  $i, j$  et  $k$  les trois directions de l'espace d'un repère défini dans le milieu diélectrique, alors on peut écrire la partie non linéaire de (1) sous la forme d'un produit tensoriel :

$$\vec{P}_i^{nl} = \varepsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) + \dots \quad (2)$$

Dans (2) seule la partie quadratique de la polarisation non linéaire est exprimée de façon formelle car c'est cette partie qui nous intéressera pour le doublage de fréquence.

Si nous nous limitons à étudier ici la génération de second harmonique (GSH) où  $\omega_1 = \omega_2 = \omega$ , l'interaction entre l'onde électromagnétique et la matière peut alors être représentée comme sur la figure 1.

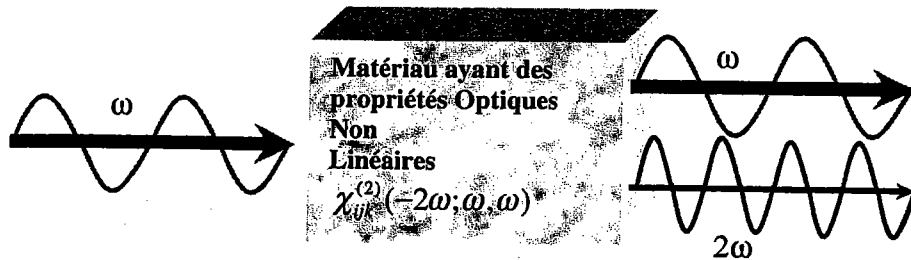


Figure 1: Processus de Génération de Second Harmonique (GSH)

Il faut noter que seuls les matériaux non centro-symétriques possèdent des propriétés de GSH car  $\chi^{(2)} \neq 0$ .

Si l'on veut simplifier l'expression de la polarisation induite, il convient de s'affranchir de la nature tensorielle de la susceptibilité. Pour cela on remarque que dans le cas de la GSH, la permutation des indices  $k$  et  $l$  ne change en rien la polarisation induite, on peut donc simplifier l'écriture de  $\chi^{(2)}$  en utilisant la notation contractée sous forme d'une matrice  $3 \times 6$ .

$$d_{il}(-2\omega; \omega, \omega) = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}(-2\omega; \omega, \omega) \quad (3)$$

Le Tableau 1 donne la correspondance entre les indices (l et le couple j,k):

1	1	2	3	4	5	6
j,k	xx	Yy	zz	zy	zx	Xy
	xx	Yy	zz	yz	xz	Yx

Tableau 1

En utilisant cette notation contractée on peut donc écrire les composantes de la polarisation non linéaire quadratique sous la forme d'un produit matriciel :

$$\begin{pmatrix} P_x^{(2)}(2\omega) \\ P_y^{(2)}(2\omega) \\ P_z^{(2)}(2\omega) \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} (E_x(\omega))^2 \\ (E_y(\omega))^2 \\ (E_z(\omega))^2 \\ 2(E_y(\omega))(E_z(\omega)) \\ 2(E_z(\omega))(E_x(\omega)) \\ 2(E_x(\omega))(E_y(\omega)) \end{pmatrix} \quad (4)$$

Mais les coefficients  $d_{il}$  de (4) ne sont pas tous indépendants, en effet d'après les relations de permutations de Kleinman [3] et suivant le groupe de symétrie du cristal, on peut réduire le nombre de coefficients indépendants de la matrice pour peu que l'on choisisse convenablement le système d'axe.

Si l'on veut obtenir la relation temporelle qui lie la polarisation non linéaire au champ électrique, on utilise les équations de Maxwell pour un milieu isolant (le vecteur densité de courant  $\vec{J}$  est tel que  $\vec{J} = \vec{0}$ ), non magnétique ( $\mu = \mu_0$ ) et sans charges libres ( $\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0$ ):

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 & (a) \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 & (b) \\ \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} & (c) \\ \vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} & (d) \end{cases} \quad (5) \text{ a. b. c et d.}$$

où  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  sont respectivement le champ électrique et magnétique et  $\vec{D}$  est le vecteur déplacement électrique défini par :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \epsilon_r \vec{E} + \vec{P}^{NL} \quad (6)$$

Avec  $\epsilon_0$  et  $\epsilon_r$  qui sont respectivement la permittivité du vide et la permittivité relative du matériau.  $\vec{P}^{NL}$  est la polarisation non linéaire induite donnée par (4).

En calculant le rotationnel de (5c) et en utilisant (6) et (5d) on obtient :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\mu_0 \epsilon_0 \epsilon_r \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2}$$

Qui, après simplification, peut s'écrire :

$$\Delta \vec{E} - \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2} \quad (7)$$

(7) caractérise la propagation d'une onde dans un milieu non linéaire. Il convient à présent pour résoudre cette équation de faire deux hypothèses : on considère tout d'abord la lente variation de l'amplitude du champ électrique sur une distance de l'ordre de la longueur d'onde et l'on fait de plus l'approximation dite de non-déplétion de la pompe. Cette dernière approximation est non restrictive, car comme nous le verrons plus loin nous ne considérons ici que des milieux à faibles pertes avec des taux de conversion faibles [4].

La solution de (7) pour l'onde harmonique se propageant suivant l'axe  $ox$  est donc :

$$\frac{d \vec{E}_{SH}}{dx} = -i\omega_F \sqrt{\frac{\mu_0 \epsilon_0}{\epsilon_r}} d_{\text{eff}} \vec{E}_F \vec{E}_F e^{i(k_{SH} - 2k_F)x} \quad (8)$$

Où  $\epsilon_r^{2\omega}$  est la permittivité relative du milieu non linéaire à la fréquence harmonique,  $E_F$  est le champ électrique de l'onde fondamentale et  $d_{\text{eff}}$  le coefficient non linéaire effectif du milieu (fonction des coefficients  $d_{ij}$  voir (4)).

On pose :

$$\Delta k = k_{SH} - 2k_F$$

$\Delta k$  est le désaccord de phase entre les ondes fondamentale et harmonique. Si l'on pose que l'amplitude du second harmonique est nulle à l'entrée du cristal (i.e.  $E_{SH}(0)=0$ ), on obtient pour l'amplitude au bout d'une distance  $L$  de propagation:

$$\vec{E}_{SH}(L) = -i\omega_F \sqrt{\frac{\mu_0 \epsilon_0}{\epsilon_r}} d_{\text{eff}} E_F^2 \frac{e^{i\Delta k L} - 1}{i\Delta k} \quad (9)$$

Soit alors l'intensité de second harmonique donnée par le vecteur de Poynting :

$$I_{SH} = \frac{P_{SH}}{A} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0 \epsilon_r}{\mu_0}} \left| \vec{E}_{SH} \right|^2 \quad (10)$$

Où  $I_{SH}$  et  $P_{SH}$  sont respectivement l'intensité et la puissance du faisceau harmonique et  $A$  la surface d'interaction entre le faisceau fondamentale et le milieu.

Si l'on remplace (9) dans (10) on obtient finalement :

$$I_{SH} = \frac{P_{SH}}{A} = 8 \frac{\mu_0^{3/2} \sqrt{\epsilon_0} \omega_F^2}{\epsilon_F \sqrt{\epsilon_{SH}}} d_{eff}^2 L^2 \frac{P_F^2}{A^2} \sin^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (11)$$

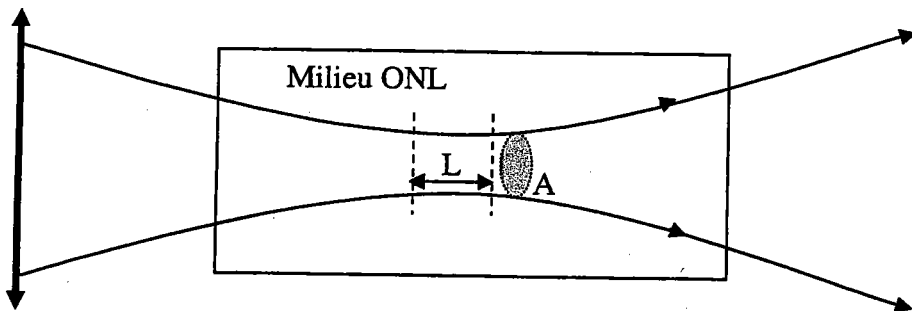
Ou bien encore :

$$P_{SH} = 8 \frac{\mu_0^{3/2} \sqrt{\epsilon_0} \omega_F^2}{\epsilon_F \sqrt{\epsilon_{SH}}} d_{eff}^2 L^2 \frac{P_F^2}{A} \sin^2 \left( \frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (12)$$

On voit alors dans (11) que si l'on désire une intensité de second harmonique importante il convient d'avoir :

- Une surface d'interaction faible.
- Une longueur d'interaction grande.
- Un  $d_{eff}$  élevé.
- Le coefficient  $\Delta k L$ , appelé désaccord de phase, nul.

Les deux premiers points peuvent être optimisés par des procédés technologiques, mais la longueur ( $L$ ) et la surface ( $A$ ) d'interaction (reliée à la taille du « waist ») n'étant pas indépendantes, il faut donc optimiser le rapport entre les deux pour une GSH dans le cristal massif comme le montre la figure 2.



**Figure 2 : Compromis entre taille du « waist » minimum et longueur d'interaction maximum.**

Le choix du matériau ainsi que des polarisations utilisées permet d'avoir un  $d_{eff}$  élevé. Mais la valeur du désaccord de phase  $\Delta k = k_{2\omega} - 2k_{\omega}$  (introduite par la dispersion chromatique du matériau) mérite une attention toute particulière. D'après les équations 10 et 11 on voit qu'au bout d'une distance  $l_c = \pi / \Delta k$  qui est appelée la longueur de cohérence, l'intensité de second harmonique s'annule. Cela se reproduit de façon périodique et correspond à un échange d'énergie entre l'onde fondamentale et l'onde harmonique. Ce phénomène est bien évidemment dommageable aux applications de GSH dont le but est d'obtenir le maximum de puissance pour l'onde harmonique. En effet on s'aperçoit que quoi qu'il arrive, le maximum

d'énergie emmagasinée par l'onde harmonique sera celui correspondant à une interaction sur une longueur de cohérence.

Il est donc indispensable d'annuler ce terme de façon que le sinus cardinal soit égal à 1 c'est à dire sa valeur maximum. Pour cela nous allons exposer dans la suite deux techniques bien connues qui peuvent être utilisées dans le cristal massif. Nous les appellerons « APB » pour accord de phase par biréfringence et « QAP » pour quasi-accord de phase.

## 2.2. Accord de phase dans le massif : APB et QAP

### 2.2.1. Accord de phase par biréfringence APB

Considérons tout d'abord un milieu uniaxe négatif, dispersif dans une région de faible absorption, de telle sorte que les indices ordinaire  $n_o$  et extraordinaire  $n_e$  du cristal augmentent quand la longueur d'onde  $\lambda$  de la radiation lumineuse diminue. Il n'est donc pas possible de réaliser l'accord de phase entre deux ondes de même polarisation et de longueurs d'onde différentes.

L'approche la plus directe pour réaliser l'accord de phase est d'utiliser deux ondes de polarisations différentes pour obtenir l'accord de phase par biréfringence (APB).

L'ellipsoïde des indices donne la valeur de l'indice de l'onde extraordinaire en fonction de l'angle  $\theta$  de propagation.

$$\frac{1}{n_e^2(\theta)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} \quad (13)$$

si  $n_e^{2\omega}(\lambda) < n_o^{\omega}(\lambda)$  est satisfait pour une valeur de  $\lambda$  alors il peut exister un angle tel que :

$$n_e^{2\omega}(\theta_m) = n_o^{\omega}$$

A titre d'exemple, sur la figure 3 on trace les indices de réfraction du niobate de lithium à 20°C en fonction de la longueur d'onde. On voit sur la figure 4 que l'intersection des deux courbes indique un accord de phase possible à 1077nm si l'onde fondamentale est polarisée suivant l'indice ordinaire (dans le plan XY) et l'onde harmonique suivant l'indice extraordinaire (selon l'axe Z) comme décrit sur la figure 5.

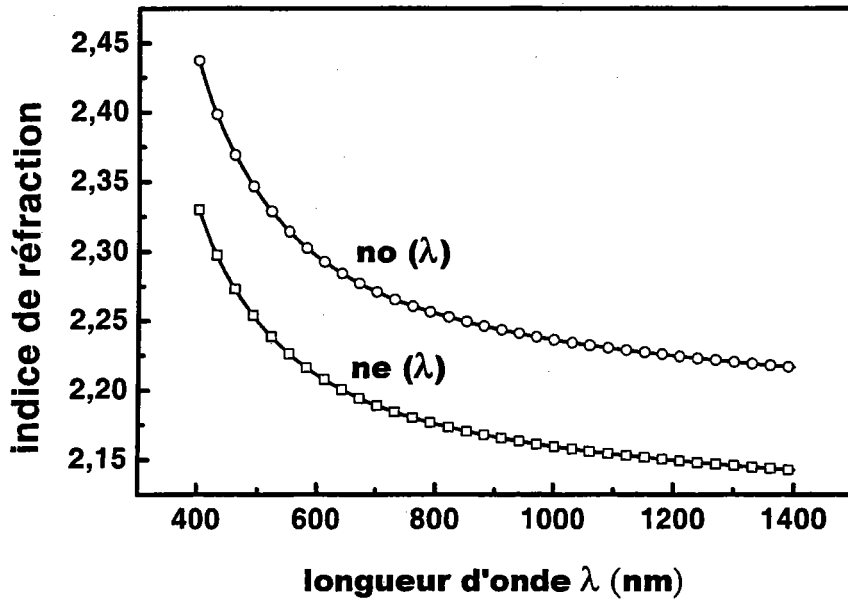


Figure 3 : Dispersion chromatique des indices de réfraction du LN.

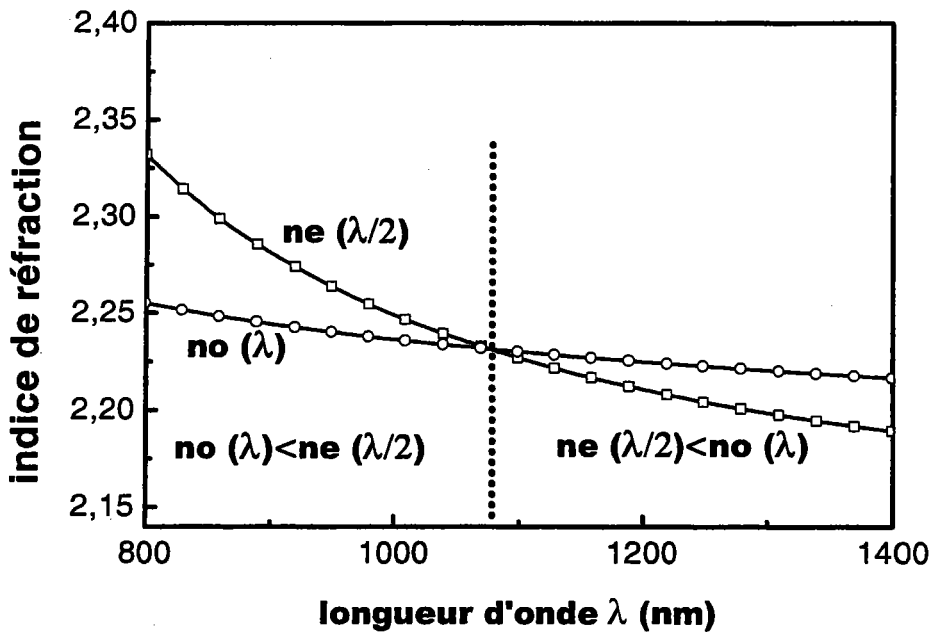


Figure 4 : Détermination de la longueur d'onde d'accord de phase par biréfringence dans LN.

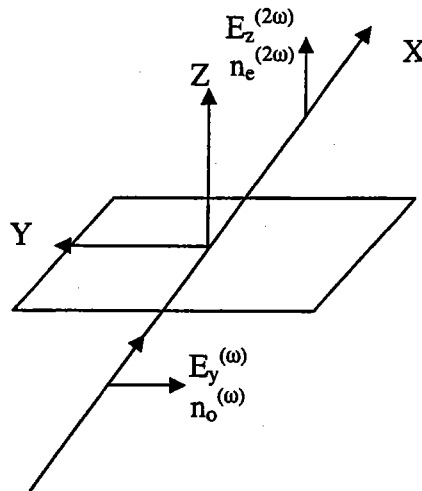


Figure 5 : Configuration de polarisation pour l'APB à 1077nm dans le LN.

L'accord de phase peut être déterminé de différentes façons, que ce soit en faisant varier la longueur d'onde de l'onde fondamentale ou en faisant varier la température du cristal. Le principal avantage de l'accord de phase par biréfringence est qu'il utilise les propriétés intrinsèques du cristal et qu'il ne nécessite aucune étape supplémentaire, après croissance de celui-ci, si ce n'est la coupe.

Les principaux défauts de cette technique sont :

L'impossibilité de réaliser la GSH dans le bleu avec le niobate de lithium (LN), à cause d'une trop faible biréfringence.

Le coefficient non linéaire utile est toujours l'élément diagonal du tenseur qui est rarement le plus important. Dans le cas de LN,  $d_{31}$  utilisé dans l'exemple ci-dessus est d'environ 5 pm/V tandis que le coefficient le plus élevé du LN est le  $d_{33}$  égal à 30 pm/V.

### 2.2.2. Quasi-Accord de Phase (QAP)

Armstrong *et al* [5] ont pour la première fois proposé en 1962 une technique dite de quasi-accord de phase pour compenser le désaccord de phase introduit par la dispersion chromatique. Cette technique consiste à moduler le coefficient non linéaire du matériau de façon périodique pour forcer les ondes fondamentales et harmoniques à rester en phase.

Fejer *et al* [6] ont repris une approche du phénomène de quasi-accord de phase se basant sur le traitement des équations couplées par les Transformées de Fourier qui permet de bien comprendre en quoi le renversement de la polarisation permet de compenser le désaccord de phase. Considérons à présent une onde fondamentale qui se propage suivant la direction  $ox$

et qui donne naissance à une onde harmonique de pulsation double. On se place toujours dans l'approximation de non déplétion de la pompe et une faible variation de l'amplitude sur une distance de l'ordre de la longueur d'onde.

Dans le cas du QAP, le coefficient non linéaire  $d_{\text{eff}}$  n'est plus une constante mais il est modulé suivant la direction de propagation. On le note :

$$d(x) = g(x).d_{\text{eff}} \quad (14)$$

Où  $g(x)$  est la modulation ( $-1 < g(x) < 1$ ) du coefficient non linéaire suivant l'axe  $ox$ . Alors l'intégration de l'équation 8 s'écrit :

$$E_{SH}(L) = \Gamma \int_0^L d(x) \exp(-i\Delta kx) dx \quad (15)$$

$$\text{Où } \Gamma = -i\omega_F \sqrt{\frac{\mu_0 \epsilon_0}{\epsilon_r}} E_F^2$$

Remarque : Dans le cas de l'accord de phase, si  $d(x)=d_{\text{eff}}$  et  $\Delta k=0$  alors l'intégration de (15) est triviale est donne :

$$E_{SH}(L) = \Gamma d_{\text{eff}} L \quad (16)$$

En remplaçant (14) dans (15) on obtient :

$$E_{SH} = \Gamma d_{\text{eff}} LG(\Delta k) \quad (17)$$

$$\text{Avec } G(\Delta k) = \frac{1}{L} \int_0^L g(x) \exp(-i\Delta kx) dx \quad (18)$$

On peut remarquer en comparant (16) et (17) que la fonction  $G(\Delta k)$  est un facteur de réduction de l'amplitude de second harmonique par rapport l'accord de phase parfait.

Si  $g(x)$  est une fonction périodique de période  $\Lambda$  alors elle peut être mise sous la forme :

$$g(x) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \cdot e^{iK_m x} \quad (19)$$

Où :  $K_m = \frac{2\pi m}{\Lambda}$  est la période du réseau de QAP, et  $m$  un entier naturel qui est appelé ordre du QAP.

On comprend alors que pour une certaine valeur de  $m$ ,  $K_m$  est proche ou égale à  $\Delta k$  et l'intégration de (18) est dominée par ce terme (tous les autres étant affectés d'un terme exponentiellement décroissant).



(17) peut alors s'écrire :

$$E_{SH} \approx ie^{-\frac{\Delta k' L}{2}} \Gamma d_Q L \sin c \left( \frac{\Delta k' L}{2} \right) \quad (20)$$

Où :  $d_Q = d_{\text{eff}} G_m$  est l'amplitude du  $m^{\text{ième}}$  harmonique de  $d(x)$ ,  $\Delta k' = k_{sh} - 2k_F - K_m$

On constate donc que deux choses différencient le QAP de l'accord de phase parfait : tout d'abord le désaccord de phase comprend un terme supplémentaire  $K_m$ , introduit par la modulation périodique du coefficient non linéaire, et deuxièmement le coefficient non linéaire effectif est réduit d'un facteur  $G_m$ .

Nous verrons dans la suite que la modulation du coefficient non linéaire qui nous intéresse le plus est une inversion périodique du signe de celui-ci. Dans ce cas la fonction  $g(x)$  est une fonction rectangulaire de valeur  $\pm 1$ . Avec les sections positives de longueur  $l$ , le facteur de cycle est défini comme le rapport :

$$\alpha = \frac{l}{\Lambda} \quad (21)$$

Si l'on fait l'hypothèse que le  $m^{\text{ième}}$  terme de la série de Fourier est en accord de phase, i.e.  $K_m = \Delta k$ , alors le coefficient de Fourier peut être exprimé comme :

$$G_m = \frac{2}{m\pi} \sin(m\pi\alpha) \quad (22)$$

On voit donc d'après (22) que pour un facteur de cycle optimal, i.e. le sinus est égal à l'unité ( $m\pi\alpha = \pi/2 [2\pi]$  avec  $0 < \alpha < 1$ ), on a un coefficient non linéaire  $d_Q$  tel que :

$$d_Q = \frac{2d_{\text{eff}}}{m\pi} \quad (23)$$

Or d'après (11) on sait que l'intensité de second harmonique est proportionnelle à  $d_{\text{eff}}^2$ . Donc dans le cas du QAP, l'efficacité de conversion va être réduite d'un facteur  $(2/m\pi)^2$ .

On regroupe dans le Tableau 2 les facteurs de cycle adaptés pour les premiers ordres de QAP et le taux de réduction de l'efficacité de conversion ( $\eta_{\text{QAP}}/\eta_{\text{APB}}$ ) par rapport à l'APB dans le cas d'un coefficient non linéaire équivalent.

Ordre du QAP (m)	Facteur de cycle ( $\alpha$ ) %	$\eta_{\text{QAP}}/\eta_{\text{APB}}$
1	50	$(2/\pi)^2$
2	25/75	$1/4(2/\pi)^2$
3	17/50/83	$1/9(2/\pi)^2$
4	12/38/62/88	$1/16(2/\pi)^2$

Tableau 2 : Rapport des efficacités de conversion entre l'APB et le QAP à  $d_{\text{eff}}$  constant.

---

Dans le cas  $m=2$  et pour tous les  $m$  pairs un facteur de cycle de 50% ne peut compenser le désaccord de phase. En effet, dans ce cas au bout d'une distance  $ml_c$  toute l'énergie de second harmonique est reconvertie en énergie fondamentale. Il est clair d'après le tableau ci-dessus que l'intérêt du QAP sur l'APB est d'utiliser un coefficient non linéaire plus important. De plus, il s'agit d'un accord de phase non critique. Dans le cas de l'APB les ondes qui interagissent ont des polarisations différentes et les coefficients non linéaires sont ceux qui ne sont pas diagonaux, alors que dans le cas du QAP les coefficients utilisés peuvent être diagonaux car les ondes peuvent avoir la même polarisation, or les coefficients diagonaux sont généralement les plus élevés. (Dans le LN  $d_{31} \sim 5\text{pm/V}$  alors que le  $d_{33} \sim 30\text{pm/V}$ ). En tenant compte du facteur  $(2/\pi)^2$  on voit que l'on peut augmenter le rendement de conversion d'un ordre de grandeur en passant de l'APB au QAP.

### 3. Optique non linéaire intégrée

Le but de ce travail de thèse est de combiner les propriétés non linéaires des structures périodiquement polarisées avec les guides fabriqués par implantation. Nous nous devons donc, après avoir revu les principes de bases de l'optique non linéaire et plus spécifiquement de la GSH, de rappeler les principaux résultats d'optique guidée. Nous ferons également dans cette partie un rapide rappel des différentes techniques de fabrication des guides d'ondes et des pertes associées à ces guides. Enfin nous détaillerons les dispositifs de caractérisations linéaires (profils d'indice et pertes) ainsi que les outils de traitements des résultats obtenus grâce à ces dispositifs.

#### 3.1. Guide d'onde plan : rappels théoriques.

Un guide d'onde plan se présente comme la superposition de trois milieux diélectriques que nous considérerons comme homogènes et transparents. (figure 6)

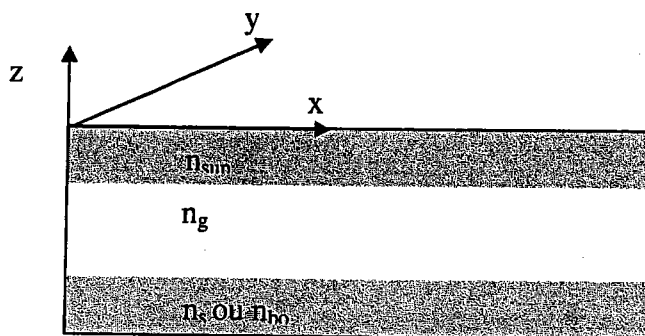


Figure 6 : Schématisation d'un guide plan saut d'indice.

Où  $n_g$  est l'indice de la partie guidante,  $n_s$  est l'indice de la barrière optique que nous noterons  $n_{bo}$  et  $n_{sup}$  est l'indice de l'air.

La condition de guidage est réalisée lorsque les indices de réfraction satisfont l'inégalité suivante :

$$n_g > n_{bo} > n_{sup}$$

De plus le repère indique que la propagation se fera selon l'axe  $ox$ .

### 3.1.1.1. Equation des modes guidés

La résolution des équations régissant la propagation d'une onde électromagnétique dans un guide d'onde peut être effectuée de deux façons : par la théorie des rayons ou par les équations de Maxwell. En utilisant la théorie des rayons on peut montrer d'où provient l'équation de dispersion des modes guidés. L'étude théorique du guide d'onde plan est connue depuis longtemps et le lecteur trouvera une littérature abondante concernant le traitement de ce problème [7].

La lumière se propage dans le guide en adoptant des modes discrets de propagation. Chaque mode se propageant en voyant un indice  $n_{\text{eff}}$  dit indice effectif et dont la valeur est telle que :  $n_g > n_{\text{eff}} > n_{\text{bo}}$ .

Ces solutions discrètes sont imposées par les conditions d'interférences constructives qui interviennent lors de la propagation dans le guide. Si l'on considère le phénomène de réflexion totale en considérant les vecteurs d'ondes  $k_i$  et  $k_r$  respectivement relié aux ondes incidente et réfléchie.

$$k_i \begin{cases} k_{ix} = kn_g \sin(\theta) \\ k_{iz} = kn_g \cos(\theta) \end{cases}$$

$$k_r \begin{cases} k_{rx} = kn_g \sin(\theta) \\ k_{rz} = -kn_g \cos(\theta) \end{cases}$$

où  $k$  est le module du vecteur d'onde dans le vide.

$\theta$  est l'angle que fait le vecteur d'onde avec la normale à l'interface cœur/milieu environnant.

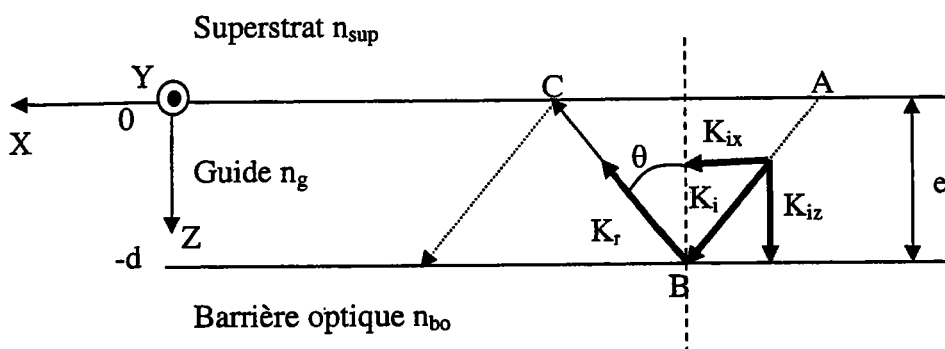


Figure 7 : Représentation du guidage par le rayon optique dans un guide plan.

Si l'on regarde attentivement la figure 7, on constate donc qu'entre le point A et le point C du parcours de l'onde, celle-ci a accumulé un déphasage de  $2.k.e.n_{\text{cos}}(\theta)$ . De plus à la réflexion à chaque interface se rajoute un déphasage qui est fonction de la polarisation (TE, le

champ électrique est perpendiculaire au plan d'incidence (OXZ) ou TM le champ électrique est dans le plan d'incidence (OXZ) de l'onde. La propagation au sein de notre guide n'est donc possible que si le déphasage total est égal à un nombre entier de fois  $2\pi$ . C'est cette condition couplée à la condition sur les indices effectifs vue précédemment qui détermine les modes guidés. Cette expression peut s'écrire :

$$\frac{2\pi}{\lambda} e \sqrt{\frac{n_g^2 - n_{eff}^2}{2}} = \Phi_{sup-G} + \Phi_{G-bo} + m\pi \quad (24)$$

où : m représente l'ordre du mode de propagation (entier naturel)

$n_{eff}$  représente l'indice effectif du mode solution

$$\Phi_{G-I} = 2 \text{Arctan} \left[ \left( \frac{n_g}{n_I} \right)^{2\rho} \left( \frac{\frac{n_{eff}^2 - n_I^2}{2}}{n_g - n_{eff}} \right) \right]^{1/2} \quad \begin{array}{l} \rho=0 \text{ en TE} \\ \rho=1 \text{ en TM} \end{array}$$

avec I = bo (barrière optique) ou sup

La théorie des rayons ne nous permet pas cependant de calculer le profil des champs associés à chaque mode dans le guide. Nous allons donc dans ce qui suit utiliser l'approche électromagnétique.

### 3.1.1.2. Expression du profil des champs

Yariv [8] a explicité les fonctions décrivant le profil des champs dans les cas d'un guide saut d'indice parfait. Nous ne donnons ici qu'une partie des calculs qui permettent de remonter à cette expression.

Dans le cas général, on rappelle que le champ électrique d'une onde électromagnétique dans un milieu neutre ( $\mathbf{j}=0$  et  $\rho=0$ ) d'indice  $n(\mathbf{r})$  est solution de l'équation de propagation issue des équations de Maxwell (5) a. b. c et d. :

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, t) - \mu_0 \varepsilon_0 n^2(\vec{r}) \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0 \quad (25)$$

Le champ E de fréquence  $\omega$  est donné par :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \text{Re} \left[ \vec{E}(\vec{r}) e^{i\omega t} \right] \quad (26)$$

Ce qui conduit à l'équation pour l'amplitude  $\vec{E}(\vec{r})$  :

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}) + k^2 n^2(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}) = 0 \quad (27)$$

Où  $k$  est la norme du vecteur d'onde  $\vec{k}$  reliée à  $\omega$  par la relation de dispersion dans le vide  $k=\omega/c$ . Dans le cas de (28) on considère la géométrie particulière où l'onde est progressive le long de l'axe  $Ox$  : on décompose alors le champ sous la forme  $\vec{E}(\vec{r},t) = \vec{E}(y,z)e^{-i\beta x}$  et (27) devient :

$$\left( \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \vec{E}(y,z) + (k^2 n^2(y,z) - \beta^2) \vec{E}(y,z) = 0 \quad (28)$$

Où  $\beta = k \cdot n_{\text{eff}}$  est la constante de propagation de l'onde dans le guide et  $n_{\text{eff}}$  est l'indice effectif du mode de propagation c'est à dire l'indice vu par l'onde dans le guide.

On suppose que l'onde ne présente pas de variation le long de la largeur  $y$  c'est à dire que  $\partial/\partial y = 0$ . (28) se sépare donc en trois équations :

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2}{\partial z^2} E(z) + \left( k^2 n_{\text{sup}}^2 - \beta^2 \right) E(z) &= 0 \text{ pour } z > 0 \\ \frac{\partial^2}{\partial z^2} E(z) + \left( k^2 n_g^2 - \beta^2 \right) E(z) &= 0 \text{ pour } 0 > z > -d \\ \frac{\partial^2}{\partial z^2} E(z) + \left( k^2 n_{\text{bo}}^2 - \beta^2 \right) E(z) &= 0 \text{ pour } -d > z \end{aligned} \quad (29)$$

On peut à ce niveau analyser les différents types de solutions de (29) suivant les valeurs de  $kn_i$  et  $\beta$  :

- Si  $\beta > kn_g$ ,  $k^2 n_g^2 - \beta^2$  est négatif quel que soit  $z$  et les solutions de (29) sont divergentes ce qui n'est pas physique.
- Si  $kn_g > \beta > kn_{\text{bo}}$ , alors l'amplitude  $E(z)$  est sinusoïdale dans le guide et exponentiellement décroissante à l'extérieur : ce sont des modes guidés que nous déterminerons plus loin en introduisant les conditions aux limites.
- Enfin, si  $kn_{\text{bo}} > \beta$ , les solutions sont sinusoïdales dans le guide et dans la barrière optique : Les ondes fuient hors du guide. Ce sont des modes rayonnants ou modes de substrat.

Examinons maintenant les cas du système d'équations précédent plus en détail pour les ondes TE et TM.

□ Ondes transverses électriques TE :

Dans ce cas le champ électrique est orienté le long de l'axe Oy : On note son amplitude par  $E_y(z)$ , c'est à dire que  $E(y,z)=\text{Re}[E_y(z)e^{i(\omega t-\beta z)}]$ . Le champ  $\vec{B}$  est alors déterminé d'après l'équation de Maxwell ( $\nabla \times \mathbf{E} = -d\mathbf{B}/dt$ ), ce qui donne :

$$\begin{aligned} B_z(x) &= -\frac{\beta}{\omega} E_y(x) \\ B_z(x) &= \frac{i}{\omega} \frac{\partial}{\partial z} E_y(x) \end{aligned} \tag{30}$$

De l'optique classique, on sait que les champs  $E_y(z)$  et  $B_z(z)$  (c'est à dire la dérivée de  $E_y(z)$ ) est continue aux deux interfaces  $z=0$  et  $z=-d$ .

L'expression du champ électrique dans la structure est alors donnée par :

$$E_y(z) = \begin{cases} C_m \exp(-qz) & 0 \leq z < \infty \\ C_m [\cos(hz) - (q/h) \sin(hz)] & -t \leq z \leq 0 \\ C_m [\cos(ht) + (q/h) \sin(ht)] \exp[p(z+t)] & -\infty < z \leq -t \end{cases} \tag{31}$$

Avec  $h=(n_g^2 k^2 - \beta^2)^{1/2}$ ,  $q=(\beta^2 - n_{sup}^2 k^2)^{1/2}$ ,  $p=(\beta^2 - n_{bo}^2 k^2)^{1/2}$ ,  $k=\omega/c$ .

Et  $\beta_m = k \cdot n_{effm}$  avec  $n_{effm}$  indice effectif du mode d'ordre m.

et 
$$C_m = 2 h_m \left[ \frac{\omega \mu}{|\beta_m| \left( t + \frac{1}{q_m} + \frac{1}{p_m} \right) (h_m^2 + q_m^2)} \right]^{1/2}$$

□ Ondes transversales magnétiques TM :

Cette fois le champ magnétique transverse et le champ électrique  $\vec{E}$  sont donnés par :

$$\nabla \times \vec{B} = \frac{1}{(n_i c)^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}$$

soit :

$$E_x(x, z, t) = \frac{\beta c^2}{n_i^2 \omega} B_y(x, z, t)$$

$$E_z(x, z, t) = -\frac{ic^2}{n_i^2 \omega} \frac{\partial}{\partial z} B_y(x, z, t) \tag{32}$$

où  $n_i$  est l'indice du milieu  $i$ . Les modes propres TM du guide sont obtenus en imposant, de la même façon que pour les modes TE, la continuité des champs aux interfaces.

On obtient ainsi les conditions déterminant les modes guidés en polarisation transverse magnétique :

$$H_y(z) = \begin{cases} -C_m \left[ \frac{h}{q} \cos(ht) + \sin(ht) \right] \exp(p(z+t)) & z < -t \\ C_m \left[ -\frac{h}{q} \cos(hz) + \sin(hz) \right] & -t < z < 0 \\ -\frac{h}{q} C_m \exp[-qz] & 0 < z \end{cases} \tag{33}$$

avec 
$$C_m = 2 \sqrt{\frac{\omega \epsilon_0}{\beta_m t_{eff}}}$$

et 
$$t_{eff} = \frac{q+h}{q} \left[ \frac{t}{n_c} + \frac{q+h}{q+h} \frac{1}{n_c q} + \frac{p+h}{p+h} \frac{1}{n_3 p} \right]$$

### 3.2. GSH dans les guides

Après avoir détaillé les bases de l'optique non-linéaire et celles de l'optique intégrée, il convient de nous recentrer sur le cœur de notre sujet, c'est à dire la conversion de fréquence et plus particulièrement la génération de second harmonique dans les guides d'ondes plans. Dans un premier temps il faut analyser l'influence du guide d'onde sur l'efficacité de conversion, puis nous verrons comment la GSH en configuration guidée diffère de celle dans le cristal massif, en ce qui concerne les conditions d'accord de phase.



### 3.2.1. Efficacité de conversion

Nous allons dans un premier temps rappeler de quelle façon intervient l'intégrale de recouvrement dans l'efficacité de conversion. Ce terme de recouvrement entre les modes est en effet prépondérant si l'on veut obtenir un rendement de génération de second harmonique satisfaisant. Après cela nous donnerons l'expression de cette intégrale de recouvrement. Cette expression a été utilisée pour réaliser les calculs grâce à un programme réalisé dans le cadre de ce thèse sur MATLAB 5.0.

#### □ Surface effective d'interaction

Le calcul de la puissance harmonique dans un guide d'onde plan est détaillé dans l'Annexe 1. Ce calcul tient compte du facteur du profil du champ qui est différent suivant chaque mode. Le coefficient de couplage entre ces modes est alors introduit comme une intégrale de recouvrement entre ces modes. Il intervient sous la forme d'une surface effective  $A_{OVLM}$ . De plus les indices deviennent alors les indices effectifs de chaque mode comme on l'écrit dans l'expression (34):

$$P_{SH}(L) = 2 \frac{\mu_0}{c} P_F^2 \frac{\omega^2 L^2}{A_{OVLM} n_{SH}^{eff} (n_F^{eff})^2} \left( \frac{2d_{33}}{\pi m} \right)^2 \sin^2(\pi m \alpha) \quad (34)$$

$A_{OVLM}$  est l'épaisseur effective d'interaction pour un guide plan (la surface effective pour un guide canal). Si l'on compare (34) avec (12), on s'aperçoit si l'on excepte le terme introduit par la QAP) que seul le terme de surface d'interaction change. Dans un cas il s'agit de la surface du faisceau dans le cristal massif (au « waist ») tandis que dans l'autre il s'agit d'une surface qui est typiquement de l'ordre de grandeur celle du guide (si l'on considère un canal). Cette deuxième valeur étant beaucoup plus faible, typiquement d'un ordre de grandeur, on comprend bien que la puissance harmonique (et donc l'efficacité de conversion) peut, elle aussi, gagner un ordre de grandeur grâce à l'utilisation du guide.

A présent que l'on sait comment intervient cette intégrale de recouvrement dans l'expression de la puissance harmonique, et que l'on a l'expression du profil des champs, on peut alors calculer cette intégrale.

#### □ Calcul de l'intégrale de recouvrement

Le calcul de l'intégrale de recouvrement est important pour connaître l'efficacité d'un processus de génération de second harmonique, pour cela on repart de l'expression des

champs électrique pour les modes TE et TM en les normalisant. Nous présenterons ici le cas d'une interaction TM→TE mais les calculs sont aisément généralisables aux interactions :

TM→TM, TE→TE et TE→TM

L'expression de l'intégrale de recouvrement pour l'interaction TM→TE est la suivante[8] :

$$S_{eff}^{(m,m,n)} \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} H_y^{(m,\omega/2)} H_y^{(m,\omega/2)} E_y^{(n,\omega)} dz \quad (35)$$

Où  $H_y$  est le profil du champ fondamental et  $E_y$  est le profil harmonique, leur expression est donnée par (31) et (33).

Nous avons vu précédemment l'expression de l'amplitude du champ électrique pour un guide saut d'indice asymétrique. La condition de normalisation impose que :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} [E_y^{(m)}(z)]^2 dz = \frac{2\omega\mu}{\beta_m}$$

De même pour les modes TM on a :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} [H_y^{(m)}(z)]^2 dz = \frac{2\omega\epsilon_0 n^2(z)}{\beta_m}$$

On constate donc que l'expression de l'intégrale de recouvrement pour obtenir celle-ci en  $m^{-1/2}$  est :

$$S_{eff}^{(m,m,n)} \equiv \frac{1}{\left(\frac{2\omega_m \epsilon_0 n^2(z)}{\beta_m}\right) \left(\frac{2\omega_n \mu}{\beta_n}\right)^{1/2}} \int_{-\infty}^{+\infty} H_y^{(m,\omega/2)} H_y^{(m,\omega/2)} E_y^{(n,\omega)} dz \quad (36)$$

L'intégrale de recouvrement doit être maximale pour obtenir le meilleur taux de conversion. L'idéal est d'avoir un guide monomode de manière à éviter que l'énergie ne se répartisse dans plusieurs modes de propagation.

### 3.2.2. Accord de phase par dispersion modale

Le paragraphe 2.2 indique que les ondes fondamentale et harmonique doivent remplir la condition dite de l'accord de phase, c'est à dire que l'indice vu par l'une ou l'autre soit le même, ou bien que l'on compense ce désaccord par l'utilisation d'une structure périodiquement polarisée. Cependant, nous savons également (Cf. Paragraphe 5) que l'indice

vu par un mode de propagation dans un guide d'onde est différent de celui de la couche guidante. Les conditions de QAP ou de APB s'en trouvent donc perturbées. Nous allons étudier ici deux façons de réaliser malgré tout l'accord de phase et comment ce changement peut devenir un avantage.

Si l'on veut une GSH efficace il faut obéir à la condition  $\Delta k=0$ . Il est donc nécessaire d'avoir égalité entre les indices vus par les ondes fondamentale et harmonique.

Or (Cf. paragraphe 5) les indices des modes se propageant dans la structure guidante sont compris entre la valeur de l'indice de cette zone et l'indice le plus fort des milieux entourant cette couche. Dans la GSH en configuration guidée il s'agit alors bien entendu des indices effectifs. Si l'on trace la valeur des indices effectifs en fonction de la longueur d'onde comme on le voit sur la figure 8 on constate que les possibilités d'accord de phase sont nombreuses. Cependant il convient de rappeler que l'efficacité de conversion est très différente suivant l'interaction considérée et ceci à cause de la valeur de l'intégrale de recouvrement (Cf. 3.2.1) qui varie beaucoup. On sait par exemple que les interactions entre modes pairs et modes impairs sont fortement défavorisées. De plus, les pertes augmentent fortement en fonction de l'ordre du mode, et l'on peut faire l'hypothèse que l'interaction privilégiée dans nos guides est presque toujours l'interaction entre les modes d'ordre 0. Comme dans la figure 8 entre les modes  $TM_0(\omega)$  et  $TM_0(2\omega)$  (point A sur la figure 8).

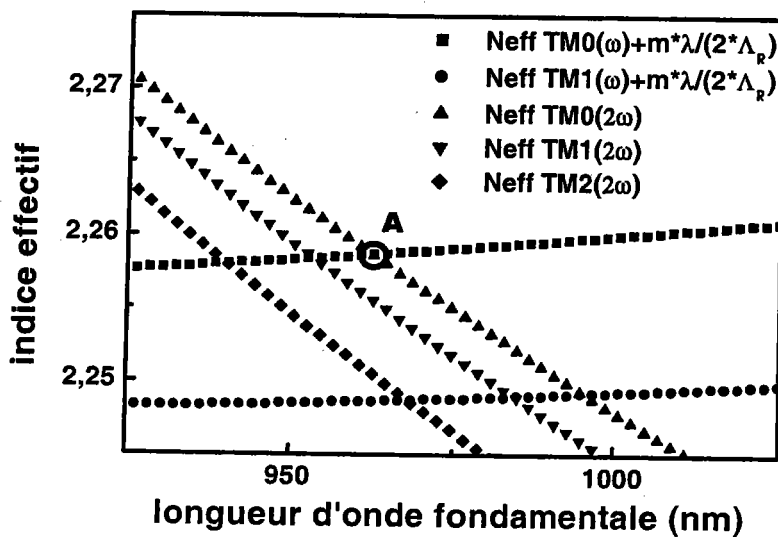


Figure 8 : Dispersion des indices effectifs dans un guide d'onde plan.

---

Les courbes de la figure 8 ont été tracées pour un guide PPLN :  $\text{He}^+$ ,  $\Lambda_R = 4,8 \mu\text{m}$ , épaisseur =  $3,4 \mu\text{m}$ , z-cut,  $\Delta n = 3 \cdot 10^{-2}$ . L'influence du quasi-accord de phase est donc prise en compte en plus de la dispersion modale. Ce terme apparaît sous la forme  $m\lambda/(2\Lambda_R)$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde pompe,  $m$  l'ordre du QAP (ici 1) et  $\Lambda_R$  est la périodicité de la structure (ici  $4,8 \mu\text{m}$ ).

Au vu de la figure 8, on comprend que l'un des intérêts de l'utilisation du guide peut être, par exemple, d'obtenir l'accord de phase à différentes longueurs d'onde, même si ces accords sont loin d'avoir tous la même efficacité pour les raisons citées précédemment.

## 4. Techniques de fabrication des guides d'ondes

L'utilisation des guides d'ondes dans les ferroélectriques pour l'électro-optique et l'optique non linéaire a stimulé les recherches dans ce domaine. Trois approches différentes ont été abordées pour réaliser les guides d'ondes. Les procédés physico-chimiques, la réalisation de films minces et la technique d'implantation. Cependant la deuxième approche ne fait à l'heure actuelle pas l'objet d'applications commercialisables. En effet que ce soit pour l'ablation laser, l'épitaxie en phase liquide ou d'autres techniques de nombreux problèmes restent à régler que ce soit en terme de rugosité de surface ou d'orientation du film.

Lors de la fabrication de guide d'onde par implantation ou par des procédés physico-chimiques, plusieurs facteurs peuvent influencer le changement d'indice. Le changement de la polarisabilité du matériau ( $\Delta\alpha$ ), l'expansion volumique ( $\Delta V$ ) ou les changements structuraux du matériau ( $\Delta\kappa$ ). En première approximation on peut dire que l'indice de réfraction  $n$  est lié à la polarisabilité et à la densité de particules par la relation de Clausius-Mossotti :

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = (1 - \kappa) \frac{N\alpha}{2\epsilon_0}$$

Où  $\alpha$  est la polarisabilité du matériau et  $N$  est la densité de particules.

Le paramètre  $\kappa$  est introduit pour tenir compte des changements structuraux de la maille cristalline [9]. Il tend vers 0 pour un matériau amorphe ou cubique et il est positif pour le  $\text{LiNbO}_3$ .

Si l'on effectue la différenciation de l'équation ci-dessus on obtient :

$$\frac{\Delta n}{n} = \frac{\left( \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right) \left( \frac{n^2 + 2}{n^2} \right) \left( -\frac{\Delta V}{V} + \frac{\Delta\alpha}{\alpha} + \frac{\Delta\kappa}{1 + \kappa} \right)}{6n}$$

Où  $V$  est le volume de matériau.

En supposant que  $\Delta N/N = -\Delta V/V$

On voit donc les trois paramètres qui peuvent influencer la variation de l'indice de réfraction lors d'un procédé de fabrication d'un guide d'onde que ce soit par un processus physico-chimique ou par implantation ionique.

## 4.1. Procédés physico-chimiques

### 4.1.1. Echange protonique.

#### Echange protonique avec recuit (« Annealed Proton Exchange » (APE))

Le procédé connu sous le nom de « annealed proton exchange » APE est à l'heure actuelle un des plus répandu pour la fabrication de guide d'onde dans le niobate de lithium. Le procédé standard commence avec la fabrication d'un masque sous forme de bandes sur une des faces du substrat (Al, Ta ou  $\text{SiO}_2$ ) par des procédés empruntés à la microélectronique. Le substrat est ensuite plongé dans un bain d'acide benzoïque à des températures proches de la température d'ébullition ( $249^\circ\text{C}$ ) pendant 15 à 90 min [10]. On obtient alors une couche de quelques micromètres suivant la durée de l'échange ou les ions  $\text{Li}^+$  sont substitués par des ions  $\text{H}^+$ . L'échange est alors suivi d'un recuit dans une atmosphère privée d' $\text{H}_2\text{O}$  ce qui transforme le guide initialement à saut d'indice en guide à gradient d'indice. La composition  $\text{Li}_{1-x}\text{H}_x\text{NbO}_3$  implique une série de changements structuraux dans lesquels le LN passe dans une phase  $\beta$  dite de haute concentration en protons qui implique de forte dégradation des propriétés optiques. C'est pourquoi on doit rétablir ces propriétés en procédant à un recuit à haute température pour rétablir la phase  $\alpha$ . [11]

Ce procédé de fabrication résulte en la variation positive de l'indice extraordinaire du LN tandis qu'une très faible variation négative de l'indice ordinaire est observée.

L'échange protonique comporte de nombreux avantages par rapport à la diffusion de titane, il est plus facile à réaliser ( $T=200^\circ\text{C}$  contre  $1100^\circ\text{C}$  pour la diffusion Ti) et surtout l'effet photoréfractif est beaucoup moins important dans les guides diffusés titane.

Ce procédé a cependant un inconvénient majeur pour les structures PPLN, en effet si les propriétés non linéaires sont en grande partie retrouvées après le recuit, le réseau PPLN est très dégradé voire complètement détruit.

#### Echange protonique doux (« Soft Proton Exchange ») SPE.

Chanvillard *et al* [11] ont exposé la méthode SPE qui consiste à utiliser des sources de protons moins agressives. Pour cela il faut savoir que lors d'un processus d'échange protonique, si l'on ajoute un pourcentage de benzoate de lithium dans le bain on peut modifier le taux d'échange entre les ions lithium et les protons. En dessous d'un certain seuil de concentration de benzoate de lithium, le taux d'échange est de 50% tandis qu'au-delà de ce seuil, le taux d'échange est de 20%. La grande différence est qu'avec un taux de substitution

de 20% il n'y a pas de changement de phase. On peut donc ainsi conserver à la fois les propriétés non linéaires mais également les propriétés du réseau de polarisation. Le problème principal réside dans la durée de cet échange qui peut aller jusqu'à trois jours. La variation d'indice extraordinaire est alors d'environ 0,03. De tels guides ont d'ores et déjà démontré leur capacité pour obtenir des taux de conversion par fluorescence paramétrique de 200%.W<sup>-1</sup> pour un échantillon de longueur effective de 13mm.

La comparaison a été réalisée avec des guides fabriqués par la technique APE classique (300°C pendant plusieurs heures suivi d'un recuit à 350°C pendant plusieurs heures). Pour cela de Micheli et al ont pratiqué un poli en biseau sur la surface de leur guide PPLN échangé protons. On constate alors que la zone échangée ne montre plus de structure PPLN pour le guide APE classique tandis que celle-ci est complètement préservée avec le guide fabriqué par SPE.

La durée de l'échange cependant pose certains problèmes technologiques, en effet pour un temps aussi long il persiste encore des progrès à réaliser pour obtenir des masques qui résistent aussi longtemps en milieux acides.

#### 4.1.2. Diffusion d'ions.

##### Diffusion de Titane.

La diffusion de Ti est utilisée principalement pour fabriquer des guides canaux car elle est assez facile à mettre en place. Il faut déposer des bandes de Ti sur la surface Z<sup>-</sup> de l'échantillon d'une centaine de nanomètres d'épaisseur. Il faut ensuite porter l'échantillon à une température d'environ 1000°C pendant plusieurs heures [12]. Le seul inconvénient est que l'on ne peut pas renverser les domaines sans enlever le film de LiO<sub>2</sub> sur la face Z<sup>+</sup> qui apparaît par exo diffusion en réaction à la diffusion de Ti. Il faut donc polir cette face de manière à enlever cette couche dans laquelle la polarisation spontanée a déjà été renversée.

##### Diffusion de Zn.

La diffusion de Zn pour créer des guides d'ondes suit le processus physique décrit pour la diffusion titane. Cantelar *et al* [13] et Domenech *et al* [14] ont ainsi réalisé des structures guidantes basées sur la diffusion de Zn en phase vapeur dans des substrats PPLN. Ces guides ont également été qualifiés par génération de second harmonique. Les taux de conversion restent cependant très faibles.

## 4.2. Fabrication de films minces

Radojevic *et al* [16] ont travaillé sur des couches minces de  $\text{LiNbO}_3$  PP fabriqués par une nouvelle méthode dite « crystal ion slicing ». Ce procédé consiste à irradier le cristal PPLN avec un faisceau d'ions puis à pratiquer une attaque acide qui va permettre de découper la partie du cristal comprise entre la surface et la zone où les ions se sont arrêtés dans le cristal, zone où la structure cristalline du matériau est en partie détruite. On obtient ainsi une couche mince qu'il faut redéposer sur un substrat.

Kawaguchi *et al* [17] ont rapporté récemment le fonctionnement d'un dispositif à QAP avec un guide d'onde fabriqué par croissance épitaxiale en phase liquide. Cette technique présente l'avantage de réaliser un guide canal au sein duquel on peut insérer des ions dopants notamment pour la résistance aux dommages optiques. Le guide ainsi fabriqué a ensuite été polarisé périodiquement avec un champ électrique faible.

La technique PLD (ablation laser) a permis d'obtenir des films minces de bonne qualité dans des matériaux divers. Pour les films minces de  $\text{LiNbO}_3$  Guo *et al* [18] rapportent la fabrication de films minces orientés selon l'axe c, et donc intéressant pour l'utilisation dans les dispositifs à QAP, en polarisant durant la croissance par application de champ électrique. Cette technique diffère des résultats déjà rapportés sur des films minces orientés de  $\text{LiNbO}_3$  par le fait qu'elle peut être appliquée pour différents substrats et notamment des semi-conducteurs ce qui permet d'envisager l'intégration avec des diodes lasers.

## 4.3. Implantation d'ions Légers ( $\text{He}^+$ , $\text{H}^+$ ).

### o Principe de la fabrication de guide d'onde par implantation :

Un guide d'onde plan est constitué de trois milieux dont celui d'indice le plus élevé est placé au centre. Les techniques d'échange ou de diffusion consistent donc à faire augmenter l'indice du substrat vierge par l'incorporation d'ions en surface. La technique d'implantation permet quant à elle de diminuer l'indice de la zone dite zone des dommages nucléaires où viennent se loger les ions bombardés sur le substrat.

Les ions du faisceau incident vont pénétrer dans le matériau en subissant une baisse de leur énergie cinétique par des multiples collisions avec les électrons et les noyaux de la matrice du matériau cible.

Paramètres principaux influençant l'implantation :

- La nature de l'ion :



Pour une même énergie, plus les ions sont légers et plus ils vont se loger profondément dans le substrat (pour une énergie cinétique équivalente). La variation de l'indice de réfraction et des dommages causés sur le trajet des ions est également fonction de leur nature.

- La nature du substrat :

La nature du substrat influence bien évidemment le processus d'implantation, en effet celui-ci ne réagit pas de la même façon à l'implantation, certains matériaux voient leur indice augmenté tandis que d'autres le voient diminué.

- La fluence :

La fluence (i.e. la quantité d'ions implantés par unité de surface) est peut être le paramètre le plus important. En effet on sait qu'il est fortement relié à la variation de l'indice de réfraction. On a déjà observé pour des faibles fluences des augmentations de l'indice de réfraction alors que de fortes fluences font diminuer le même indice.

- L'énergie des ions :

Plus l'énergie est importante et plus les ions vont se loger profondément, mais l'énergie affecte aussi la répartition en profondeur des ions.

- L'angle du faisceau incident :

L'angle entre le faisceau incident et la normale à la surface du substrat est, au même titre que l'énergie des ions, un paramètre qui détermine la profondeur de pénétration des ions. A noter cependant qu'elle joue également un rôle sur les effets de canalisation dans le substrat et cet angle sera toujours fixé au minimum à  $10^\circ$  pour éviter ces effets.

- La température du substrat :

Celle-ci doit être maintenue constante et proche de l'ambiante car il y aurait des effets de recuits incontrôlés qui perturberaient la répartition des ions.

#### o Description du dispositif (LPCML, Université Claude Bernard):

Le faisceau d'ions est fourni par un accélérateur de Van de Graaf constitué comme un accélérateur classique, c'est à dire que les ions sont créés dans une enceinte appelée source puis ils sont accélérés par des différences de potentiels. Ils sont ensuite sélectionnés en masse grâce à leur énergie cinétique. Ils viennent ensuite sur le substrat cible qui lui est disposé dans une chambre à température contrôlée.

### o Explication du phénomène

Lors de la pénétration des ions dans le matériau il y a interaction ions/matière [15]. Cette interaction a deux origines, les dommages nucléaires (nature Coulombienne) et les dommages électroniques (chocs élastiques). La perte d'énergie cinétique est donc la somme de ces deux processus :

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \left( \frac{\partial E}{\partial z} \right)_{elec.} + \left( \frac{\partial E}{\partial z} \right)_{nucl.}$$

Où E est l'énergie des ions incidents et z la direction de propagation du faisceau d'ions.

#### Interaction ions-électrons à grande vitesse (haute énergie)

Lorsque les ions pénètrent dans la cible si la vitesse est très supérieure à :

$$\frac{e^2}{h} = 2,2 \times 10^8 \text{ cm.s}^{-1}$$

Où e est la charge de l'électron et h la constante de planck.

L'ion incident peut transférer une partie de son énergie vers l'électron.

Bethe [19] montre que cette énergie peut être donnée par :

$$\left( \frac{\partial E}{\partial z} \right)_{elec} = -\frac{a}{E} \ln(b.E)$$

Où

$$E = \frac{1}{2}mv^2$$

$$a = 2\pi e^4 Z^2 N Z_c^2$$

$$b = \frac{4}{I}$$

V et Z : vitesse et numéro atomique de l'ion incident respectivement

N/ Le nombre d'atomes cibles considérés par unité de volume

Z<sub>c</sub> : numéro atomique de l'atome cible

I : Le potentiel moyen d'excitation des ions de la cible

Interaction Ions-électrons à faible vitesse (basse énergie) :

La théorie de Lindhard, Scharff et Schiott ([20] [21]) montre que pour des énergies inférieures à :

$$\frac{e^2}{h} = 2,2 \times 10^8 \text{ cm.s}^{-1}$$

La perte d'énergie par interaction ion -électron s'écrit :

$$\left( \frac{\partial E}{\partial z} \right)_{elec} = \rho K \varepsilon^{1/2}$$

où

$$\rho = \frac{(M + M_c)^2}{4\pi N a^2 M M_c}$$

$$\varepsilon = \frac{4\pi a \varepsilon_0 M_c}{(M + M_c) Z Z_c e^2} \cdot E$$

$$a = \frac{a_0}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2}}$$

$$K = \frac{0.0783 \cdot Z_1^{1/3} Z_2^{2/3} (M + M_c)^{3/2}}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{1/2} M^{3/2} Z_c^{1/2}}$$

$a_0$  : le rayon de Bohr ( $0,529 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$ )

$M$  et  $Z$  : Masse et numéro atomique de l'ion incident

$M_c$  et  $Z_c$  : Masse et numéro atomique de l'atome cible.

$z$  : Profondeur de l'ion incident

$e$  : charge élémentaire.

$\varepsilon_0$  : permittivité du vide.

Défauts nucléaires :

Enfin, à la fin de leur parcours, les ions entrent en collisions inélastiques avec les noyaux de la cible provoquant un déplacement de ces derniers :

D'après Lindhart *et al* [21] La perte d'énergie s'écrit alors :

$$\left(\frac{\partial E}{\partial z}\right)_{nucl.} = \frac{E\rho}{\epsilon z} \left(-\frac{\partial \epsilon}{\partial \rho}\right)$$

Lors de la pénétration des ions dans le matériau cible de nombreux processus contribuent à freiner les ions incidents et de nombreux défauts cristallins sont créés comme l'a montré Ould Salem *et al* [22]. Ils ne vont donc pas suivre le même parcours ni aller à la même profondeur. On peut cependant donner une expression du parcours moyen [23]:

$$R = \int_0^{E_0} \frac{dE}{\left(-\frac{dE}{dz}\right)_{total}}$$

En générale on peut approcher la distribution des ions par une Gaussienne. La concentration d'atomes au maximum de la distribution  $N_{max}$ , de  $R_p$  et  $\Delta R_p$  (écart type) de la manière suivante :

$$N(z) = N_{max} \exp\left(-\frac{(z - R_p)^2}{2\Delta R_p^2}\right)$$

$$N_{max} = \frac{D}{\Delta R_p \sqrt{2\pi}}$$

Où  $D$  est le nombre total d'atomes introduits par  $cm^2$  (la dose d'ions implantés) qui s'écrit :

$$D = \int_0^{+\infty} N(z) dz$$

La résolution de ce problème à fait l'objet de nombreux travaux ([24] [25]). C'est actuellement l'étude par le programme TRIM (TRansport of Ion in Matter) développé par Ziegler et Biersack [26] qui est le plus utilisé. Ce calcul est de type Monte-Carlo, i.e. le choc provient entre une particule au repos et une particule en mouvement.

Le programme TRIM nous renseigne sur :

- Le profil des pertes électroniques et nucléaires.
- Le profil des atomes déplacés (par ionisation ou par recul).
- Le profil des ions implantés.
- Le rendement de pulvérisation. (Ejection d'atomes de la surface lors du bombardement ionique).

### Motivations du choix de cette technique :

La technique de l'implantation ionique reste assez difficile à mettre en place car elle nécessite un appareillage lourd en comparaison à d'autres techniques d'échange ou de diffusion. On sait de plus que les guides d'ondes implantés comportent une source de perte supplémentaire due à l'effet tunnel optique (perte d'énergie à travers la barrière optique par effet tunnel). Cependant l'implantation donne accès à différents paramètres (fluence, énergie, nombre d'implantations, nature de l'ion) qui permettent de réaliser des guides d'ondes d'épaisseur et de variation d'indice désirés avec une grande précision. Par exemple en utilisant des protons à la place des ions He<sup>+</sup> on peut réaliser des guides plus épais de variation d'indice plus faible avec une fluence et une énergie identique. De plus les guides obtenus sont à quasi-saut d'indice ce qui rend plus prévisible la connaissance des modes qui se propagent dans la structure.

A l'heure actuelle les guides d'ondes diffusés titane ont été quasiment abandonnés pour la GSH dans les structures PPLN parce qu'ils induisent des effets photoréfractifs et dégradent la non linéarité de la partie guidante. Les guides diffusés Zinc ne comportent pas ce désavantage, mais ils sont cependant à l'heure actuelle assez mal maîtrisés et les taux de conversion restent très faibles. Seuls les guides fabriqués par échange protonique ont pour l'instant fait leur preuve en ce qui concerne la GSH par QAP. Cependant on ne sait, dans l'état actuel, pas réaliser de guides d'ondes canaux préservant parfaitement les non-linéarités et les réseaux PP.

La fabrication de couche mince pourrait apporter des solutions aux problèmes posés par les autres techniques. Cependant les pertes élevées ainsi que les difficultés technologiques liées à l'intégration de ces couches minces dans des dispositifs ne permettent pas pour l'instant de confirmer leur intérêt pour le doublage de fréquence.

L'implantation, quant à elle, a été reconnue comme une bonne méthode pour préserver les propriétés non-linéaires des cristaux implantés et elle présente à ce titre un grand intérêt pour la réalisation de modulateurs, de doubleurs ou plus généralement d'applications en optique intégrée. C'est pourquoi il nous a semblé intéressant de combiner l'implantation ionique avec les réseaux de QAP avec comme objectif à long terme d'améliorer les performances des cristaux doubleurs de fréquence.

## 5. Techniques de caractérisation et reconstruction du profil d'indice

Comme nous l'avons déjà dit précédemment, le but du travail présenté dans ce manuscrit est de combiner les guides d'ondes fabriqués par implantation avec les structures PPLN. Il convient donc de caractériser à la fois les structures PPLN et les guides d'ondes. Les structures périodiquement polarisées seront qualifiées grâce à des techniques présentées dans le chapitre 2. Nous allons en revanche nous intéresser dès à présent à la façon dont nous avons étudié les guides d'ondes fabriqués par implantation d' $\text{He}^+$ .

La technique choisie, la spectroscopie des lignes noires, ayant fait l'objet de nombreuses études, nous nous contenterons de présenter ici le dispositif expérimental et d'en exposer brièvement les principes. Nous terminerons en rappelant les méthodes qui permettent d'analyser les données ou même d'ajuster les courbes expérimentales que procure ce dispositif.

### 5.1. Spectroscopie des lignes noires

La méthode la plus courante et la plus utilisée pour caractériser les guides d'ondes à l'heure actuelle en optique intégrée est la spectroscopie des lignes noires décrite sur la figure 9. Cette méthode permet, comme nous allons le voir, de déterminer les indices effectifs ( $n_{\text{eff}}$ ) des modes se propageant à l'intérieur du guide. La détermination des valeurs des  $n_{\text{eff}}$  et donc des  $\beta$  permet de reconstruire le profil d'indice des guides, c'est à dire de connaître la valeur de l'indice de réfraction du matériau en fonction de la profondeur.

○ Montage expérimental :

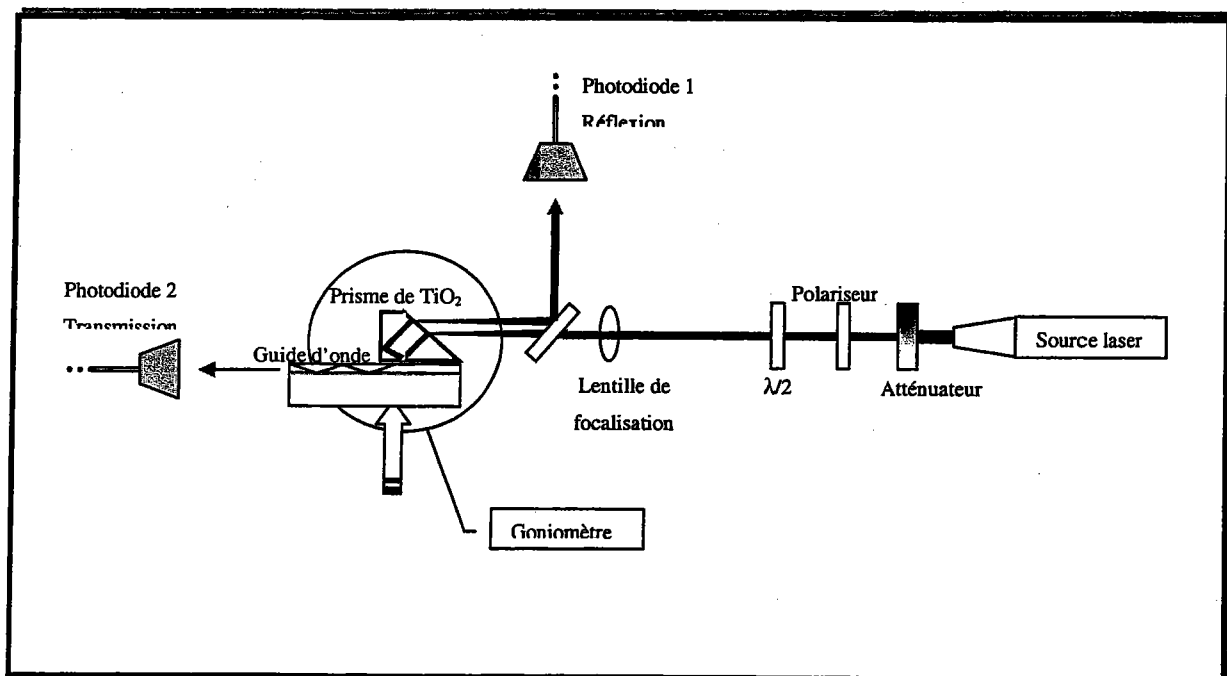


Figure 9 : Dispositif expérimental de spectroscopie des lignes noires.

Matériel :

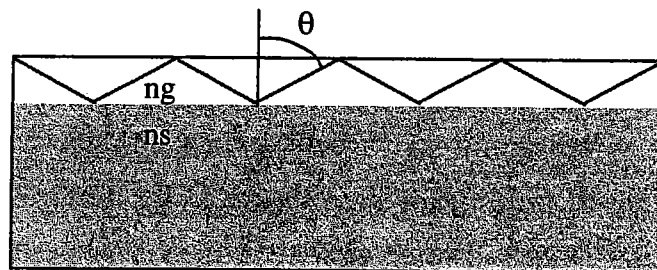
- Une source laser (plusieurs sources ont été utilisées pour étudier l'influence de la longueur d'onde sur les caractéristiques du guide, un laser argon (plusieurs raies entre 454 et 514nm), un laser He-Ne (632,8 nm) et un Ti :Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (accordable de façon continu entre 700 et 1000 nm)).
- Un jeu de filtres de densité (de manière à ne pas saturer la photodiode de mesure).
- Un diaphragme circulaire.
- Un polariseur.
- Une lame demi-onde (qui nous permet de modifier la polarisation du faisceau incident et donc de travailler soit en polarisation TE (transverse électrique) ou en polarisation TM (transverse magnétique)).
- Une lentille de focalisation.
- Une lame semi-réfléchissante.
- Un prisme de couplage en rutile.
- Un coupleur (pour maintenir l'ensemble prisme+guide d'onde) monté sur un système de translation xyz.

- Deux goniomètres reliés à des moteurs pas à pas.
- Deux photodiodes, une pour la référence (intensité de la source) et une pour la mesures (intensité réfléchié ou transmise suivant la configuration.)
- Un dispositif d'automatisation comprenant un ordinateur, une carte d'acquisition (pour les photodiodes) et un ensemble carte IEEE + indexeur rotateur (pour faire varier l'angle d'incidence sur le prisme)

o Principe de la mesure

Comme nous l'avons déjà vu au paragraphe 3.1 l'onde qui se propage dans le guide d'onde voit un indice de réfraction nommé indice effectif et dont la valeur  $n_{\text{eff}}$  est telle  $n_s < n_{\text{eff}} < n_g$  si  $n_s$  et  $n_g$  sont respectivement l'indice du substrat et du guide. De plus nous avons vu que pour une structure guidante et à une longueur d'onde donnée l'onde peut se propager en voyant  $(m+1)$  différentes valeurs de  $n_{\text{eff}}$  où  $m$  qui est un entier naturel appelé ordre du mode de propagation.

En réalité on sait qu'à chacun des modes guidés correspond un angle dit angle synchrone qui, si l'on fait l'approximation des rayons i.e. l'onde est guidée par réflexion totale sur les parois du guide, peut être représenté comme sur le schéma ci-dessous :



$$N_{\text{eff}} = n_g \cdot \sin(\theta)$$

On comprend donc que pour chaque  $n_{\text{eff}}$  correspond un  $\theta$  différent. Si l'on regarde le schéma du dispositif il suffit alors de faire varier l'angle d'incidence du faisceau sur le prisme (angle d'incidence externe) pour faire varier l'angle d'incidence sur le guide d'onde. Lorsque l'angle d'incidence externe correspond à l'angle  $\theta$  de propagation à l'intérieur du guide, alors le faisceau n'est pas complètement réfléchi par la base du prisme et une partie est couplée



dans le guide et ressort à l'extrémité de celui-ci. Dans ce cas de figure la photodiode 1 voit un creux d'intensité (figure 10) tandis que la photodiode 2 voit un pic d'intensité (figure 11).

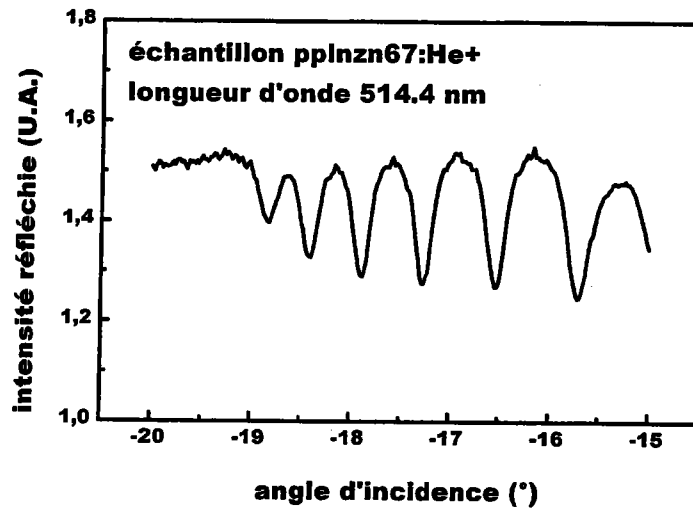


Figure10: spectre de ligne noire

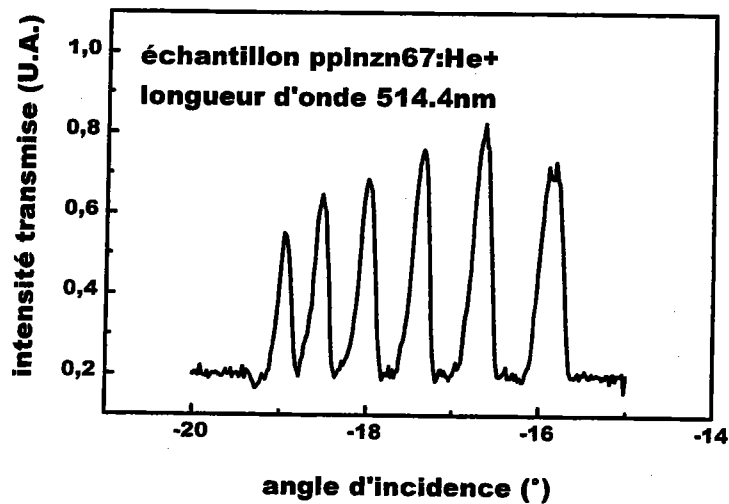


Figure11: Spectre de lignes brillantes.

Les spectres obtenus peuvent dès lors être analysés, pour cela on peut utiliser différentes méthodes. Nous allons nous intéresser principalement à deux méthodes, la méthode de la réflectivité qui nous permet d'ajuster le spectre de lignes noires obtenu et la méthode i-WKB basée quant à elle sur la seule connaissance des valeurs des indices effectifs des modes de propagation.

## 5.2. Méthode de la réflectivité

Cette méthode est basée sur les conditions de continuité des champs aux interfaces. Elle permet d'utiliser un profil arbitraire et de simuler le spectre de lignes noires qui serait obtenu pour ce profil.

Le détail des calculs utilisés pour réaliser le programme d'ajustement par la méthode de la réflectivité est extrait d'une étude de Mathey *et al* [27].

Cette méthode dite de la réflectivité permet entre autre de reconstruire un profil d'indice sur son intégralité. La méthode i-WKB permet quant à elle, de reconstruire le profil d'indice tant que celui-ci décroît. Dans le cas des guides implantés, l'indice décroît jusqu'à une valeur minimale puis remonte jusqu'à la valeur du substrat vierge. Cette remontée et par conséquent l'épaisseur de la barrière optique ne sont pas accessibles avec la méthode i-WKB.

Mathey *et al* [27] ont montré que pour calculer le coefficient de réflexion en intensité sur la base du prisme on peut utiliser une méthode qui est généralement appliquée pour étudier les multicouches. On décompose donc le profil d'indice en sectionnant le guide en épaisseur sur  $j$  couche d'indice constant ?

Dans cette méthode on part des relations qui lient le champ électrique  $e(z)$  et le champ magnétique  $h(z)$ :

$$h_j(z) = g_j e_j(z)$$

Avec

$$g_j = \frac{1}{\mu_0 c} \frac{k_j}{k} \text{ pour les modes TE} \quad g_j = \frac{n_j^2}{\mu_0 c} \frac{k_j}{k} \text{ pour les modes TM}$$

Les champs  $e_j(z)$  et  $h_j(z)$  sont reliés à  $e_{j+1}(z)$  et  $h_{j+1}(z)$  par la relation matricielle :

$$\begin{bmatrix} e(z) \\ h(z) \end{bmatrix} = [N_j] \begin{bmatrix} e(z+l_j) \\ h(z+l_j) \end{bmatrix}$$

Avec :

$$[N_j] = \begin{bmatrix} \cos(\beta_j) & \frac{i}{g_j} \sin(\beta_j) \\ i g_j \sin(\beta_j) & \cos(\beta_j) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} n_{1j} & n_{2j} \\ n_{21j} & n_{22j} \end{bmatrix}$$

$$\text{Où } \beta_j = k_j l_j$$

Le coefficient de réflexion en amplitude est alors donné par :

$$r = \frac{B_1 - g_0 n_{11} + g_0 g_{n+1} n_{12} - n_{21} - g_{n+1} n_{22}}{A_1 - g_0 n_{11} + g_0 g_{n+1} n_{12} + n_{21} + g_{n+1} n_{22}}$$

Où  $g_0$  et  $g_{n+1}$  sont respectivement l'admittance du milieu incident et l'admittance du substrat et  $n_{11}$ ,  $n_{12}$ ,  $n_{21}$  et  $n_{22}$  sont les coefficients de la matrice qui résultent de la multiplication des  $s$  matrices  $N_j$  :

$$[N] = \left[ \prod_{j=1}^s N_j \right] = \begin{bmatrix} n_{11} & n_{12} \\ n_{21} & n_{22} \end{bmatrix}$$

Le coefficient de réflexion en intensité est alors donné par :

$$R = |r|^2$$

De nombreux auteurs ont proposé des profils différents on peut notamment citer Chandler et Lama [28] qui proposent un profil constitué par deux Gaussiennes. Günter *et al* [29] ont également étudié un profil qu'ils ont adapté pour des guides implantés dans le  $\text{KNbO}_3$ . Nous avons quant à nous focalisé notre intérêt sur le profil dit de fermi proposé par Mathey *et al* [27].

Le profil d'indice choisi par Mathey *et al* [27] pour ajuster au mieux un profil d'indice correspondant à un guide d'onde implanté est la composition des deux fonctions suivantes :

$$n(z) = \left[ n_d + \frac{\Delta^2}{1 + \exp\left(\frac{z - h_f}{a}\right)} \right]^{1/2}$$

$$n(z) = \left( n_d - \sqrt{n_d^2 - \Delta^2} \right) \exp\left[ \frac{(z - h_b)^2}{\gamma} \right] + \sqrt{n_d^2 - \Delta^2}$$

Où  $n_d$ ,  $\Delta$ ,  $h_f$ ,  $\alpha$  et  $\gamma$  sont cinq paramètres dont on doit déterminer la valeur pour ajuster au mieux le spectre de lignes noires.

Le paramètre  $h_b$  est donné par :

$$h_b = h_f + \alpha \ln \left( \frac{\Delta^2 10^3 - 1}{2n_d} \right)$$

De manière à assurer la continuité des deux fonctions.

Le profil est dit « de Fermi » car basé sur une fonction de Fermi-Dirac :

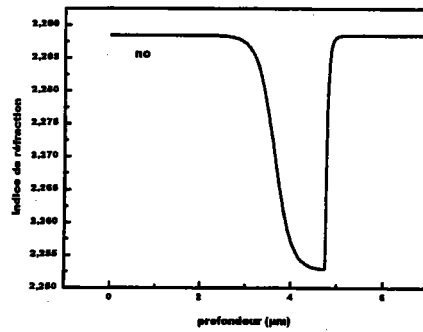


Figure 12 : Exemple d'un profil d'indice d'un guide implanté.

La figure 12 nous donne un exemple de profil que nous avons déterminé (grâce à un programme développé dans le cadre de cette thèse sur MATLAB 5.0) pour un guide implanté He+ dans un cristal PPLN de pas  $10\mu\text{m}$  fabriqué par une triple implantation à 1,6, 1,7 et 1,8 MeV avec des fluences de  $5.10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>. La figure 13 nous montre un très bon accord entre la courbe obtenue de façon expérimentale et l'ajustement théorique réalisé grâce au profil de la figure 9.

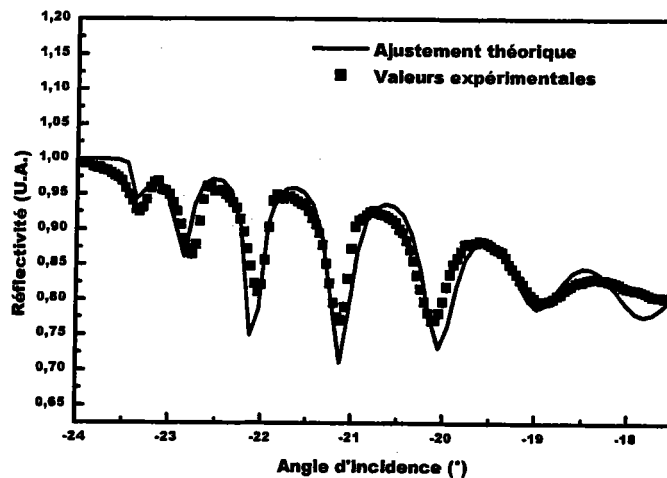


Figure 13 : Ajustement théorique d'un spectre de lignes noires par la méthode de la réflectivité.

Cette méthode présente cependant un grand inconvénient par rapport à la méthode i-WKB présentée dans la suite. Elle est beaucoup plus longue à appliquer. Ceci tenant au grand nombre de paramètres d'ajustement. Nous ne l'avons donc appliquée que pour certains guides. Ayant constaté que le profil TRIM nous permet de connaître l'épaisseur de la barrière optique avec assez de précision (ce qui était le principal avantage de la réflectivité sur la

méthode *i*-WKB), nous avons préféré nous contenter de la méthode *i*-WKB qui est détaillée dans la suite.

### 5.3. Méthode *i*-WKB

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 3.1, pour qu'une onde soit considérée comme guidée dans un guide à gradient d'indice symétrique elle doit satisfaire (24). Si nous considérons à présent un guide à gradient d'indice comme indiqué sur la figure 14 :

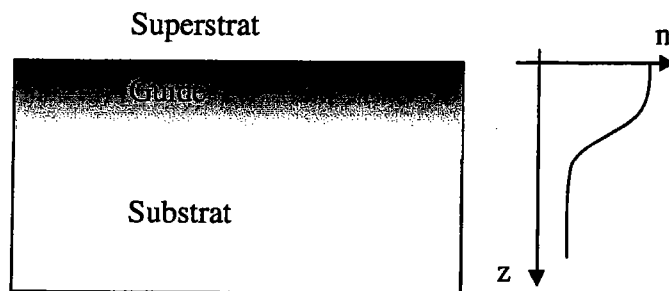


Figure 14 : Guide à gradient d'indice.

Alors cette équation s'écrit:

$$k \int_0^{x_1} \sqrt{n^2(z) - N_m^2(m)} . dz = m\pi + \frac{\pi}{4} + \text{arctg} \left\{ \left( \frac{n_0}{n_c} \right)^{2\rho} \left[ \frac{N_m^2 - n_c^2}{n_0^2 - N_m^2} \right]^{1/2} \right\} \quad (37)$$

$$\text{avec} \begin{cases} \rho = 0 & \text{pour les modes TE} \\ \rho = 1 & \text{pour les modes TM} \end{cases}$$

Où *m* est un entier naturel nommé ordre du mode.

*n*<sub>0</sub> est l'indice du guide à l'interface entre le guide et le superstrat.

*n*<sub>*c*</sub> est l'indice du superstrat

Cette équation est nommée équation de dispersion.

La méthode WKB a été développée par Wentzel, Kramers et Brillouin dans un premier temps pour les problèmes de potentiels continûment variable en mécanique quantique [30].

Il existe de grande similitude entre l'équation de Schrödinger d'une particule dans un puit de potentiel et l'équation de propagation d'une onde dans un guide plan. Dans ce cas le guide est considéré comme un puit de potentiel *V*(*z*)=*n*<sup>2</sup>(*z*). La méthode *i*-WKB est une méthode de reconstruction du profil d'indice basée sur la valeur des indices effectifs.

J.W. White *et al* [31] ont rapporté pour la première fois une approche de la reconstruction du profil par la méthode WKB inverse. Elle consiste à déterminer les points tournants qui sont associés à un couple :

$$N_m = n(z_m)$$

Avec

$$\begin{cases} z_0 = 0 \\ n(z_0) = n_0 \end{cases}$$

Où  $n_0$  est l'indice du guide en surface (interface guide/air)

On réécrit (37) sous la forme :

$$\sum_{k=1}^M \int_{z_{k-1}}^{z_k} [n^2(z) - N_m^2]^{1/2} dz = \frac{4m-1}{8}$$

En considérant que le déphasage subi par l'onde à l'interface air/guide est de  $\pi/2$ .

Si l'on considère le profil  $n(z)$  comme un ensemble de couples :

$$N_m = n(z_m)$$

Tels que :

$$n(z) = n_k + \left( \frac{n_{k-1} - n_k}{z_k - z_{k-1}} \right) (z_k - z) \quad z_{k-1} \leq z \leq z_k$$

La solution  $z_m$  s'écrit :

$$z_m = z_{m-1} + \left[ \left( \frac{3}{2} \right) \left( \frac{N_{m-1} + 3n_m}{2} \right)^{-1/2} (N_{m-1} - N_m)^{-1/2} \right] \times K$$

Avec

$$K = \left\{ \left( \frac{4m-1}{8} \right) - \frac{2}{3} \sum_{k=1}^{m-1} \left( \frac{z_k - z_{k-1}}{n_{k-1} - n_k} \right) \times \left[ (n_{k-1} - N_m)^{3/2} \right] - (n_k - N_m)^{3/2} \right\} \times \lambda$$

NB<sub>1</sub>: L'ordre des modes est décalé d'une unité ( $m=m+1$ ).

NB<sub>2</sub>: L'indice de la surface  $n_0$  doit être déterminé en minimisant la somme des surfaces de tous les triangles définis par  $[(N_k, z_k), (N_{k+1}, z_{k+1}), (N_{k+2}, z_{k+2})]$ .

NB<sub>3</sub>: On considère que si le nombre de modes guidés est  $>3$  alors on aura une très bonne approximation de  $n(z)$ .

En résumé cette méthode i-WKB va nous permettre d'obtenir un ensemble de couples indice effectif/épaisseur effective qui constituent le profil d'indice de notre guide. Nous pourrions ainsi en ajustant cet ensemble de couple de point par une fonction polynomiale obtenir une très bonne approximation de ce profil. Il est à noter que de nombreuses variantes de cette technique ont été proposées par la suite et notamment celle de Chiang *et al* [32] que nous avons utilisée dans notre programme de reconstruction de profil d'indice.

## 6. Conclusion

Le but de ce chapitre était donc de rappeler tous les principes nécessaires à la compréhension des résultats qui seront présentés dans les chapitres suivants. Nous avons pour cela rappelé les grands principes de l'optique non linéaire et de l'optique intégrée pour finalement combiner ces deux parties dans la GSH en configuration guidée. Cela a été également l'occasion de faire un rappel des techniques qui peuvent être employées pour fabriquer des guides d'ondes par exemple dans le niobate de lithium.

En dehors de la possibilité d'intégration ou de l'amélioration de la qualité du faisceau doublé, nous avons pu mettre en avant d'autres finalités de l'utilisation du guide d'onde telle la multiplication des possibilités d'accords de phase et bien évidemment l'augmentation du rendement de conversion. Le choix du procédé d'implantation pour réaliser nos guides a été motivé par le fait que cette technique a déjà montré ses capacités à conserver les propriétés optiques non linéaires des matériaux mais également parce qu'elle permet une très bonne maîtrise des paramètres optogéométriques du guide que l'on veut obtenir.

Le travail présenté ici doit donc montrer l'influence de l'irradiation par un faisceau d'ions sur une structure périodiquement polarisée. Nous devons en effet savoir si les ions incidents, de par les défauts qu'ils créent ou même le champ électrique qui leur est associé, ne vont pas détruire le réseau de QAP. La question réciproque de la réalisation de structure périodiquement polarisée dans un cristal LN implanté est également posée. Enfin il nous faudra déterminer si la génération de second harmonique par QAP est possible dans ces guides PPLN : He+.



## 7. Bibliographie

- [1] T.H. Maiman "Stimulated optical radiation in ruby masers" - Nature vol 187 (Août 1960).
- [2] Lorentz, H.A., 'Theory of electrons' (Teubner. Leipzig. 1909).
- [3] D.A. Kleinman, Phys. Rev. 126, 1977, (1967).
- [4] A. Yariv, P. Yeh, "Optical waves in crystals", John Wiley & Sons, (1984).
- [5] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, And P. S. Pershan. September 15, 1962/Vol. 127, No. 6/Phys. Review pp. 1918-1939.
- [6] M.M. Fejer, G.A. Magel, D.H. Jundt, and R.L. Byer, IEEE J. Quantum. Electron. QE-28, 2631-2654 (November 1992).
- [7] P.K. Tien, Appl. Opti., vol. 10, pp 2395-2413, Nov. 1971.
- [8] A. Yariv, I.E.E.E. journal of quantum electronics, vol.QE,No.9, September 1973.
- [9] Wei, D.T.Y., Lee, W.W., Bloom, L.R., Appl. Phys.Lett. 25, 329 (1974).
- [10] K. El Hadi, M. Sundheimer, P. Aschieri, P. Baldi, M. P. De Micheli, and D. B. Ostrowsky. F. Laurell. August 1, 1999/ Vol. 24, No 15/Optics Letters.
- [11] L. Chanvillard, P. Aschiéri, P. Baldi, D. B. Ostrowsky, and M. de Micheli, L. Huang and D. J. Bamford. February 28, 2000/Vol. 76, No. 9/Applied Physics Letters. pp. 1089-1091.
- [12] M. M. Fejer, M. J. F. Digonnet, and R. L. Byer, *Opt. Lett.* 13, 230-232 (April 1986).
- [13] E. Cantelar , R.E. Di Paolo , J.A. Sanz-Garcia , P.L. Pernas , R. Nevado , G. Lifante , F. Cusso. Volume 73, Issue 5-6, pp 515-517, Applied Physics B Lasers and Optics.
- [14] M. Domenech, R. E. Di Paolo, G. Lifante, and F. Cussó. Phys. Stat. Sol. (a) 192 No. 1, 135-138 (2002).
- [15] P.D. Townsend, Rep. Prog. Phys. Vol 50 (1987).
- [16] A. M. Radojevic, M. Levy, and R. M. Osgood, Jr. D. H. Hund. A. Kumar and H. Bekhru. July 15, 2000/Vol. 25, No. 14/Optics letters. pp. 1034-1036.
- [17] Tatsuo Kawaguchi, Kiminori Mizuuchi, Takashi Yoshino, Minoru Imaeda, Kazuhisa Yamamoto, Tsuguo Fukuda. Journal of crystal Growth 203 (1999) 173-178.
- [18] X. L. Guo, W. S. Hu, Z. G. Liu, S. N. Zhu, T. Yu, S. B. Xiong, C. Y. Lin. Materials Science and Engineering B53 (1998) 278-283.
- [19] H.A. Bethe, Z. Physik 76 (1938) 293.
- [20] J. Lindhart, M. Scharff, H. E. Schiott, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid.Selk 33 (1963)1.
- [21] J. Lindhart, M. Scharff, Phys. Rev. 124,128 (1961).
- [22] S. Ould Salem, thèse pour l'obtention du doctorat, Lyon I, (1995).

- 
- [23] P-N Favenne, CENT, Masson (1993). 'L'implantation ionique pour la microélectronique et l'optique'.
- [24] I. Manning, G.P. Mueller, *Comp. Phys. Comm.* 7(1974)85.
- [25] C.C. Narthediff and R.F. Schilling, *Nucl. Data Tables* 7(1970)233.
- [26] J.P. Biersach, J.F. Ziegler, U. Littmark, vol. 1, Pergammon Press., New York (1985).
- [27] P. Mathey, P. Jullien and J. L. Bolzinger. Vol. 12, No. 9/September 1995/*J. Opt. Soc. Am. B*
- [28] P. J. Chandler and F. L. Lama.
- [29] D. Fluck, D. H. Jundt, and P. Günter. M. Fleuster and Ch. Buchal. *J. Appl. Phys.* 74 (10), 15 November 1993.
- [30] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, 'Quantum Mechanics', Pergamon Press (1960).
- [31] J.W. White and P.F. Heidrich, *Appl. Opt.*, vol 15, pp. 151-155, 1976.
- [32] K.S. Chiang, *J. Lightwave Techno.* LT3, 385 (1985).

**Chapitre 2 :**  
**Fabrication et caractérisation**  
**de structures PPLN**

# SOMMAIRE

1	Introduction .....	49
2	Fabrication de structures périodiquement polarisées PP : état de l'art.....	50
2.1	Renversement de la polarisation.....	50
2.1.1	Polarisation durant la croissance.....	50
2.1.2	Polarisation post-croissance.....	51
2.2	Les matériaux pour le QAP .....	54
3	PPLN par application de champs électriques .....	55
3.1	Mécanisme de renversement de la polarisation.....	55
3.2	Description du procédé.....	61
3.2.1	Préparation des échantillons .....	61
3.2.2	Photolithographie : réalisation de réseaux d'électrodes .....	61
3.2.3	Présentation du dispositif expérimental.....	63
3.3	Fabrication .....	63
3.3.1	Etude préliminaire.....	64
3.3.2	Résultats de photolithographie sur niobate de lithium.....	67
3.3.3	Application de champs électriques .....	69
3.4	Contrôle et qualification des structures PPLN .....	74
3.4.1	Diffraction de rayons X .....	74
3.4.2	Attaque par acide fluorhydrique .....	74
3.4.3	Lumière polarisée .....	74
3.4.4	Etude micro Raman et luminescence.....	75
4	Conclusion .....	83
❖	Bibliographie .....	84

## 1 Introduction

Comme le chapitre précédent l'a montré, la conversion de fréquence par QAP nécessite une modulation périodique du coefficient non linéaire du matériau. Ce chapitre s'attachera à rappeler quelles sont les techniques qui permettent d'obtenir cette modulation et quelles sont les motivations qui ont guidé notre choix. Il nous appartient aussi de montrer pourquoi le niobate de lithium est un candidat idéal pour la réalisation de structures PP pour le QAP et quels sont les autres matériaux qui ont donné lieu à des travaux similaires.

On détaillera ensuite la réalisation de structures PPLN par application de champs électriques puisque c'est le matériau et la méthode que ont été utilisées expérimentalement. Puis nous décrirons le dispositif qui a été mis en place pour réaliser ces structures PP ainsi que toute la procédure qui a été établie en partant du substrat vierge jusqu'à la qualification de nos structures pour le QAP. Ce sera l'occasion de montrer les difficultés rencontrées pour parvenir à l'obtention de réseaux suffisamment homogènes pour la GSH. Le contrôle sera l'occasion de présenter, outre les résultats obtenus par des procédés classiques, une méthode originale qui a été développée au laboratoire MOPS grâce à l'utilisation du micro Raman ainsi que des phénomènes de luminescence associés aux défauts intrinsèques dans le niobate de lithium.

Enfin, nous montrerons que les résultats fournis grâce à cette nouvelle technique nous permettent de confirmer, voire d'approfondir les mécanismes de renversement de la polarisation dans le niobate de lithium. Et nous conclurons en faisant des suggestions afin d'améliorer l'homogénéité de nos structures tant au niveau de la longueur que du facteur de cycle.

## 2 Fabrication de structures périodiquement polarisées PP : état de l'art

### 2.1 Renversement de la polarisation

#### 2.1.1 Polarisation durant la croissance

Parmi les techniques de croissance de monocristaux, deux ont à l'heure actuelle permis de réaliser des structures PP : la LHPG (« laser heated pedestal growth ») et la méthode de Czochralsky. Nous allons nous contenter de les citer en rappelant simplement quelles sont les caractéristiques de ces techniques et comment elles ont été adaptées à la réalisation de réseaux pour le QAP.

#### “Laser Heated Pedestal Growth” (LHPG)

Cette méthode de croissance de fibre cristalline est basée sur la fusion par un laser  $\text{CO}_2$  à  $10.6 \mu\text{m}$  d'un barreau de poudre comprimée ou d'un barreau mono ou polycristallin du matériau à faire croître. Le tirage de la fibre cristalline va se faire par une technique proche de celle des fibres en silice classique. Les conditions du tirage (composition de l'atmosphère et vitesse du tirage) vont conditionner l'orientation du cristal obtenu[33]. Il est donc possible en faisant varier ces conditions de façon périodique d'obtenir des structures PP

#### Czochralsky

La méthode Czochralsky est la plus répandue pour la fabrication de monocristaux de grandes dimensions et de qualité optique. Comme toutes les autres techniques de croissance, celle-ci nécessite un contrôle précis des conditions de croissance si l'on désire obtenir la phase et l'orientation désirée. Bermudez *et al* [34] ont établi qu'une strie de croissance, provoquée par des variations locales de la composition, induit de part et d'autre de celle-ci deux domaines de polarisation spontanée opposés. Or pour obtenir ces stries de façon périodique ils ont utilisé une technique Czochralsky dite excentrée (« off-centered ») car le cristal en croissance ne tourne plus autour d'un axe centré sur le gradient de température, mais il s'écarte de cette position décrivant ainsi une ellipse. Ces variations créent donc des stries de façon périodique et, lors du refroidissement, des domaines de polarisations opposés.

Si l'on prend l'exemple du niobate de lithium dopé Yb, la direction de la polarisation est imposée par le gradient de concentration de Yb dans les stries de croissance. Cela

s'explique simplement par le fait que le soluté (Yb) est généralement ionisé lorsqu'il est dans le bain de croissance. Un champ de charge d'espace est donc associé à ce gradient de concentration de soluté. Ce champ, même faible, est suffisant pour orienter le cristal car l'on est alors proche de la température de Curie.

Les techniques de polarisation durant la croissance sont séduisantes car elles permettent d'obtenir un cristal directement utilisable après sa fabrication. Elles sont cependant difficiles à mettre en place et présentent une faible reproductibilité et des performances médiocres. C'est pourquoi on leur préfère des techniques de polarisations post-croissance.

### 2.1.2 Polarisation post-croissance

#### Chauffage du cristal près de la température de Curie

Il s'agit ici de recouvrir la surface +c de l'échantillon par un réseau de silice puis d'élever la température pour atteindre une valeur proche de la température de Curie. Cela provoque une exo-diffusion d'ions. Le défaut qui en résulte à l'intérieur du matériau a pour effet d'abaisser la température de Curie ce qui provoque le renversement de la polarisation.

Webjörn *et al* [35] ont fait des essais de GSH par QAP dans des structures réalisées par cette technique. Ils n'ont obtenu cependant que de faibles taux de conversion (env. 0.1%/W.cm<sup>2</sup>). Ils ont conclu que le renversement de domaine n'était pas réalisé assez profondément et il n'y avait donc pas une intégrale de recouvrement assez grande avec les modes optiques.

#### Echange protonique

La technique de l'échange protonique qui est également utilisée pour réaliser des guides d'ondes peut donner lieu à un renversement de la polarisation dans LiTaO<sub>3</sub> (LT) et LiNbO<sub>3</sub>. Mizuuchi *et al* [36] donnent une explication au phénomène de renversement de la polarisation basée sur la différence de vitesse de diffusion des ions. En effet, l'échange se fait par la substitution des ions Li<sup>+</sup> par les protons H<sup>+</sup> mais la diffusion des protons est plus rapide dans le substrat que celle des Li<sup>+</sup> dans le sens opposé, ce qui donne naissance à un champ électrique qui s'oppose à la polarisation spontanée et qui donne naissance à un renversement de celle-ci dans le traitement thermique qui suit l'échange [37].

## Diffusion de Titane

Le mécanisme de renversement de la polarisation par diffusion de Titane reste encore aujourd'hui très controversé. Ce que l'on peut dire c'est que comme l'échange protonique, il n'a lieu que sur la face z+ dans le  $\text{LiNbO}_3$ . Il est cependant établi que la faible capacité du Ti à diffuser sur la face z+ va engendrer une accumulation de Ti sur cette face. Peuzin [38] justifie ce processus en expliquant que le gradient de concentration de Ti va engendrer un champ de charge d'espace susceptible de renverser la polarisation spontanée car le fort dopage de Ti va abaisser la température de Curie [39].

Miyazawa *et al* [40] proposent une explication basée sur un gradient de la polarisation dû à une concentration en Ti qui varie en fonction de la profondeur. Ce phénomène crée un champ de charge d'espace qui s'oppose à la polarisation spontanée. La diffusion se fait à une température proche de la température de Curie et le champ coercitif à cette température est assez faible pour être inférieur au champ de charge d'espace du au gradient de concentration en Ti.

## Electron Beam Scanning

Cette méthode consiste à soumettre le cristal à un faisceau d'électrons qui « écrit » directement le réseau sur l'échantillon sans utilisation d'un masque comme c'est le cas pour le renversement de domaine par application de champs électriques. L'inversion de la polarisation s'effectue sur une distance 100 fois plus grande que celle de pénétration des électrons à l'intérieur du matériau. Cette technique de renversement de domaine a notamment été étudiée récemment par Restoin *et al* [41].

## Par décharge « Corona ».

En 1996, Harada *et al* [42] proposent une méthode de renversement de la polarisation par application de décharge électrique dite en couronne. Ils ont ainsi réalisé dans un échantillon de  $\text{MgO-LiNbO}_3$  (z-cut) un réseau de QAP de pas  $5.2\mu\text{m}$  de très bonne qualité. Il faut tout de même noter qu'ils n'ont pas pu reproduire leurs résultats avec le LN et le LT. Ce procédé a pour principal avantage d'obtenir un champ électrique homogène et donc une longueur effective d'interaction plus importante.



## Application de champ électrique

La méthode qui est à l'heure actuelle considérée comme la meilleure pour réaliser des réseaux de QAP est celle de l'application de champs électriques par l'intermédiaire d'électrodes déposées sur la surface de l'échantillon. Mais si le procédé semble simple, de nombreux facteurs peuvent influencer la qualité du réseau de QAP : comme la façon dont sont déposées les électrodes, la nature du liquide ou du gel chargé de réaliser le contact électrique, la nature des impulsions appliquées sur l'échantillon (tensions, courants ou durée) etc... [43]

C'est la méthode qui a été appliquée ici pour réaliser nos structures périodiquement polarisées. Elle sera donc détaillée dans la suite, lorsque nous présenterons le dispositif expérimental qui a été mis en place au laboratoire.

### « Backswitching »

Le terme anglais « backswitching », qui signifie littéralement retour dans son état initial, est utilisé pour décrire une technique dérivée de l'application de champ électrique classique. En effet, dans la méthode classique de polarisation par champ électrique, on soumet un réseau d'électrode en contact avec la surface du cristal à un champ légèrement supérieur au champ coercitif du matériau, jusqu'à ce que la polarisation soit inversée sous les électrodes et jusqu'à la face opposée du cristal. Puis on diminue lentement l'amplitude du champ électrique jusqu'à zéro (durée de la décroissance ~60ms pour LN), cela afin d'éviter un retour de la polarisation dans sa direction d'origine. Mais Shur *et al* [44] ont trouvé le moyen d'exploiter ce retour spontané de la polarisation dans sa direction initiale. L'impulsion appliquée sur l'échantillon est composé de trois phases distinctes. La phase I correspond au début de la nucléation des domaines inversés qui vont ensuite se propager dans la profondeur de l'échantillon. Durant la seconde phase les limites des domaines ont tendance à s'écarter au-delà des électrodes. Enfin, en phase III le champ électrique est ramené brutalement à zéro pour provoquer le retour spontané des domaines dans leur état de polarisation originelle. Cependant ce retournement ne se fait que sur les bords des électrodes ce qui permet de multiplier la fréquence spatiale du réseau d'électrodes. On obtient finalement un réseau de QAP de pas deux fois plus faible que celui du réseau d'électrodes déposé [45].

Comme nous venons de le voir il y a de nombreuses voies qui permettent d'obtenir des structures PP mais elles ne sont pas toutes adaptées à tous les matériaux usuels que nous

avons cités. C'est pourquoi dans le paragraphe suivant nous rappellerons de façon plus complète la liste des matériaux utilisés pour le quasi accord de phase.

## 2.2 Les matériaux pour le QAP

On a réalisé des structures périodiquement polarisées dans nombre de matériaux différents. Quelques travaux font état de réalisations dans des semi-conducteurs comme CdTe ou AlGaAs notamment [46].

Mais les recherches se sont principalement dirigées vers des matériaux diélectriques ferroélectriques. On peut citer notamment le  $\text{LiTaO}_3$  dont l'avantage est d'avoir un domaine de transparence qui s'étend vers les courtes longueurs d'onde. De plus il a des coefficients non linéaires importants et un haut seuil de dommage optique [47] [48].

De nombreux travaux ont également été faits avec le KTP. Ils ont même abouti à des composants commercialisés. Cependant le KTP possède une conductivité ionique élevée qui empêche le renversement de la polarisation par application de champs électriques. Pour résoudre ce problème, il faut donc procéder à un traitement physico-chimique préalable qui consiste à échanger les ions potassium par des ions Rubidium à la surface. Pour cela on met la face c- de l'échantillon en contact avec une solution de  $\text{RbNO}_3$  [49] [50]. En effet, la taille des ions de Rubidium est beaucoup plus importante que celle des ions Potassium et leur mobilité dans le cristal est donc plus faible. Partant de cette constatation, des auteurs ont travaillé sur le RTP ( $\text{RbTiOPO}_4$ ) et rapportent la fabrication de structures périodiquement polarisées dans un cristal de 3mm de long et de 0.7mm d'épaisseur [51].

*Risk et al* [49] ont réalisé des expériences de QAP dans le RTA ( $\text{RbTiOAsO}_4$ ). Le procédé de renversement de la polarisation spontanée proposé est celui de *Myers et al* [52]. Ils ont ainsi obtenu une longueur d'interaction de QAP de 4,1mm (ce qui est proche de la longueur de leur cristal qui est de 5mm) et un  $d_{\text{eff}}=15,6\text{pm/V}$  ce qui leur a permis d'obtenir 0,184mW pour une puissance de pompe de 284mW. Ils ont également effectué des essais de doublage en configuration guidée.

Cette liste est loin d'être exhaustive mais elle nous permet de voir l'effort fourni pour réaliser des structures PP dans différents matériaux pour des applications différentes : les sources lasers accordables (OPO), les sources laser U.V., les systèmes monolithiques complètement intégrés, etc.

Quant à nous, notre choix s'est orienté vers le  $\text{LiNbO}_3$  et ceci pour plusieurs raisons. Tout d'abord c'est un cristal commercialement disponible et peu cher. De plus, il est l'un de ceux qui a le coefficient non linéaire le plus important, ce qui est essentiel pour notre

application i.e. la génération de second harmonique par quasi accord de phase. Enfin ses propriétés (fabrication de guide, report sur silicium, dopage...) en font l'un des matériaux les plus prometteurs en optique intégrée.

### 3 PPLN par application de champs électriques

Ayant choisi d'utiliser la technique de l'application de champs électriques il nous appartient donc de détailler plus précisément cette technique tout en commençant par rappeler les études plus théoriques qui ont été réalisées sur le sujet.

#### 3.1 Mécanisme de renversement de la polarisation

##### Le niobate de lithium

La température de Curie du  $\text{LiNbO}_3$  dépend de sa composition. Elle est de  $1120^\circ\text{C}$  pour une composition congruente.

Si l'on excepte les défauts de stœchiométrie, à des températures inférieures à sa température de Curie, la structure du LN est celle d'un empilement de plans composés de 3 atomes d'oxygène, deux plans formant un hexagone. Ces hexagones sont remplis pour un tiers par des atomes de Lithium, pour un tiers par des atomes de Niobium et le reste étant du vide. Les  $\text{Nb}^{5+}$  sont au centre de l'octaèdre d'oxygène et les ions  $\text{Li}^+$  sont au centre des triangles d'oxygènes. En réalité la position des ions  $\text{Li}^+$  varie de  $0,037\text{ nm}$  autour des plans d'oxygènes. Dans la phase ferroélectrique, en dessous de la température de Curie, les ions  $\text{Nb}^{5+}$  et  $\text{Li}^+$  se déplacent dans la même direction perpendiculairement aux plans des oxygènes, mais les ions  $\text{Nb}^{5+}$  s'éloignent des ions  $\text{Li}^+$ . Le cristal possède alors une configuration asymétrique le long de l'axe  $c$ , avec pour conséquence la création d'un dipôle permanent (polarisation spontanée) le long de cet axe. La figure 15 nous donne une représentation en perspective de la phase para-électrique et ferro-électrique.

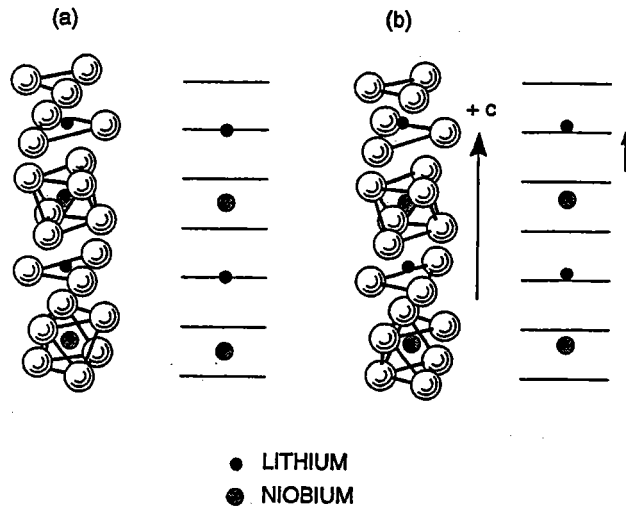


Figure 15: Position des atomes de Lithium et de Niobium par rapport aux plans Oxygènes dans le LiNbO<sub>3</sub> dans a) la phase para-électrique b) la phase ferro-électrique.

La LiNbO<sub>3</sub> cristallise dans un réseau rhomboédrique, mais on a coutume de le décrire suivant une maille hexagonale en considérant trois mailles rhomboédriques. Sa structure possède trois plans miroirs faisant un angle de 60° entre eux, il y a donc trois axes de symétrie autour de l'axe c (groupe de symétrie 3m) comme on peut le voir sur la figure 16.

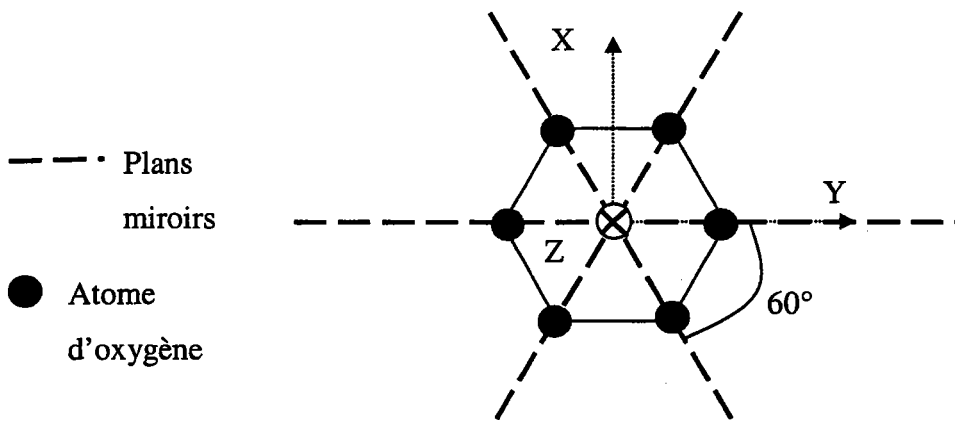


Figure 16 : Orientation des axes du LN.

Le sens de l'axe c est défini en imposant qu'une compression induit des charges négatives par effet piézoélectrique sur la face c+. Les propriétés tensorielles du LN sont décrites dans un système de coordonnées cartésiennes, l'axe z correspond à l'axe c, l'axe x est perpendiculaire à l'un des plans miroirs et l'axe y est donc contenu dans un des plans miroirs son sens est déterminé avec la même convention que l'axe z, et l'axe x est donné de telle sorte que le trièdre oxyz soit direct.

La face c+ (z+) du matériau est définie comme la face du coté des ions Li<sup>+</sup> et Nb<sup>5+</sup>. La fabrication de structures périodiquement polarisées consiste à réaliser une structure composée

de domaines ferroélectriques, où la polarisation spontanée est de sens opposé d'une zone à l'autre. Nous devons pour cela identifier les faces z+ des substrats, cela se fait en utilisant l'effet pyroélectrique.

## Modèle de Miller

Miller *et al* [54] ont fait une étude systématique des conditions expérimentales de réalisation de structures périodiquement polarisées dans le niobate de lithium. Ils ont essayé d'évaluer l'influence de divers paramètres tels que la valeur de la tension appliquée, le nombre de centres de nucléation par unité de surface, la taille des domaines renversés (en profondeur et en diamètre), l'influence de l'électrolyte utilisé ou de la nature des électrodes... En parallèle de ces mesures expérimentales ils ont développé un algorithme de calcul qui leur permet de prévoir la répartition du champ appliqué dans le cristal en fonction de la géométrie des électrodes. Miller *et al* ont ainsi pu obtenir trois résultats qui sont particulièrement intéressants pour nous et que nous allons rappeler ici :

- Un mécanisme par étape

A partir de leur calcul de la répartition du champ électrique et de la détermination de sa valeur optimale, Miller *et al* ont établi leur modèle sur la base de cinq hypothèses :

1. Les domaines sont perpendiculaires à Ox.
2. Le mouvement transversal des murs de domaines est gouverné par la composante Ez du champ électrique appliqué.
3. La vitesse de propagation transversale des murs de domaine et le champ électrique sont les mêmes partout dans le cristal.
4. La nucléation apparaît uniquement au niveau des bords des électrodes.
5. La conductivité ionique est négligée dans tout le volume du cristal.

Ils ont ainsi pu décrire la cinétique de création et de propagation des domaines. Ils présentent un mécanisme composé de plusieurs phases lors de la formation d'un réseau de domaines de polarisation alternée.

Tout d'abord le début du renversement de la polarisation commence sur les bords des électrodes (figure 17). Cette étape est également appelée nucléation des domaines. Les domaines de polarisation inverse ainsi créés ont une forme conique avec une base hexagonale. Ils se propagent sous cette forme jusqu'à la face opposée du cristal où la pointe prend une forme hexagonale qui atteint très rapidement la taille de la base de la face opposée (figure 17

étape B ). Le domaine a alors une forme tubulaire avec une section hexagonale (figure 17 étape C). Les domaines se propagent alors dans la direction perpendiculaire à celle de l'application du champ en priorité sous les électrodes (figure 17 étape D) puis de part et d'autre des électrodes (figure 17 étape E).

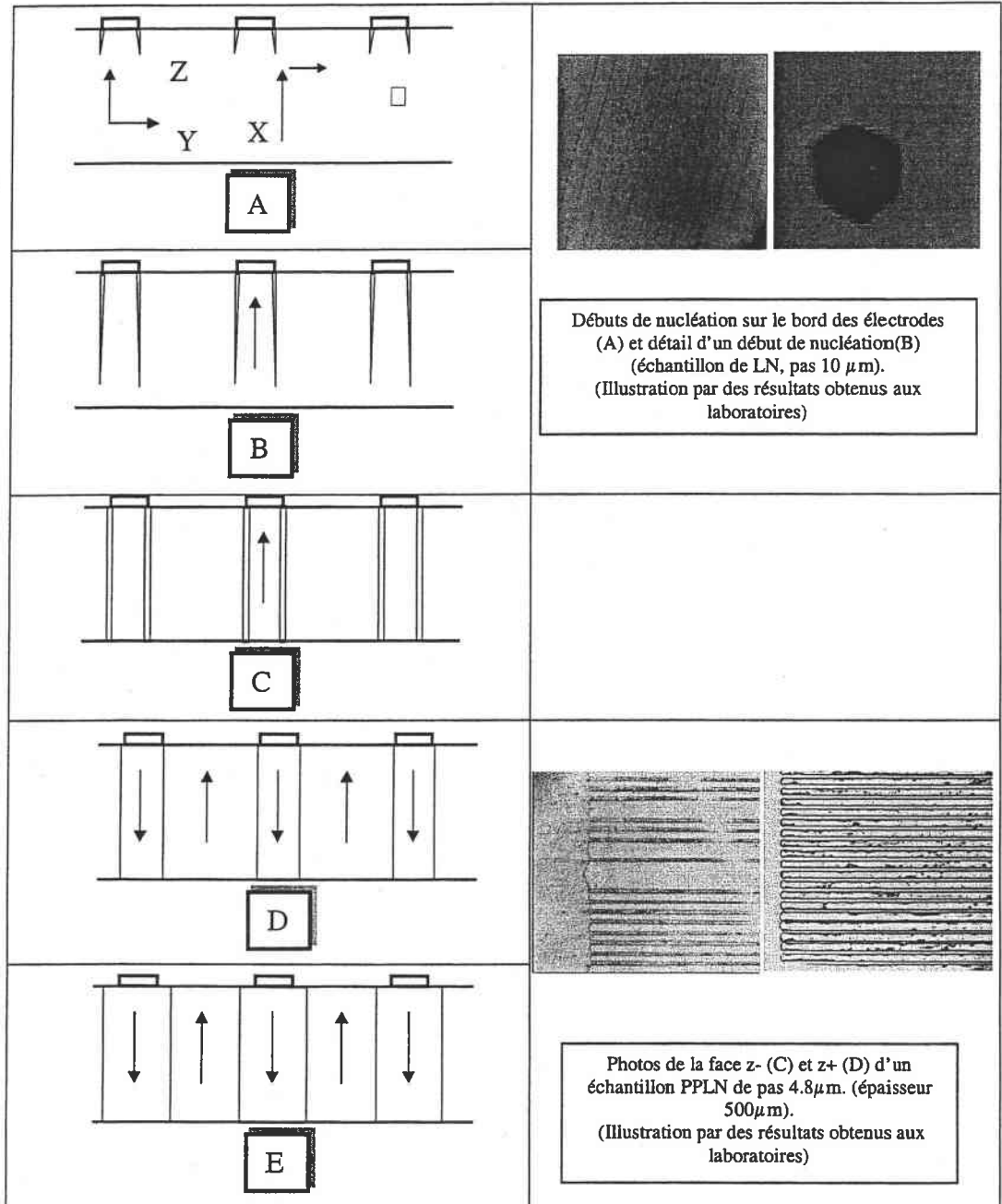
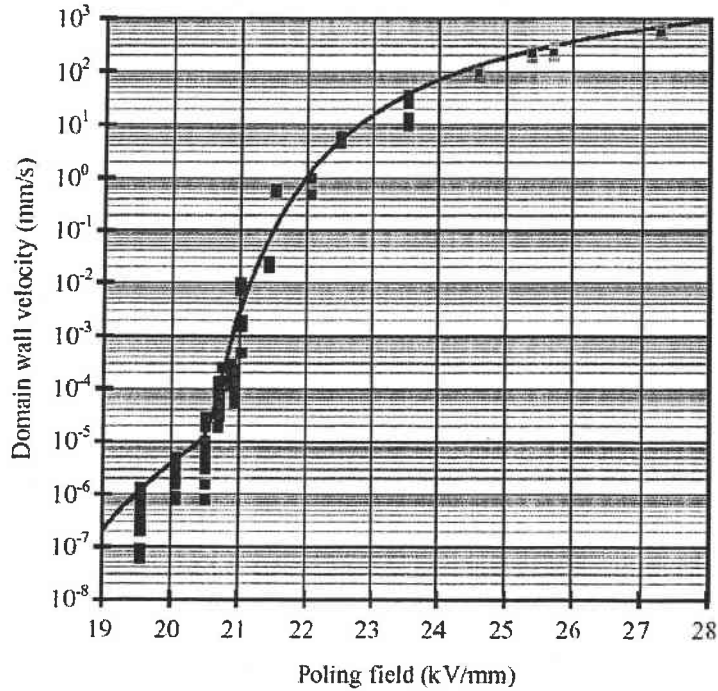


Figure 17 : Le renversement de la polarisation : un mécanisme par étapes [54].

- A quelle valeur de champ doit-on travailler ?

Ils ont établi la vitesse de propagation des murs des domaines en fonction de l'amplitude du champ en faisant varier la valeur du champ électrique de 10kV/mm à 30kV/mm (Cf. figure 18).



**Figure 18: Vitesse de propagation des murs de domaines en fonction de la magnitude du champ appliqué (figure extraite de [54]).**

L'ajustement des mesures expérimentales a été réalisé en utilisant la fonction donnée par l'équation suivante [54]:

$$v(E) = \Phi(E - E_1) v_1 \exp\left(-\frac{\delta_1 E_1}{E - E_1}\right) + \Phi(E - E_2) v_2 \exp\left(-\frac{\delta_2 E_2}{E - E_2}\right) \tag{38}$$

Où  $\Phi$  est la fonction de Heaviside et les paramètres d'ajustement correspondant à la courbe de la figure 18 pour (38) sont donnés dans le tableau 3:

$E_1 = 19,4 \text{ kV/mm}$	$E_2 = 15,0 \text{ kV/mm}$
$v_1 = 16,3 \text{ m/sec}$	$v_2 = 362 \text{ } \mu\text{m/sec}$
$\delta_1 = 1,29$	$\delta_2 = 13,83$

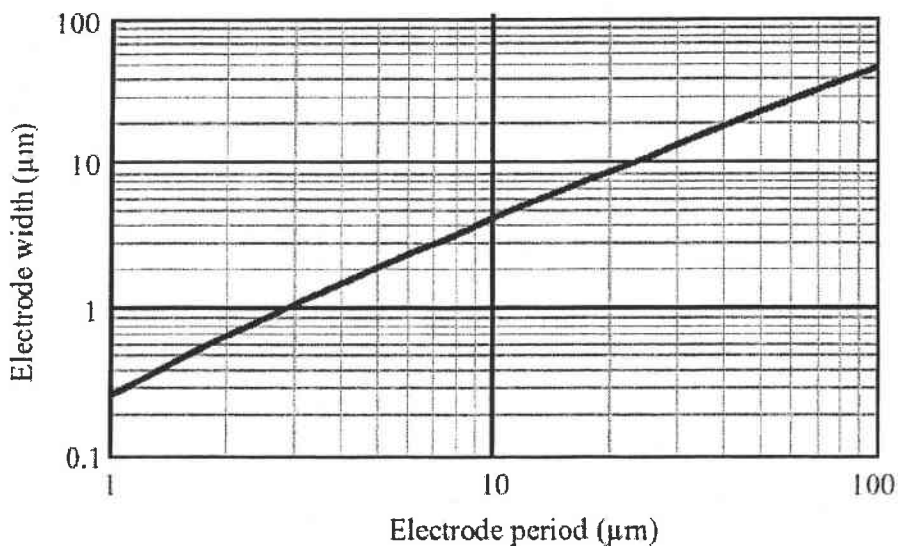
**Tableau 3 : Paramètres d'ajustements de (38) pour la courbe de la figure 18.**

On constate que sur la courbe de la figure 18 qu'il apparaît un point d'inflexion à la valeur de 20,75kV/mm. C'est à cette valeur du champ que la propagation des domaines est le plus sensible aux variations de ce champ. L'idée est de travailler avec une valeur du champ

qui permette l'auto terminaison du renversement périodique de la polarisation. Lorsque les domaines croissent au delà des électrodes il y a un dépôt de charge qui se fait en surface. Ces charges diminuent la valeur du champ dans le matériau. Le mécanisme de renversement de la polarisation s'arrête. A la valeur de  $20,75\text{kV/mm}$  on obtient donc une structure périodiquement polarisée sans pour autant que les domaines se propagent latéralement jusqu'à la coalescence et donc le renversement complet de la polarisation spontanée.

- Quelles électrodes, pour quelles périodes ?

Enfin, l'un des résultats les plus utiles du modèle développé par Miller est l'obtention d'une loi qui prévoit la géométrie des électrodes (plus précisément leur facteur de cycle) suivant le pas du réseau désiré pour obtenir une structure PPLN avec un facteur de cycle de 50%.



**Figure 19 : Facteur de cycle nécessaire des électrodes pour l'obtention d'un réseau PP de facteur de cycle 50% en fonction du pas de réseau désiré (figure extraite de [54]).**

Dans le cadre de ce travail notre but est de réaliser des structures PPLN de pas  $4,8\mu\text{m}$  avec un facteur de cycle de 50%. La figure 19 nous indique que pour obtenir un tel résultat nous devons utiliser un réseau d'électrode de pas  $4,8\mu\text{m}$  bien entendu mais avec des électrodes d'environ  $2\mu\text{m}$  de largeur.



## **3.2 Description du procédé**

L'ensemble des travaux qui concerne le nettoyage des échantillons et la réalisation d'électrodes d'aluminium ou en résine ont été réalisés au LPMIA de l'Université Henri Poincaré de Nancy.

### **3.2.1 Préparation des échantillons**

Nos substrats de niobate de lithium proviennent de NEYCO SA.

Le nettoyage est une étape cruciale si l'on veut obtenir des réseaux d'électrodes de bonne qualité et donc des structures PPLN régulières. Nous avons essayé de réaliser des nettoyages par plasma d'oxygène mais cela ne nous a pas permis d'améliorer la qualité des réseaux. De plus, si cette technique permet de graver physiquement le cristal sur une très faible épaisseur elle ne permet pas de détruire les impuretés qui se déposent en surface lors de cette étape. En ce qui nous concerne, le résultat a été plutôt négatif.

Nous avons donc préféré effectuer un nettoyage chimique qui se déroule suivant quatre étapes :

Acétone plus cuve à ultrasons pendant 3mn

H<sub>2</sub>O + cuve à ultrasons pendant 3 mn.

Isopropanol + Cuve à ultrasons pendant 3mn.

Séchage à l'azote.

### **3.2.2 Photolithographie : réalisation de réseaux d'électrodes**

Si l'on veut réaliser une structure PPLN il faut avant tout réaliser un réseau d'électrode sur un substrat considéré comme mono-domaine (le vecteur polarisation spontanée est supposé le même partout). Différentes techniques peuvent être appliquées pour réaliser ce réseau d'électrodes. On peut en effet se contenter d'un réseau de résine qui protège les substrats puis l'on vient faire le contact électrique grâce à un électrolyte liquide ou sous forme de gel. Mais on peut également réaliser des électrodes métalliques que ce soit par le procédé « lift off » ou celui de la gravure à l'acide.

L'étude du procédé de réalisation de réseaux d'électrodes par photolithographie sur le niobate de lithium bien que bien connu à présent n'avait jamais été réalisée au laboratoire. La détermination des conditions optimales, mais également de la procédure la plus adaptée, a constitué une part importante de ce travail.

**Dépôt de la résine (Cf. ANNEXE 2)**

Pour déposer la résine de façon homogène sur l'échantillon, on utilise une tournette. Les paramètres sont : vitesse de rotation : 2000 tours/mn et durée du dépôt : 30s.

Dans ces conditions la résine positive 18/13 de chez Shipley se dépose sur une épaisseur de  $1,3\mu\text{m}$  environ.

Puis après le dépôt la résine est séchée pendant 2mn à  $115^{\circ}\text{C}$ .

Après cette phase de séchage, l'échantillon doit rester quelques minutes à l'air pour se refroidir. En effet, le déposer tout de suite sur le dispositif d'insolation provoque un choc thermique suffisant pour le briser.

**Insolation et révélation :**

Cette phase d'insolation dépend grandement du type de réseau et surtout du pas du réseau que l'on désire réaliser. En effet pour des faibles pas, comme c'est notre cas, et avec un matériau comme le niobate de lithium qui est transparent et qui a donc une tendance naturelle à la surinsolation à cause des réflexions sur la face opposée à celle recouverte par la résine.

La durée de la révélation est également critique, car si celle-ci est trop courte, il reste de la résine au fond du motif et, si elle est trop longue, le motif qui est surinsolé comme on l'a dit va être beaucoup trop fin et l'on n'aura pas le facteur de cycle désiré.

Les paramètres qui ont été appliqués pour réaliser le pas de  $4,8\mu\text{m}$  sont les suivants:

Temps d'insolation : 4s

Temps de révélation : 60s

**Réalisation d'un réseau d'Aluminium par « lift-off » (Cf. ANNEXE 3)**

Le « lift-off » implique de réaliser, dans un premier temps, un réseau de résine, on dépose ensuite sur ce réseau de résine une couche d'aluminium. Pour les dépôts de résine dans les conditions ci-dessus, on n'a pas réussi à obtenir des réseaux d'aluminium de bonne qualité par « lift off » pour des épaisseurs d'aluminium de plus de 150nm.

**Réalisation de réseaux d'aluminium par gravure (Cf. ANNEXE 4)**

Pour la gravure, il faut déposer l'aluminium puis le réseau de résine qui va servir cette fois-ci de protecteur pour le dépôt d'aluminium. En effet, on va ensuite plonger le substrat dans un mélange  $\text{HNO}_3+\text{H}_2\text{O}$  à 50/50 qui va graver l'aluminium qui n'est pas protégé par la résine ; cette technique a l'avantage de pouvoir faire des dépôts plus épais, mais il faut faire

attention à stopper la gravure au bon moment sinon on obtiendra un motif d'aluminium de mauvaise qualité.

### 3.2.3 Présentation du dispositif expérimental

Le dispositif de renversement de la polarisation par application de champ électrique comprend une cellule de polarisation en plexiglas avec l'échantillon électrodé et l'électrolyte. Un amplificateur de tension modèle Trek nous permet d'obtenir des valeurs de tension jusqu'à 30kV, la tension étant quant à elle générée par une carte DAQ permettant de générer une tension avec la forme désirée. (Celle-ci doit respecter les différentes étapes décrites ci-dessus). Enfin un oscilloscope modèle Lecroy nous permet de visualiser la tension et le courant délivré sur l'échantillon. La photo de la figure 20 ci-dessous représente l'ensemble du dispositif.

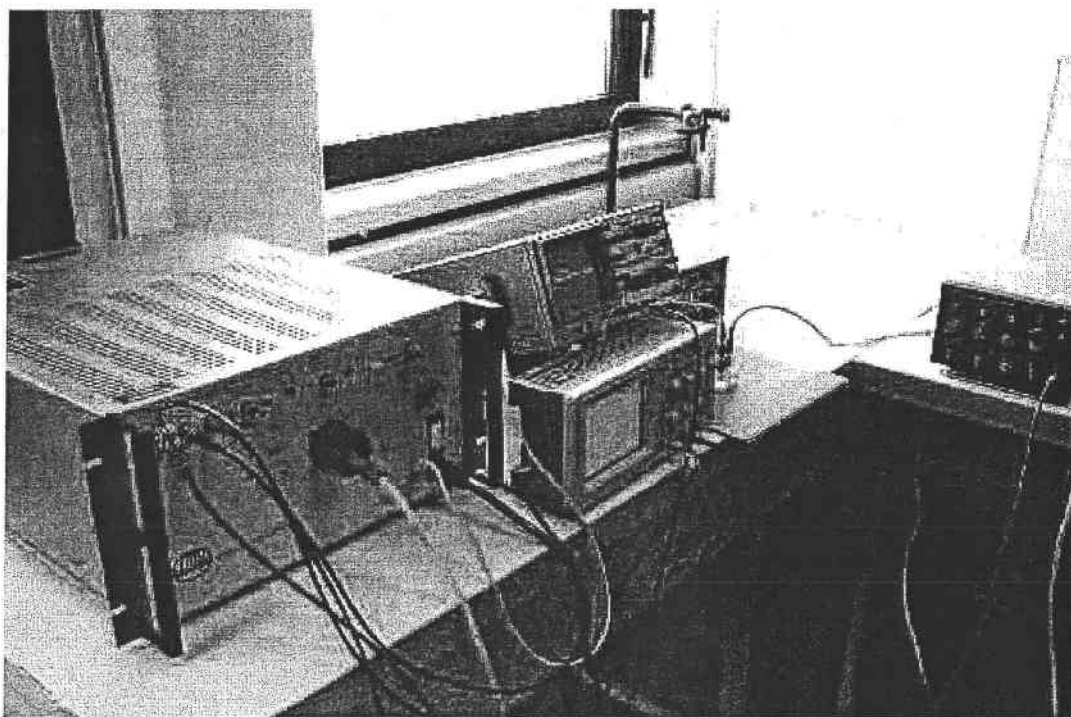


Figure 20: Montage expérimental de renversement de la polarisation.

## 3.3 Fabrication

Avant de passer à l'étape de renversement périodique de la polarisation périodique, nous devons effectuer un certain nombre de vérifications et de mesures sur nos substrats. En effet, nous avons vu que l'orientation du cristal notamment est très importante. De plus il est indispensable d'identifier les faces des substrats pour savoir sur laquelle on doit réaliser les

réseaux d'électrodes. Enfin, des mesures de champ coercitif et de polarisation spontanée (qui peuvent dépendre de la provenance des cristaux) nous permettront de déterminer le champ à appliquer et également la charge que nous devons délivrer lors de l'application de champ électrique.

### 3.3.1 Etude préliminaire

#### Orientation des cristaux

L'orientation des électrodes vis à vis des axes du cristal a déjà fait l'objet d'étude par d'autres équipes de recherche de par le monde, nous avons nous même tenté de faire varier l'angle de ces électrodes par rapport aux axes OX et OY de nos substrats de LN. La direction qui nous a permis d'obtenir les meilleurs résultats reste l'orientation des électrodes parallèlement à OY. Miller [54] justifie cela car c'est selon cette direction que la propagation des murs de domaines se fait le plus rapidement. Les substrats fournis par NEYCO étaient préalablement orientés, mais nous avons vérifié nous même cette orientation par diffraction X.

#### Identification des faces

Lorsqu'il y a modification de la température d'un cristal de niobate de lithium, il y a déplacement des ions lithium et niobium par rapport aux plans d'oxygène. Ce déplacement de charge se traduit par l'apparition d'un courant au sein de ce cristal. Plus précisément, la face z+ devient moins positive lorsque la température augmente (augmentation du désordre au sein de la structure cristalline) ce qui se traduit par une baisse de la polarisation spontanée du niobate de lithium (le cristal devient moins ferroélectrique.) Le changement de cette polarisation spontanée est linéaire avec la variation de température. Il est de l'ordre de  $4 \cdot 10^{-5}$  C/K .cm<sup>2</sup> [53].

Le courant dû à l'effet pyroélectrique s'exprime sous la forme :

$$\vec{j} = - \frac{d\vec{P}_s}{dt} = - \left( \frac{d\vec{P}_s}{dT} \right) \left( \frac{dT}{dt} \right)$$

Où  $P_s$  est la polarisation spontanée du cristal.

Un simple montage constitué de deux électrodes disposées sur les faces  $z+$  et  $z-$  d'un substrat et reliées à un ampèremètre permet, lors de l'élévation de température du cristal, d'identifier chaque face par le signe du courant délivré.

### Mesure du champ coercitif et de la polarisation spontanée

Avant de passer à l'étape du renversement périodique de la polarisation nous nous sommes intéressés à la polarisation d'un échantillon de niobate de lithium sous forme d'un disque de 1,5 cm de diamètre (épaisseur  $500\mu\text{m}$ ). Nous utilisons pour cela une cellule remplie de chlorure de lithium comme contact. Ceci nous a permis de tracer une boucle d'hystérésis de la polarisation spontanée de nos cristaux de niobate de lithium. Pour cela on applique avec le dispositif de la figure 29 une rampe de tension très longue (2s) qui va de 0 à 12kV et l'on mesure en concordance le courant délivré par notre générateur. On connaît ainsi la charge délivrée pour renverser la polarisation et donc la valeur de celle-ci, la courbe nous permet également de déterminer le champ coercitif ou le champ nécessaire pour renverser la polarisation spontanée. On constate sur la figure 21 que le courant maximal observé est d'environ 20 mA.

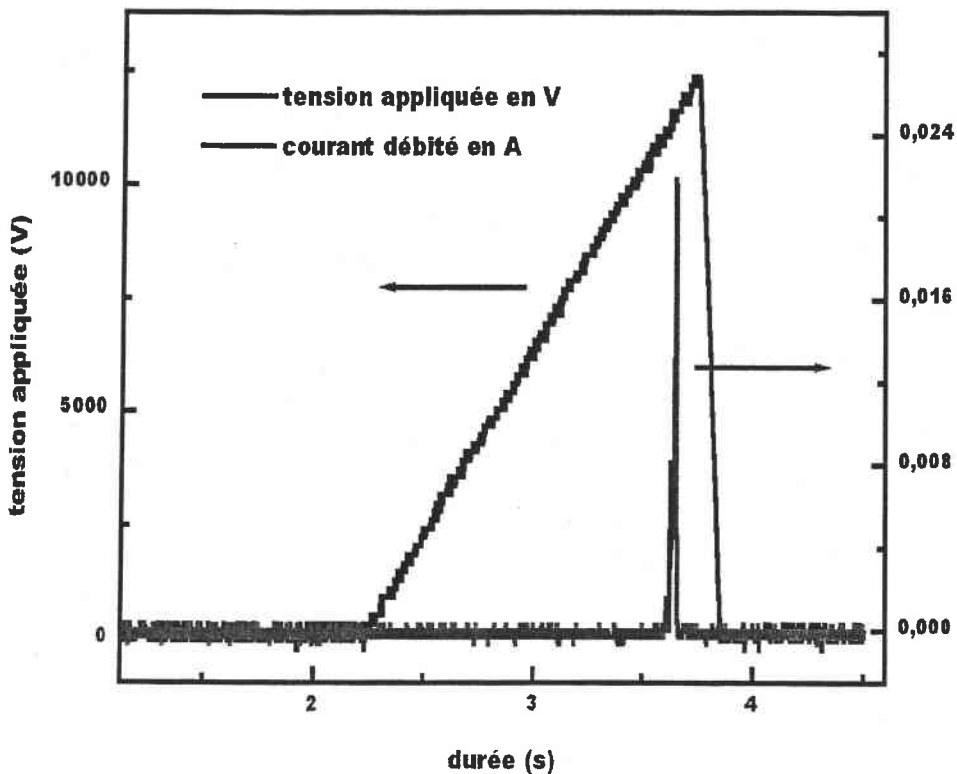


Figure 21: Tension appliquée et courant correspondant lors de la polarisation d'une surface de  $1.8\text{ cm}^2$ , épaisseur du substrat :  $500\mu\text{m}$ .

La figure 22 nous montre la valeur de la polarisation spontanée en fonction de la tension appliquée.

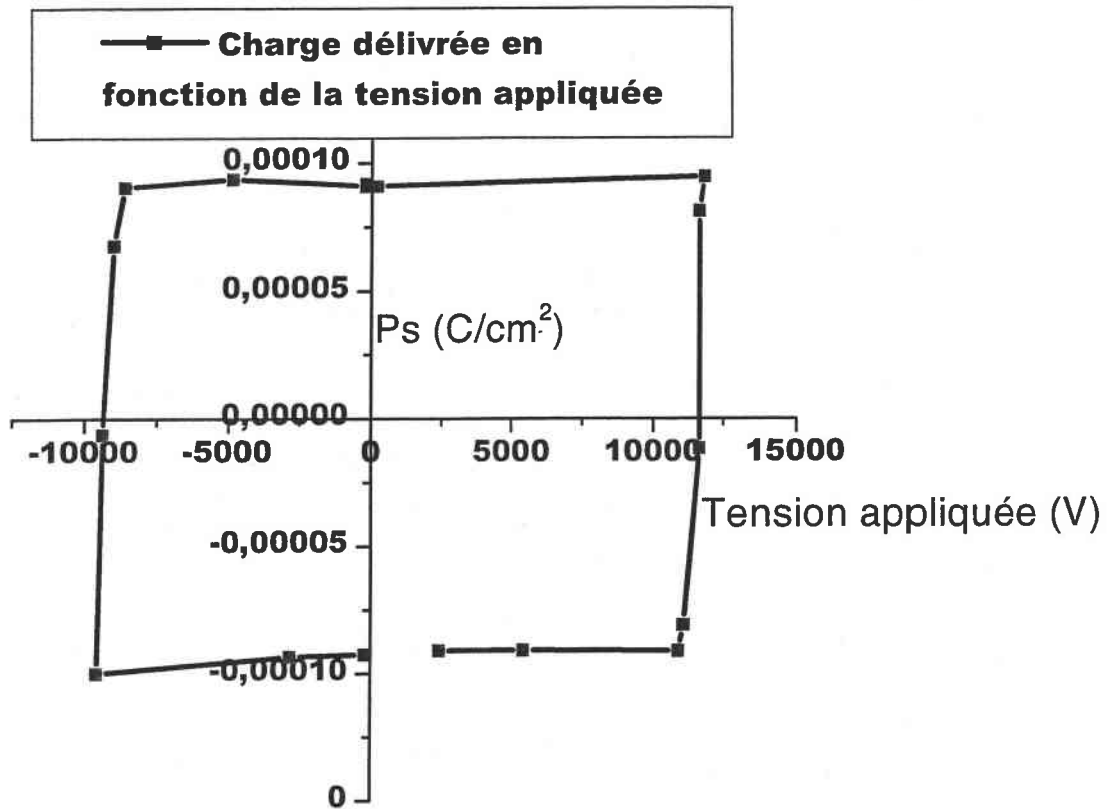


Figure 22 : Boucle d'hystérésis du LN.

On constate donc que la valeur de la polarisation spontanée de nos substrats est d'environ  $90 \pm 10 \mu C/cm^2$  et que le champ coercitif est de  $23220 \pm 10 V/mm$  dans le sens direct et de  $18640 \pm 10 V/mm$  dans le sens inverse. La valeur de la polarisation spontanée est en parfait accord avec celle rapportée par d'autres auteurs mais Missey *et al* [55] expliquent que la valeur de la polarisation spontanée peut être légèrement surestimée car toutes les charges délivrées ne servent pas à renverser la polarisation car certaines sont piégées en surface du substrat. Le fait que la tension de polarisation soit supérieure dans le sens direct par rapport au sens inverse est un phénomène attendu et a déjà été observé par les auteurs ayant travaillé sur le renversement de la polarisation dans le LN.

On est en droit de penser que les propriétés de la zone, après la polarisation, ne peuvent pas être les mêmes qu'auparavant. Si l'on reproduit cette expérience plusieurs fois de suite sur le même substrat on s'aperçoit que les mesures sont reproductibles. Il ne s'agit donc

pas d'un problème dû au premier renversement mais à la création d'une zone de polarisation inverse au milieu d'un substrat mono-domaine. Les valeurs du champ coercitif et de la polarisation spontanée sont primordiales pour déterminer la tension qui devra être appliquée et la charge qui devra être délivrée lors des renversements périodiques des domaines.

### 3.3.2 Résultats de photolithographie sur niobate de lithium

La figure 23 montre un exemple de réseaux de résine qui a été réalisé d'après les conditions données précédemment. On constate que pour un pas faible ( $4,8\mu\text{m}$ ) la résolution reste excellente et que les motifs correspondent exactement à notre masque initial (taille des électrodes  $1,6\mu\text{m}$ , périodicité  $4,8\mu\text{m}$ ).

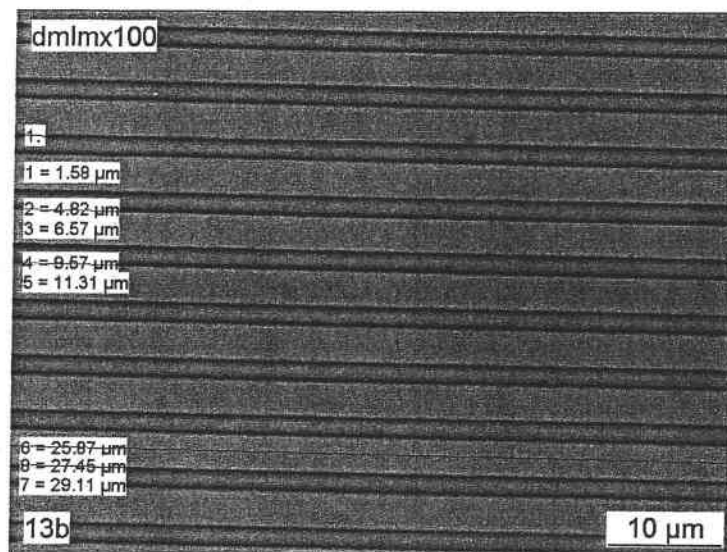
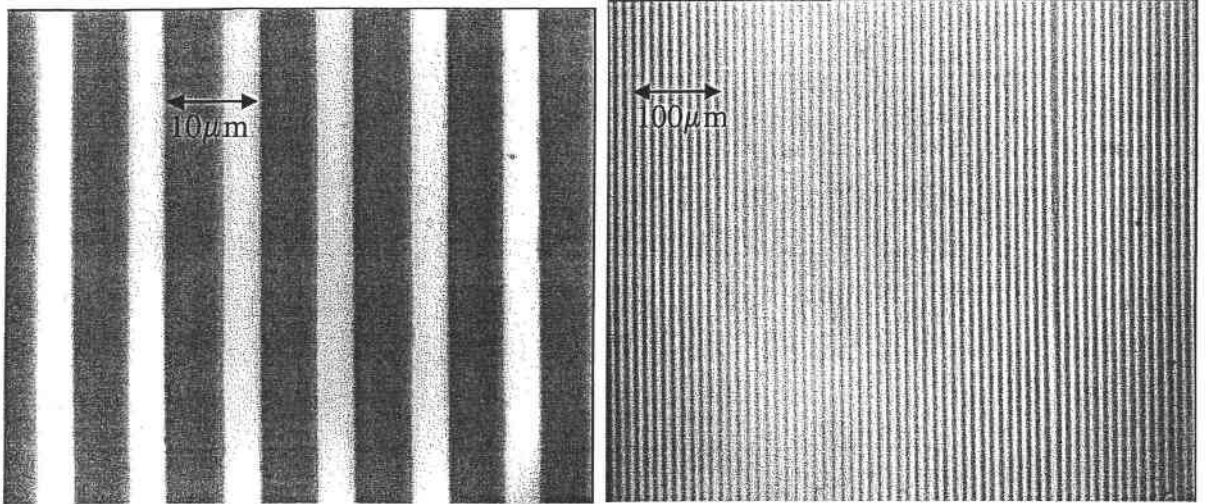


Figure 23: Exemple d'un réseau de résine de pas  $4.8\mu\text{m}$ .

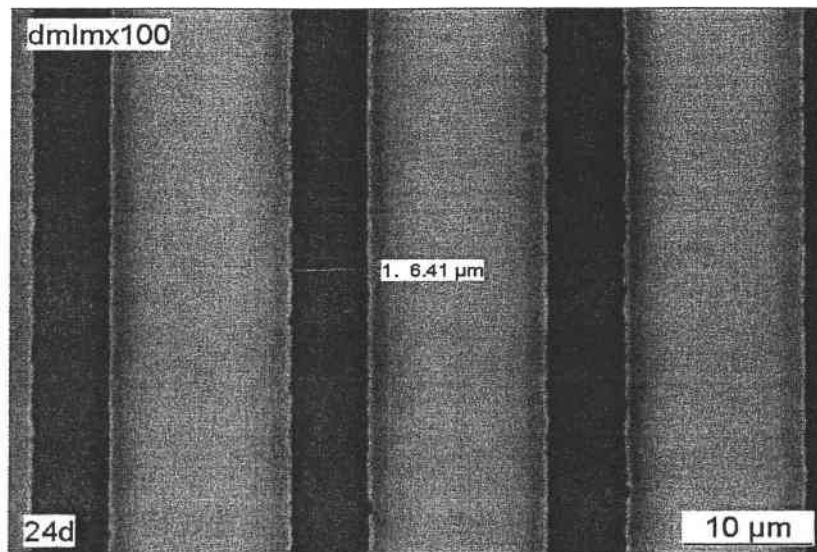
Après avoir le déposé l'aluminium par pulvérisation, on procède au « lift off » proprement dit, c'est à dire qu'on plonge le substrat dans l'acétone, qui va dissoudre le réseau de résine en supprimant l'aluminium déposé sur ce réseau, il ne restera donc que l'aluminium qui était en contact direct avec le substrat.

Un exemple de réseau d'aluminium réalisé par « lift-off » est donné par la figure 24. On peut constater sur la photographie de gauche que la résolution de ce réseau est très bonne et de plus la photo de droite nous montre une très grande régularité sur toute la surface du réseau.



**Figure 24: Exemple d'un réseau d'aluminium de pas  $10\mu\text{m}$  et d'épaisseur  $100\text{ nm}$ .**

La photographie de la figure 25 nous montre un réseau d'aluminium épais de pas  $20\mu\text{m}$  et d'épaisseur  $2\mu\text{m}$ . Il est à noter que la qualité de l'état de surface de l'aluminium est médiocre en comparaison des réseaux obtenus par « lift off » ceci est dû au fait que la qualité de l'état de surface de l'Aluminium déposé décroît lorsque l'épaisseur augmente.



**Figure 25 : réseau d'Aluminium de pas  $20\mu\text{m}$  réalisé par gravure**



### 3.3.3 Application de champs électriques

Les premiers essais de polarisation périodique des substrats de LN ont été réalisés à partir d'électrodes d'aluminium réalisées par « lift-off », d'épaisseur 100nm. Ces essais ont permis d'obtenir des structures PPLN, mais celles-ci se sont révélées de piètre qualité et surtout les échantillons se brisaient lors de l'application du champ électrique. Ces problèmes dus à l'utilisation d'électrodes métalliques ont déjà été observés et peuvent avoir plusieurs origines. La plus probable reste que le contact entre l'aluminium et le substrat est très résistant au passage du courant et provoque un échauffement local très important qui entraîne le bris du cristal. Lors de ces expériences, les substrats étaient insérés dans une cellule constituée de deux cuves contenant l'électrolyte, afin d'établir le contact avec les électrodes métalliques (figures 26 et 27).

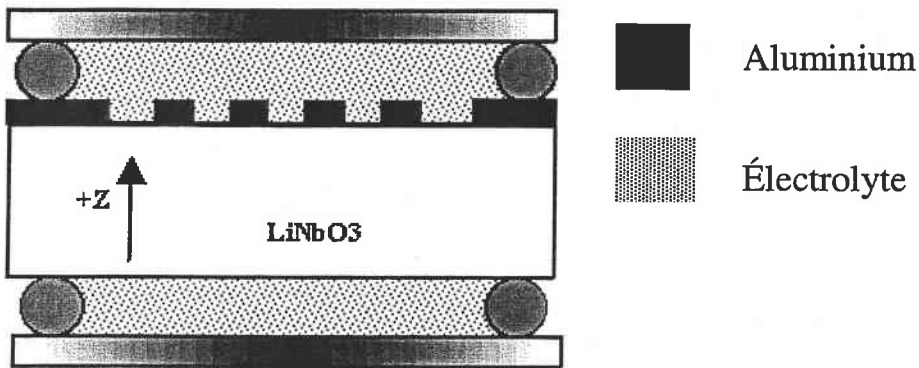


Figure 26 : Schéma de principe de la cellule de polarisation

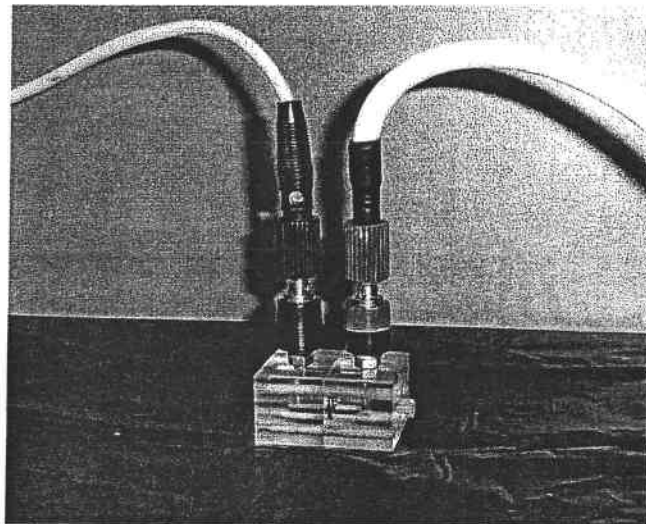


Figure 27: Photo de la première cellule utilisée.

Cependant de nombreuses difficultés se sont présentées avec cette cellule, notamment la présence de bulles à la surface du cristal. Celles-ci causent des effets de pointes et donc des

zones de fortes tensions qui provoquent des arcs électriques suffisants pour briser le cristal et donc empêcher toute polarisation correcte du substrat. De plus, les structures PPLN qui ont été obtenues à l'aide de cette technique, ne sont de plus localisées que sur la face z+ du substrat. Si cela suffit pour des applications en optique guidée. En revanche elles ne peuvent pas être qualifiées par GSH avec le cristal massif.

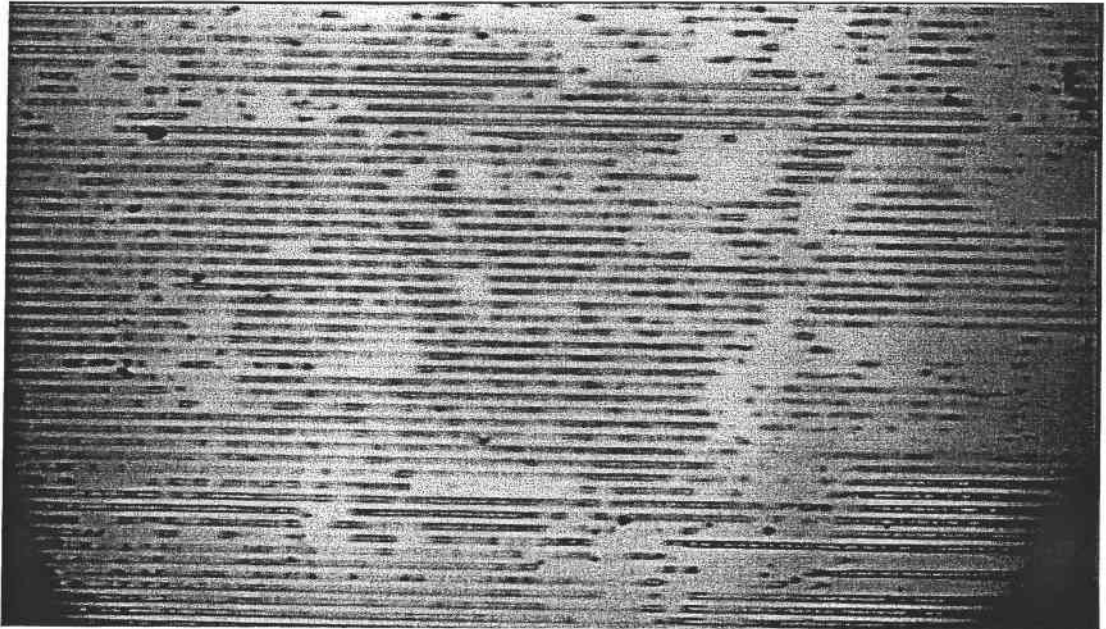


Figure 28 : structure PPLN de pas  $10\mu\text{m}$ .

La photographie 28 montre que les structures PPLN obtenues sont très hétérogènes et sont donc peu adaptées aux applications de doublage de fréquence.

Nous avons donc changé de procédé et choisi de nous affranchir de la cellule en appliquant le champ électrique à l'air libre. Cela est possible en utilisant le dispositif de la figure 29.

Dans ce dispositif, nous utilisons un substrat de LN recouvert d'un réseau de résine ayant le pas désiré. Le contact entre l'électrolyte et le substrat ne se fait alors que dans les creux ce qui constitue notre peigne d'électrodes. Nous avons essayé des résines de différentes épaisseurs,  $0,5\mu\text{m}$ ,  $1,3\mu\text{m}$  et  $1,8\mu\text{m}$ , il s'avère qu'une épaisseur de  $0,5\mu\text{m}$  n'est pas suffisante pour bloquer le renversement de la polarisation.

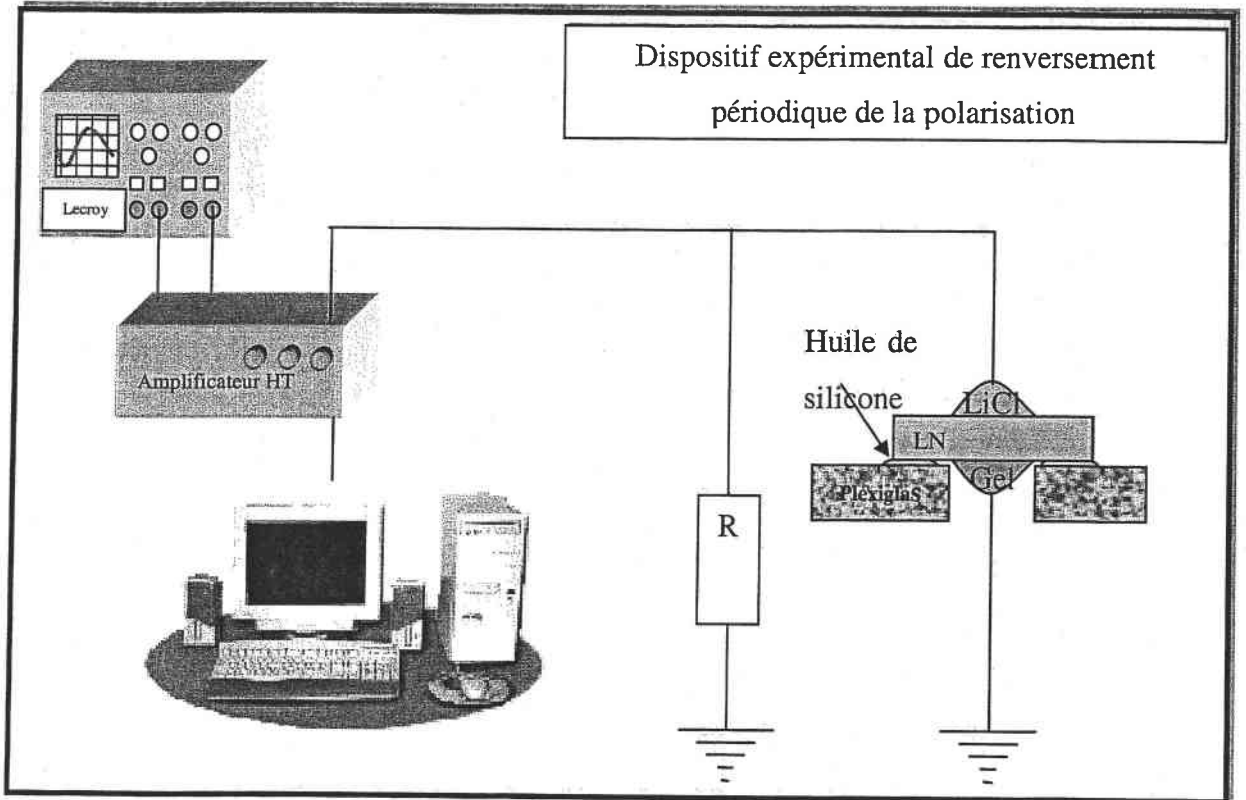


Figure 29 : Dispositif de renversement de la polarisation par champ électrique.

Les premiers essais que nous avons menés avec ce dispositif se sont montrés encourageants, car aucune décharge n'a été observée lors de l'application du champ électrique. Cependant nous n'obtenions au départ que des structures PP sur les bords du réseau alors que le reste de l'échantillon était renversé complètement, sans laisser apparaître de structures périodiques. Cela a été attribué au fait que le renversement de la polarisation ne s'opérait qu'en peu d'endroit et que les domaines se propageaient sous la résine. Il n'est pas sûr également, étant donné la tension superficielle importante du LiCl en solution saturée, que celui-ci pénètre convenablement dans les interstices de résine.

Afin de remédier au premier problème, i.e. la densité de sites de nucléation, nous avons choisi d'appliquer une impulsion avec un temps de montée très faible ( $\sim \mu\text{s}$ ) qui dépasse largement ( $\sim 500\text{V}$ ) la tension nécessaire pendant une durée très courte et ceci afin d'initier un maximum de sites de nucléation dès le début de la polarisation.

L'impulsion appliquée a alors la forme suivante :

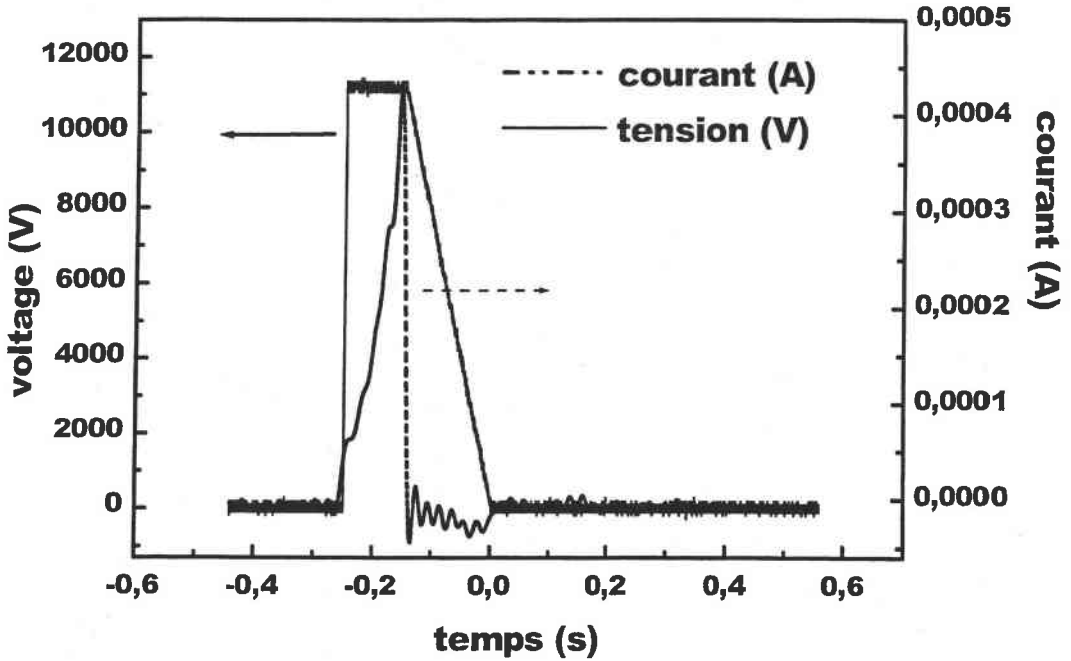


Figure 30: Courant de polarisation en fonction de la tension appliquée.

Cette technique nous a permis d'obtenir des structures PPLN de qualité suffisante pour réaliser le doublage de fréquence. Les photographies ci-dessous montrent des structures PPLN de pas  $4,8\mu\text{m}$  révélées par attaque chimique par HF.

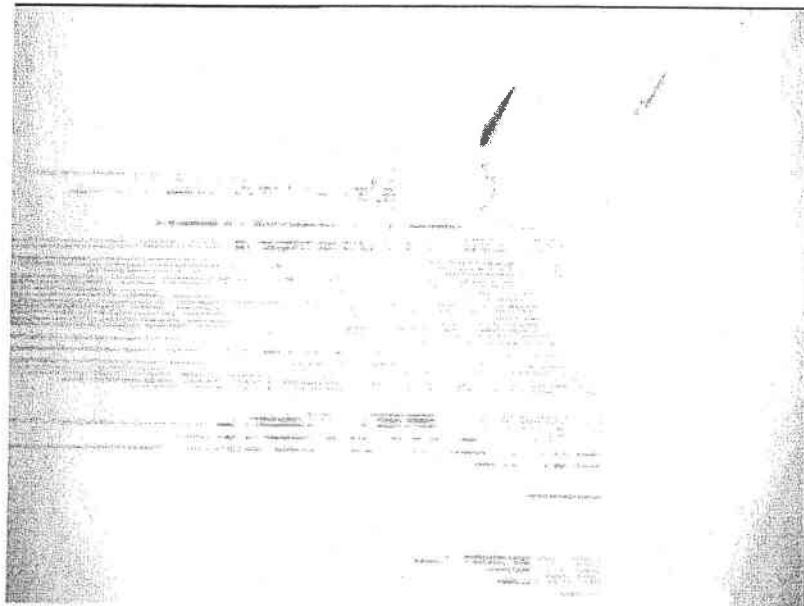
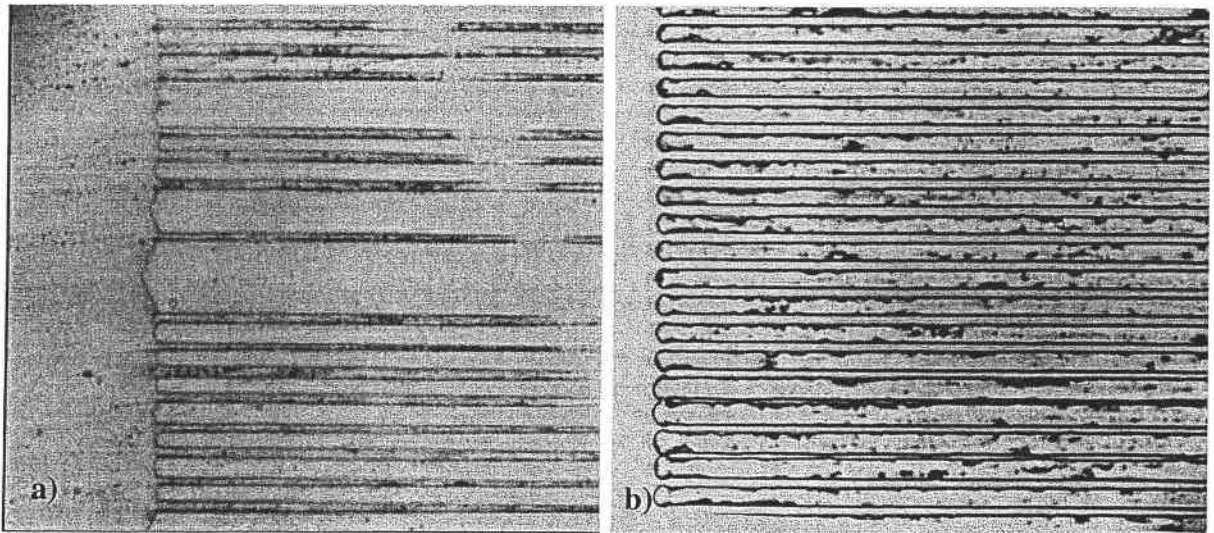


Figure 31: PPLN pas  $4,8\mu\text{m}$ , face z-



**Figure 32 : PPLN pas  $4.8\mu\text{m}$ , a) ancienne face z- b) ancienne face z+.**

Comme on peut le constater sur les photographies ci-dessus, les structures PPLN ne sont pas encore optimisées, en effet de nombreux domaines sont manquants (figure 31) ou bien on observe des domaines voisins qui ont coalescé (Cf. figure 32a)). De plus, le facteur de cycle n'est pas homogène et proche de 65%, ce qui est assez loin des 50%, valeur idéale pour la GSH du premier ordre. Cependant de grands progrès ont été réalisés et nos structures périodiques permettent d'ores et déjà d'obtenir la GSH et donc d'étudier (Cf. Chapitres 3) l'influence de structures guidantes fabriquées par implantation ionique. A l'heure actuelle, nous avons réalisé une autre cellule qui devrait nous permettre d'éviter les problèmes dus aux bulles d'air présentes dans la première cellule. Nous avons de plus essayé de réaliser des électrodes d'or. Ces électrodes ont permis de renverser la polarisation sans provoquer d'éclatement du cristal. On a cependant pas encore obtenu de structures PPLN avec ce type d'électrodes car les paramètres de l'impulsion appliquée (pour les électrodes LiCl + résine) ne semblent pas adaptés pour celles-ci. En effet, lorsque nous avons faits des essais avec les électrodes d'or la polarisation a été renversée totalement sur toute la surface (pas de structure périodique).

Nous allons ensuite nous intéresser aux techniques qui permettent de visualiser et/ou de contrôler ces PPLN, nous avons dans ce domaine tenté de mettre en place de nouvelles techniques que nous allons développer dans la suite.

### **3.4 Contrôle et qualification des structures PPLN**

#### **3.4.1 Diffraction de rayons X**

Rejmánková *et al* [56] ont montré que l'utilisation de la diffraction par rayons X dans un cristal PPLN, sur lequel est appliqué un champ électrique, permet de visualiser les parois des domaines grâce aux contraintes qui sont créées au sein de celles-ci. Il faut pour cela analyser non pas la direction, comme c'est le cas dans les expériences de diffraction de RX classique, mais les taches de diffraction elles-mêmes. En effet les contraintes modifient les caractéristiques cristallographiques du LN et les parois apparaissent comme des zones sombres dans les taches de diffraction. Cette technique, bien que difficile à mettre en place, présente l'avantage de visualiser la structure PP dans tout le volume du cristal.

#### **3.4.2 Attaque par acide fluorhydrique**

Une des techniques les plus utilisées pour contrôler la qualité des structures périodiquement polarisées est l'attaque par l'acide fluorhydrique (HF) concentré (solution saturée) ou par un mélange d'acide HF et HNO<sub>3</sub>. De nombreux exemples ont d'ailleurs déjà été montrés précédemment dans le manuscrit. Ce procédé permet de mettre en évidence les structures car l'acide HF va attaquer la face  $z^-$  de l'échantillon de façon beaucoup plus rapide que la face  $z^+$  [57]. Malheureusement cette technique est destructive et l'échantillon doit être repoli après l'attaque, si l'on veut utiliser le cristal pour des applications optiques. On peut noter que cette technique a été utilisée pour réaliser des structures périodiques en relief.

De nombreux exemples de nos structures PPLN révélées par HF ont déjà été présentés auparavant dans le manuscrit (pages 73 et 74).

#### **3.4.3 Lumière polarisée**

Missey *et al* [55] ont montré que l'on pouvait visualiser les parois entre deux domaines de polarisation opposées grâce à l'utilisation de la lumière polarisée. Pour ce faire on examine la lumière transmise entre polariseurs croisés à travers un cristal PPLN réalisé depuis peu (quelques jours) n'ayant subi aucun recuit. On constate que les parois dépolarisent cette lumière et apparaissent en surbrillance par rapport au reste du cristal. Ce phénomène tient aux contraintes créées dans les parois et que ces contraintes peuvent donner lieu à des variations locales de la biréfringence et donc à des points diffusants ou dépolarisants. Cette

technique peut être appliquée lors même de la polarisation du cristal et servir de contrôle pour l'arrêt de l'application du champ électrique lorsque la polarisation est effective sur la totalité du réseau d'électrodes.

La figure 33 décrit simplement le principe de cette technique.

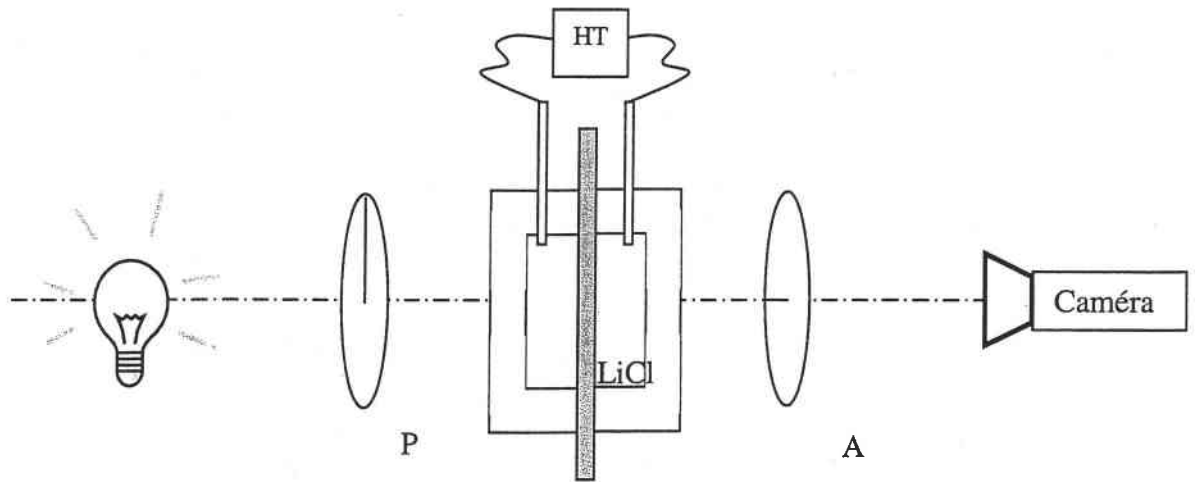


Figure 33 : Contrôle de la polarisation par visualisation en lumière polarisée.

### 3.4.4 Etude micro Raman et luminescence

Nous n'avons pas la prétention ici de détailler les rappels théoriques concernant le phénomène physique à l'origine de la spectroscopie Raman, pas plus d'ailleurs que celui décrivant la luminescence associée aux défauts. Le but est de montrer de quelle manière on peut les appliquer à la visualisation non destructive des structures PPLN. On étudiera de quelles façons ces techniques permettent d'apporter plus d'explications quant aux mécanismes mis en jeu dans le renversement de la polarisation.

Le spectre Raman du niobate de lithium permet de rendre compte de sa structure, de sa composition et de la quantité de défauts. Grâce à la technique micro-Raman nous sommes à présent capables d'obtenir une résolution spatiale latérale de l'ordre du micromètre qui permet d'analyser les structures PPLN. Nous nous sommes intéressés à cette technique car nous désirions savoir si le renversement de la polarisation du cristal modifiait ou non sa structure.

### Dispositif expérimental

Le dispositif utilisé pour réaliser les spectres Raman de nos PPLN est le spectromètre Labram 010 (Jobin Yvon) en configuration confocale, équipé d'un détecteur CCD refroidi.

Le diamètre du « waist » du faisceau provenant du laser He-Ne est d'environ  $1\mu\text{m}$  avec l'objectif que nous avons utilisé, i.e. X100. La puissance du laser est de 15mW et la résolution spectrale est d'environ  $1,2\text{ cm}^{-1}$  avec le réseau 1800 traits/mm.

Un PPLN de pas  $20\mu\text{m}$  a été réalisé pour cette étude, en effet la résolution est de l'ordre du micron ce qui semble trop faible pour les PPLN de pas  $10\mu\text{m}$ .

La figure 34 représente une partie de l'échantillon, après révélation à l'acide, ainsi que l'orientation des axes du cristal par rapport aux parois des domaines.

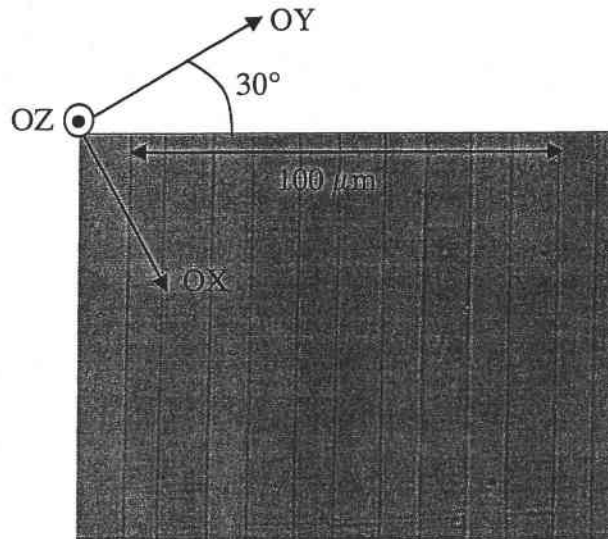


Figure 34: Face z+ de l'échantillon après 10 min dans l'acide HF pur.

## Résultats

On peut voir sur la figure 35 une large bande de luminescence entre 751 et 913 nm. Les deux courbes correspondent aux spectres obtenus pour des domaines ferroélectriques de polarisation renversée et non renversée. Cette bande de luminescence est attribuée aux polarons, c'est à dire aux nobiums antisites  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  qui ont capturé un électron (état de charge  $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$ ). La luminescence du polaron dans le niobate de lithium congruent est habituellement grande devant celle du spectre raman.



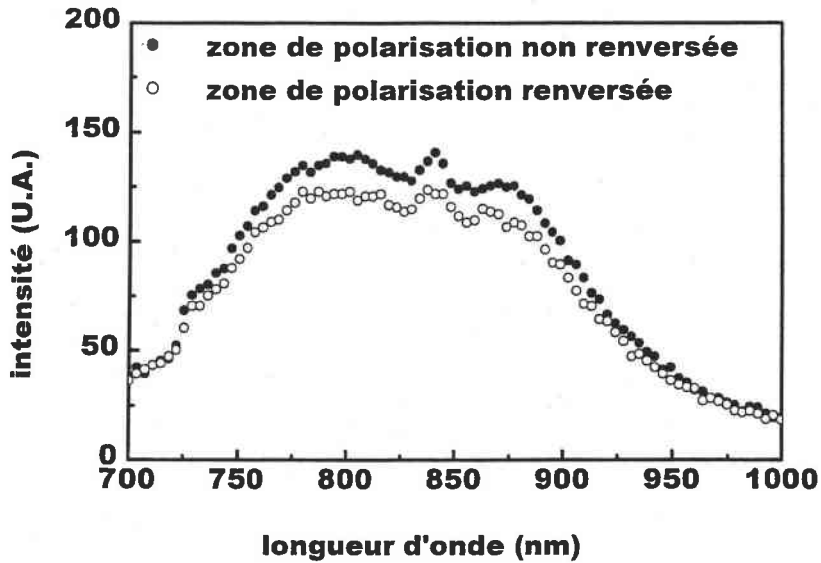


Figure 35: Spectre de luminescence associé au polaron.

La figure 36 nous montre la variation de luminescence du polaron lors du balayage de l'échantillon PPLN. On constate que la luminescence possède la même périodicité que celle de notre échantillon et de plus que la luminescence est plus importante dans les domaines de polarisation non renversée. Bien que la différence ne soit pas très importante (~ 15%) les mesures ont été faites avec une bonne précision (~ 0.5%) grâce au signal de luminescence très important.

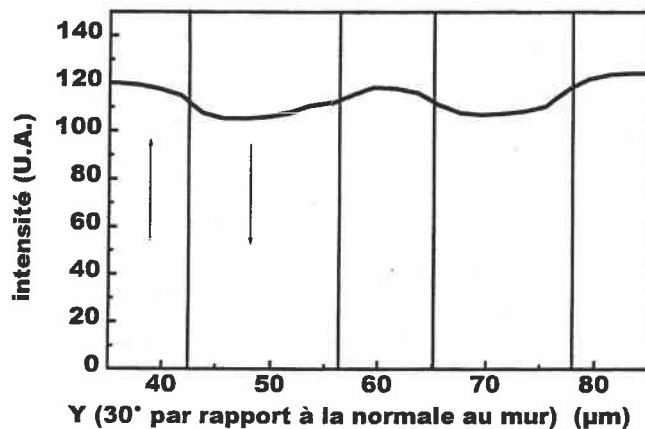


Figure 36 : Balayage de l'intensité de la luminescence (intégrée entre 751 et 913 nm) en fonction de la position sur l'échantillon PPLN (les flèches dirigées vers le bas indique les domaines renversés).

Le balayage de la surface nous permet d'avoir un autre résultat très important contenu dans le spectre Raman. La figure 37 nous montre une raie normalement interdite par les règles de symétrie dans cette configuration à  $612,8 \text{ cm}^{-1}$ .

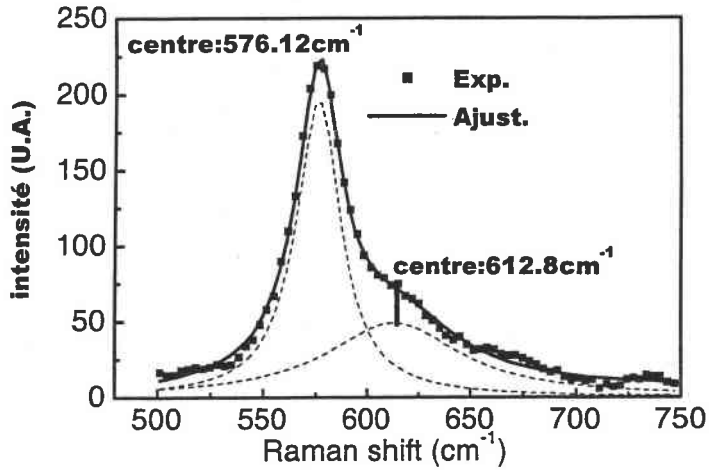


Figure 37: Spectre raman au voisinage d'un mur de domaine. La raie raman centrée à  $612.8 \text{ cm}^{-1}$  est interdite par les règles de symétrie

Cette raie interdite est visible seulement au voisinage des murs de domaines. Elle disparaît très rapidement à une distance de l'ordre de  $2 \mu\text{m}$  comme nous pouvons le voir sur la figure 38.

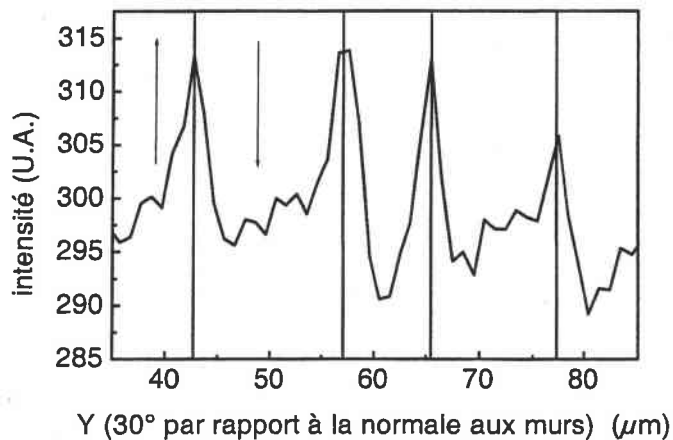


Figure 38: Balayage de l'intensité de la raie Raman interdite à  $612 \text{ cm}^{-1}$  (les flèches vers le bas indiquent les domaines renversés)

## Discussion

Dans le niobate de lithium les polarons correspondent à des électrons piégés dans des défauts de type niobium antisite ( $\text{Nb}_{\text{Li}}$ ) [58]. La quantité totale d'électrons libres, qui remplissent le niveau d'énergie associé à ces pièges dans la bande interdite, définit le degré de réduction du matériau. Dans un cristal de LN congruent tous les électrons libres sont piégés dans les antisites. A la température ambiante et en dessous, la plupart sont piégés par paire ce qui donne le bipolaron  $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}-\text{Nb}_{\text{Nb}}^{4+}$  (les deux électrons sont piégés dans des niobium voisins le long de l'axe  $c$ ). Dans un cristal de LN congruent la concentration de bipolaron est relativement faible (probablement moins de quelques  $10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ) et la concentration de polaron est en équilibre thermique (sans éclairage) à une concentration de quelques ordres de grandeurs moindres. Malgré cela nous observons une forte luminescence comme sur la figure 35. Les Bipolarons peuvent être facilement dissociés si l'on éclaire avec une radiation dans le domaine visible et bien que la région centrale de l'absorption du bipolaron soit centrée autour de 500 nm la photo dissociation reste efficace à 632.8 nm [58]. La cinétique de recombinaison est du second ordre et elle est assez lente, le seuil d'intensité au-dessus duquel la dissociation est complète est faible, typiquement de quelques  $\text{kW/m}^2$  à 514 nm, et probablement pas plus de  $10 \text{ kW/m}^2$  à 633 nm. Dans notre expérience l'intensité incidente est typiquement de  $1 \text{ GW/m}^2$ . Il est donc évident, que tous les bipolarons sont photo dissociés en polaron. D'un autre côté l'absorption secondaire par les polarons (responsable de la luminescence) n'est pas saturée, bien que la dépendance de la luminescence avec la puissance incidente ait été identifiée comme linéaire, avec les puissance utilisée pour nos mesures (l'absorption à 633 nm doit saturée à  $\sim 5\text{-}10 \text{ GW/m}^2$ ). Donc la luminescence fournie par la figure 36 doit nous donner directement une image de la concentration en bipolarons en chaque point.

La raison pour laquelle la concentration en bipolaron est légèrement plus faible dans les domaines renversés n'est à l'heure actuelle pas encore très claire. Durant la polarisation, les domaines nucléent préférentiellement sur le bord des électrodes, ils se déplacent ensuite jusqu'à leur stabilisation comme nous l'avons vu en début de chapitre [54].

Bien que ce processus soit très rapide, on peut penser que lors de leur déplacement certains bipolarons sont déplacés avec la paroi de domaine, c'est à dire vers la zone non renversée.

En revanche, et quel que soit le mécanisme exact impliqué dans ce phénomène, l'hétérogénéité révélée par la luminescence du polaron peut avoir certaines conséquences sur

l'utilisation des composants. Si le degré de réduction (en d'autre terme le niveau de Fermi) des domaines alternés n'est pas le même, alors on peut penser que les coefficient non linéaires ne sont pas les mêmes non plus. Un recuit thermique pourrait être adapté à la restauration de l'homogénéité (ce qui semble être confirmé par des études en cours) et donc à l'augmentation de l'efficacité de conversion.

La légère différence du degré de réduction entre domaines voisins peut avoir une autre conséquence : les murs de domaines peuvent alors se comporter comme la jonction entre semiconducteur. Un champ de charge d'espace pourrait alors être créé au voisinage des murs de domaines comme nous le montre la figure 39.

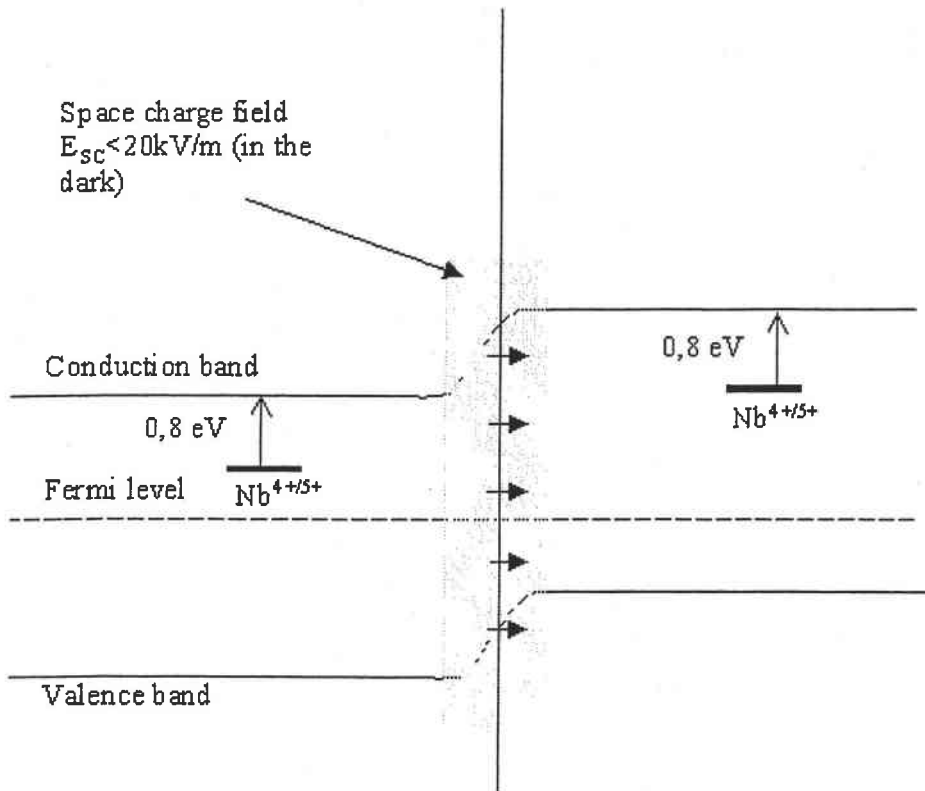


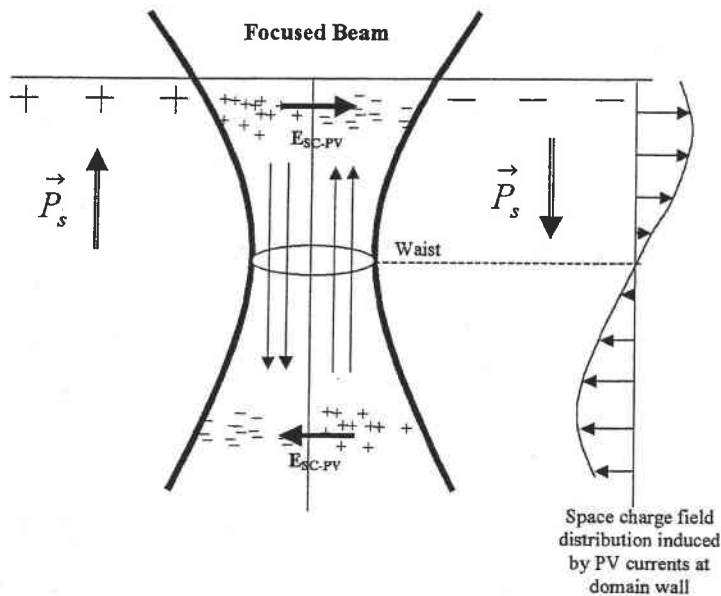
Figure 39 : Faible champ de charge d'espace sans éclairnement à proximité des murs de domaines.

Cependant si l'on fait une rapide estimation du champ de charge d'espace, à partir du contraste de luminescence, on constate que celui-ci doit être faible. En dessous de la température de dissociation des bipolarons ( $\sim 450$  K d'après.[60]) la position du niveau de Fermi par rapport aux bandes de conduction et de valence peut être déterminée par l'équation suivante :

$$E_F(T) \approx E_0 + \frac{1}{2} k_B T \times (\ln N_B + C),$$

Où  $N_B$  est la concentration de bipolaron dans le noir,  $E_0$  est un niveau d'énergie fixé par les enthalpies de dissociation et d'excitation des polarons,  $C$  est une constant qui dépend seulement de la concentration en antisites. Alors, la barrière d'énergie entre domaines renversés et non renversés peut être égale à  $\frac{1}{2} k_B T \times \ln(N_B^+ / N_B^-)$ . Si  $N_B^+ / N_B^- < 1,16$  dans notre échantillon (Cf. figure 36), la hauteur de la barrière électronique est inférieure à 2 meV à température ambiante. Même si la longueur de cette barrière est égale à  $0,1\mu\text{m}$ , la charge d'espace correspondante n'excède pas 20kV/m ce qui est trop faible pour avoir une quelconque influence sur le spectre Raman.

On a en effet constaté que la raie interdite est sensible à la durée de l'illumination. Son origine pourrait donc être reliée à l'effet photovoltaïque. Une explication possible est donnée dans la figure 40 :



**Figure 40 : Courante photovoltaïque et forte charge d'espace créée dans le faisceau focalisé au voisinage des murs de domaines.**

Le courant photovoltaïque généré dans le volume éclairé est principalement dirigé selon l'axe z (le coefficient photovoltaïque qui est actif dans cette configuration est  $\beta_{31}$ ). Lorsque le point de focalisation est centré sur un mur de domaines, deux courants photovoltaïques opposés prennent naissance de part et d'autre du mur.

Les porteurs de charges déplacés en bas et en haut du « waist » du faisceau s'accumulent à quelques micromètres et créent un fort champ de charge d'espace perpendiculaire aux murs des domaines. Ce champ brise localement la symétrie du cristal et

---

donc active des modes Raman interdits de la même façon qu'il engendre une légère dépolarisation due au passage d'une configuration monoclinique à une configuration triclinique dans les mailles entourant les murs.

Nous avons donc présenté une nouvelle méthode pour caractériser les structures PPLN. Les deux effets présentés ici nous permettent non seulement d'effectuer une visualisation non destructive de nos réseaux pour le QAP, mais ils nous donnent également des informations sur le mécanisme de renversement de la polarisation. Nous espérons, grâce à ces résultats, améliorer notre compréhension de la réalisation des structures PPLN pour augmenter leur qualité et également étudier les effets de recuit sur les contraintes qui prennent naissance dans les parois de domaines. En effet, jusqu'à présent on ne connaît pas les effets quantitatifs du recuit sur la réduction des contraintes, une meilleure connaissance de ces effets devrait nous permettre de déterminer la durée et la température idéale pour éliminer les contraintes dans les parois de domaines.

## 4 Conclusion

Ce chapitre a été l'occasion de rappeler les différentes techniques existantes pour réaliser des structures périodiquement polarisées dans le niobate de lithium et d'expliquer notre choix de la technique d'application de champs électriques. Nous avons également expliqué comment nous avons monté et automatisé le dispositif de renversement de la polarisation, cela afin d'assurer une reproductibilité des résultats.

Nous avons présenté également des exemples de PPLN qui ont été obtenus au laboratoire et nous avons proposé une nouvelle méthode d'investigation de ces structures.

Les structures PPLN ne sont cependant pas optimisées. Il faudrait sans doute améliorer encore les phases de photolithographie, afin d'éliminer au mieux les défauts qui persistent encore dans nos masques de résine et peut-être procéder à des nettoyages physiques de la surface du substrat. De plus, l'utilisation de l'or comme contact devrait permettre d'éliminer les défauts d'homogénéité qui sont en grande partie dus au fait que l'électrolyte ne pénètre pas correctement au fond des creux du peigne de résine. La nouvelle cellule qui permet d'exercer une pression importante sur le liquide, tout en évitant les problèmes dus aux bulles d'airs présentes en surface du cristal, devrait dans la même logique améliorer l'homogénéité des structures.

Mais le plus grand défi reste l'obtention d'un facteur de cycle de 50%, en effet, pour des courtes périodes telles que les nôtres, il devient difficile de réaliser des électrodes plus fines. Si l'on se réfère aux conclusions de Miller, celui-ci préconise pour des périodes inférieurs à  $5\mu\text{m}$  de réaliser le réseau PP en deux étapes, en polarisant deux fois avec des réseaux d'électrodes de périodes doubles de celle désirée pour le PPLN, et décalées l'une par rapport à l'autre. Mais cette technique n'a, à notre connaissance, jamais été employée et les difficultés d'alignement se rajoutant celles qui existent déjà cette suggestion ne semble pas très séduisante. Enfin le « backswitching » paraît être une voie séduisante bien qu'extrêmement difficile à reproduire.

## ❖ Bibliographie

- [33] G. A. Magel; M. M. Fejer, and R. L. Byer, *Appl. Phys. Lett.* 56, 108 (1990).
- [34] V. Bermudez, D. Callejo, R. Vilaplana, J. Capmany, and E. Diéguez. *Journal of Crystal Growth* 237-239 (2002) 677-681.
- [35] J. Webjörn, F. Laurell, and G. Arvidsson. October 1989/Vol. 7, No. 10/*Journal of lightwave technology*. Pp. 1597-1600
- [36] K. Mizuuchi, K. Yamamoto, and K. Kato. *Electron. Lett.* 22, 2091 (1996).
- [37] K. Nakamura and H. Shimizu, *Appl. Phys. Lett.* 56, 1535 (1990).
- [38] J. C. Peuzin, *Appl. Phys. Lett.* 48, 1104 (1986)
- [39] Ishigame Y, Suhara T, Nishihara H. *Opt. Lett* 1991; 16:375.
- [40] S. Miyazawa, *J. Appl. Phys.* 48, 1105 (1986).
- [41] C. Restoin, C. Darraud-Taupiac, J. L. Decossas, J. C. Vareille, J. Hauden. *Materials science in semiconductor Processing* 3 (2000) 405-407
- [42] Akinori Harada and Yasukazu Nihei. *Appl. Phys. Lett.* 69 (18), 28 October 1996.
- [43] Paul T. Brown, Graeme W. Ross, Robert W. W. Eason, Armen R. Pogosyan. *Optics communication* 163 (1999)310-316
- [44] V. Ya. Shur, E. L. Rumyantsev, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, and D.V. Fursov, R.G. batchko, L.A. Eyres, M.M. Fejer, and R.L. Byer. January 10, 2000, Volume 76, Number 2. *Applied physics letters*.
- [45] R. G. Batchko, V. Y. Shur , M. M. Fejer, and Robert L. Byer. September 20, 1999/ Vol. 75, No. 12/ *Applied physics letters*
- [46] M. G. Angell, R. M. Emerson, J. L. Hoyt, and J. F. Gibbons, L. A. Eyres M. L. Bortz, and M. M. Fejer. *Appl. Phys. Lett.* 64 (23), 6 june 1994.
- [47] Kiminori Mizuuchi and Kazuhisa Yamamoto. *Appl. Phys. Lett.* 66 (22), 29 May 1995.
- [48] Kiminori Mizuuchi, Kazuhisa Yamamoto, and makoto Kato. *Appl. Phys. Lett.* 70 (10), 10 March 1997.
- [49] W. P. Risk and G. M. Loiacono. *Appl. Phys. Lett.* 69 (3), 15 July 1996.
- [50] M.Pierrou and F. Laurell. H. Karlsson. T. Kellner, C. Czeranowsky, and G. Huber. February 15, 1999/ Vol. 24, No. 4/*Optics Letters*.



- 
- [51] H. Karlsson, F. Laurell, L. K. Cheng. March 15, 1999/APL Vol. 74, No 11.
- [52] L. E. Myers, G. D. Miller, R.C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer. and W. R. Bosenberg. January 1, 1995/Vol. 20, No. 1/Optics letters. pp. 52-54.
- [53] Valerio Pruneri. A thesis submitted for the degree of doctor of Philosophy. University of Southampton, Faculty of science, Department of Physics. May 1996.
- [54] G. D. Miller. A dissertation submitted to the departement of electrical engineering and the committee on graduate studies of Stanford University in partial fulfilment of the requirements for the degree of doctor of philosophy. July 1998.
- [55] Mark J. Missey, Steve Russell, Vince Dominic, Robert G. Batchko, Kenneth L. Schepler. 8 May 2000 / Vol. 6, No. 10 / OPTICS EXPRESS 186
- [56] P. Rejmánková, J. Baruchel, P. Moretti, M. Arbore, M. Fejer and G. Foulon. J. Appl. Cryst. (1998). 31. 106-108.
- [57] K. Nassau, H. J. Levinstein, and G. M. Loiacano. June 1, 1965/Vol. 6, No. 11/Applied Physics Letters. pp. 228-229.
- [58] O. F. Schirmer, O. Thiemann and M. Wohlecke, J. Phys. Chem. Solids, vol. 52, no 1, pp. 185-200, 1991.
- [59] F. Jermann, M. Simon, R. Böwer, E. Krätzig and O.F. Schirmer. Ferroelectrics, vol.165, pp.319-327, 1995.
- [60] S. S. Orlov, A. Liu, A. Akella et L. Hesselink, OSA TOPS vol.27. Advances in photorefractive Materials, Effects and Devices, 1999 Optical Society of America.

**Chapitre 3 A :**  
**Caractérisation de guides**  
**implantés dans des PPLN de**  
**pas 10 $\mu$ m**

---

# SOMMAIRE

1	Introduction .....	87
2	Etude préliminaire .....	88
3	Caractérisation linéaire .....	88
3.1	Etude en fonction de l'énergie.....	89
3.1.1	Conditions d'implantations.....	89
3.1.2	Mesures des indices effectifs et calcul du profil d'indice.....	89
3.1.3	Mesures de pertes.....	93
3.2	Etude en fonction du recuit.....	98
3.2.1	Mesures des indices effectifs et calcul du profil d'indice.....	98
3.2.2	Mesures de pertes.....	99
3.3	Etude complémentaire : Spectroscopie des lignes noires en fonction de la longueur d'onde.....	101
4	Caractérisation non-linéaire.....	105
4.1	Description du dispositif.....	105
4.2	GSH dans PPLN :He+ plan de pas 10 $\mu$ m.....	108
5	Conclusion .....	115
6	Bibliographie .....	116

## 1 Introduction

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, l'investigation des structures PPLN de pas  $10\mu\text{m}$  nous a permis de mettre en place le dispositif expérimental de réalisation de structures PP. Mais nous avons également utilisé ce pas pour combiner, pour la première fois, les PPLN avec des guides implantés. Les guides implantés ont été réalisés au LPCML de l'Université Claude Bernard de Lyon en collaboration avec P. Moretti.

L'objet de ce chapitre est donc de faire l'étude des propriétés linéaires et non linéaires de ces guides. Pour cela nous devons tout d'abord montrer qu'il y a bien création d'un guide après le procédé d'implantation ionique, puis il nous faut mesurer les pertes à la propagation dans ce guide. Il convient de rappeler que les différentes caractéristiques que nous recherchons pour nos guides sont : un bon confinement de la lumière, des pertes faibles et bien entendu, la conservation des propriétés non linéaires de la partie guidante de l'échantillon.

La caractérisation non linéaire de nos guides par GSH a été réalisée pour les ordres de QAP 2, 3 et 4, car l'ordre 1, dont la longueur d'onde de QAP est de  $1200\text{nm}$  pour un pas de  $10\mu\text{m}$ , n'est pas accessible par les sources dont nous disposons au laboratoire.

Les études sur les paramètres de fabrication et de post-fabrication (recuit) des guides présentées ici mettent à jour l'influence de ces paramètres sur les différentes qualités recherchées pour la GSH par QAP. Grâce à ces différentes caractérisations nous donnerons en conclusion des pistes d'optimisation de ces guides pour la GSH par QAP.

## 2 Etude préliminaire

Il faut avant tout préciser que nos guides PPLN :He+ ont toujours été fabriqués après la structure PPLN. En effet on a vu que la fabrication de la structure PPLN est une étape complexe et très sensible à la pureté du substrat. Il semblait donc, a priori, plus correct de suivre cet ordre de fabrication.

L'étude bibliographique menée préalablement a confirmé que l'ensemble des chercheurs qui travaillent dans ce domaine suit le même processus. (Cf. Annexe 5).

Nous avons tout de même voulu savoir si l'inverse était possible. Nous avons alors fabriqué un guide par implantation dans un cristal de LN monodomaine. (Les conditions d'implantation de ce guide sont les mêmes que celles pour l'échantillon LN 10-3 décrit plus loin.) Puis nous avons réalisé l'ensemble des étapes de photolithographie sur ce guide (Cf. Chapitre 2). Enfin nous avons appliqué un champ électrique identique à celui défini pour les LN vierges d'implantation. Il nous a été impossible d'obtenir une structure PPLN. Même en élevant la tension de polarisation jusqu'à des valeurs qui ont provoqué le claquage de l'air ambiant, aucun courant mesurable n'a circulé.

La révélation à l'acide HF a montré des débuts de nucléation sur la face z+ (face implantée) mais les domaines renversés n'ont pas traversé le cristal empêchant ainsi la création d'une structure PPLN.

## 3 Caractérisation linéaire

Comme nous l'avons dit dans le chapitre 1, les guides fabriqués par implantation ionique ont une épaisseur qui dépend de l'énergie du faisceau d'ions. Afin d'obtenir des guides efficaces pour le doublage de fréquence il nous faut des guides de faibles épaisseurs, pour obtenir une intégrale de recouvrement maximale mais également pour que toute l'énergie véhiculée dans le guide soit concentrée dans le mode fondamental.

L'étude linéaire que nous avons menée s'est donc attachée à analyser l'influence de l'énergie sur les différentes propriétés du guide. Nous avons ensuite essayé d'optimiser le guide en pratiquant des recuits post implantation.

Nous allons donc dans ce chapitre présenter cette étude ainsi qu'une étude complémentaire de spectroscopie des lignes noires en fonction de la longueur d'onde.

### 3.1 Etude en fonction de l'énergie

#### 3.1.1 Conditions d'implantations.

Nous avons fabriqué trois guides avec différentes énergies dans les structures PPLN de pas  $10\mu\text{m}$ .

Le tableau 4 nous indique les paramètres qui ont été employés pour la fabrication de nos guides. Les fluences sont choisies de manière à obtenir une variation d'indice maximale dans la barrière et donc un bon confinement. Les énergies nous permettront d'obtenir des guides de différentes épaisseurs mais qui dans tous les cas propagent un mode au moins à la longueur d'onde fondamentale (980 nm).

Nom de l'échantillon	Dopage	Pas du réseau ( $\mu\text{m}$ )	Type de guide	Energies (MeV)	Fluences ( $10^{16}$ ions/cm <sup>2</sup> )
LN 10-1	Non	10	Plan	1,1/1,2/1,3	0,5
LN 10-2	Non	10	Plan	1,3/1,4/1,5	0,5
LN 10-3	Non	10	Plan	1,5/1,6/1,7	0,5

Tableau 4 : Conditions d'implantations

Nous avons choisi de pratiquer des implantations avec trois énergies différentes de manière à élargir la barrière optique, afin de limiter les pertes par effet tunnel optique (Les débits de fluence sont de  $0,5\mu\text{A}/\text{cm}^2$ ).

#### 3.1.2 Mesures des indices effectifs et calcul du profil d'indice

Nous avons utilisé la méthode de la spectroscopie des lignes noires afin de mesurer le profil d'indice des nos guides d'ondes. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, cette méthode consiste à utiliser un prisme de haut indice (rutile dans notre dispositif) pressé contre le guide plan.

Un faisceau laser est alors focalisé sur la base du prisme et l'on fait varier l'angle d'incidence de ce faisceau. On mesure en fonction de cet angle le faisceau réfléchi par l'interface prisme/guide. Pour les angles externes, correspondant aux angles synchrones de propagation à l'intérieur du guide d'onde, le faisceau passe par une onde évanescente à l'intérieur du guide. Ces angles sont donc identifiés par des diminutions de l'intensité

réfléchi et nous permettent de calculer les indices effectifs des modes se propageant dans la structure. La connaissance de ces valeurs d'indice et l'utilisation d'un calcul WKB inverse nous permet de reconstruire le profil d'indice.

Les figures 41 A) et B) nous présentent un exemple de résultat obtenu à partir du dispositif de spectroscopie des lignes noires.

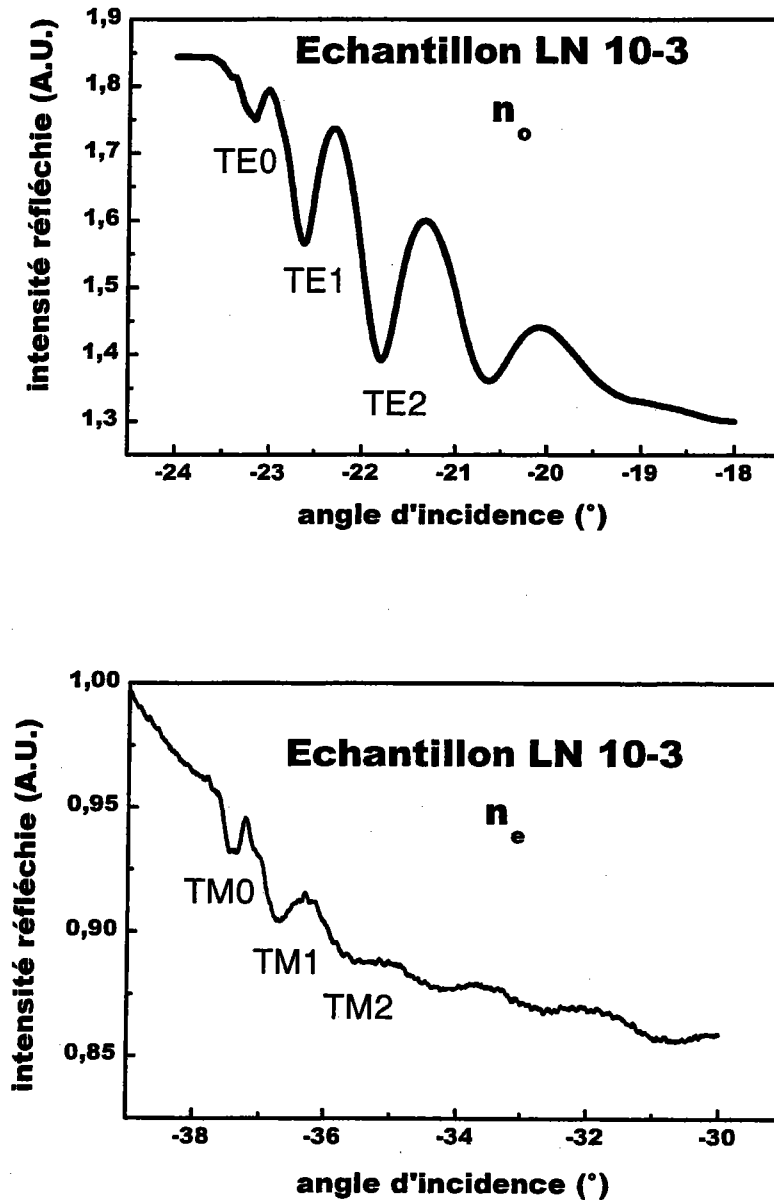


Figure 41 A) et B) : Spectres de lignes noires en polarisation TE (A) et TM (B) pour l'échantillon LN 10-3 à 633 nm.

Nos échantillons étant coupés selon l'axe Z, la polarisation TE nous donne accès à l'indice ordinaire et la polarisation TM à l'indice extraordinaire. Les mesures d'indices effectifs ont été réalisées à 632,8 nm.

Le tableau 5 regroupe l'ensemble des indices effectifs mesurés pour les trois guides implantés dans des structures PPLN de pas  $10\mu\text{m}$  (Chaque guide ayant subi un recuit d'une heure à  $200^\circ\text{C}$ ). L'incertitude sur la valeur des indices effectifs tient au pas choisi pour le balayage en angle lors de l'acquisition du spectre, elle est de  $3.10^{-4}$ .

Nom de l'échantillon	polarisation	Ng	Depth $\mu\text{m}$	Ordre du mode	Angle synchrone ( $^\circ$ )	Indices effectifs mesurés	Indices effectifs calculés	Différence $*10^{-4}$
LN 10-1	TE	2,287	2,5	0	-22,93	2,2827	2,2829	-2
				1	-22,09	2,2744	2,2752	-8
	TM	2,206	2,5	0	-37,09	2,2026	2,2027	-1
				1	-35,86	2,1932	2,1941	-9
LN 10-2	TE	2,288	3,1	0	-23,44	2,2877	2,2878	-1
				1	-22,69	2,2803	2,284	-8
				2	-21,73	2,2708	2,271	-2
	TM	2,207	3,1	0	-37,44	2,2052	2,2054	-2
				1	-36,64	2,1992	2,2000	-8
				2	-35,36	2,1894	2,1913	-19
LN 10-3	TE	2,287	3,4	0	-23,20	2,2853	2,2855	-2
				1	-22,63	2,2797	2,2805	-8
				2	-21,79	2,2714	2,2727	-13
	TM	2,207	3,5	0	-37,40	2,2052	2,2054	-2
				1	-36,70	2,1999	2,2007	-8
				2	-35,60	2,1915	2,1932	-17

Tableau 5 : Indices effectifs mesurés et calculés pour les trois échantillons PPLN  $10\mu\text{m}$ .

Ce tableau nous montre que des modes guidés ont été obtenus en polarisation TE et en polarisation TM. D'après des travaux précédents sur les guides implantés dans le LN [61] nous savons que ce sont des guides à quasi-saut d'indice. Nous avons donc, pour vérifier cette hypothèse, appliqué un calcul qui consiste à déterminer les paramètres d'un guide à saut d'indice dont les modes guidés auraient des indices effectifs proches de ceux mesurés.

Le résultat de ces calculs est présenté dans le tableau 5 et l'on constate un écart proche de l'incertitude de mesure entre les valeurs expérimentales et les valeurs données par le modèle du guide à saut d'indice. Ce qui confirme le bon accord avec notre modèle. On peut donc en conclure que nos guides sont à quasi-saut d'indice. De plus si l'on s'intéresse à la valeur de l'indice de réfraction calculé pour la partie guidante, on constate qu'il est de 2,287



pour  $n_o$  et de 2,207 pour  $n_e$  et ceci pour les trois guides d'ondes ce qui indique une très bonne reproductibilité de fabrication des guides par implantation d'ions légers.

En plus du modèle du guide plan à saut d'indice nous nous sommes attachés à obtenir plus de précision sur le profil d'indice de ce guide d'onde, on a donc appliqué à partir des valeurs des indices effectifs un calcul WKB inverse.

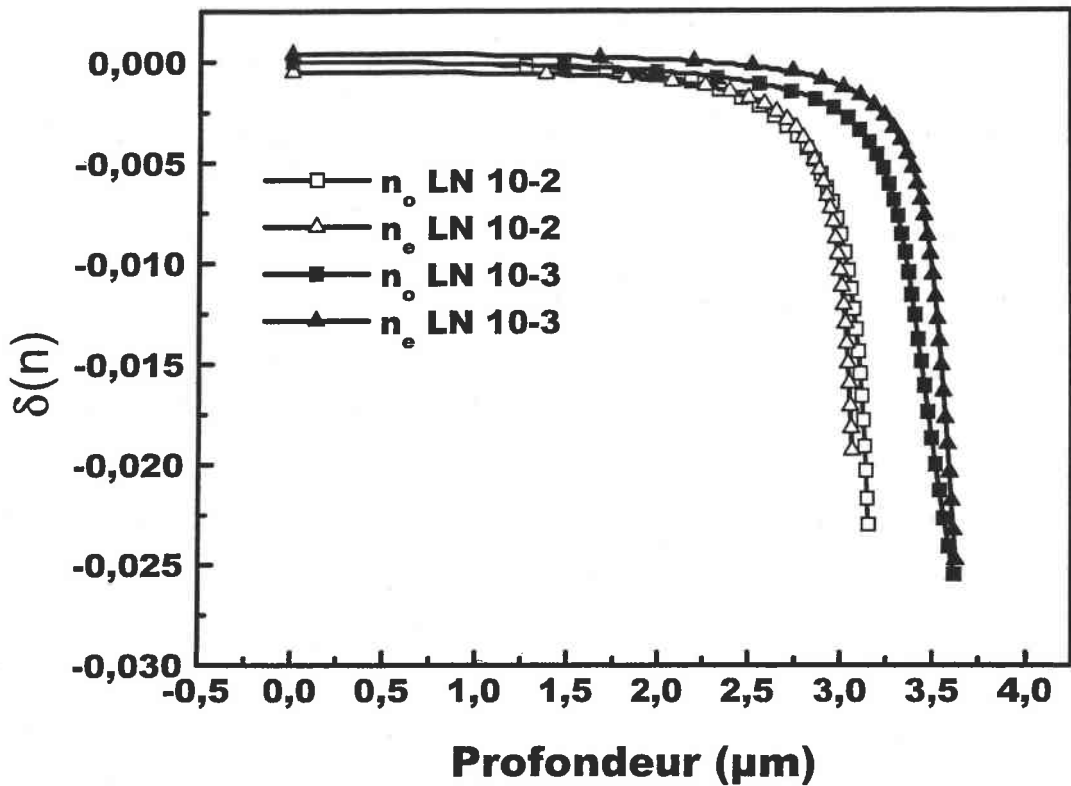


Figure 42 : Profil d'indice échantillon LN 10-2 et LN 10-3.

Les trois guides ont été recuits une heure en atmosphère ambiante à 200°C. Comme nous le verrons plus loin (paragraphe sur l'étude en fonction du recuit) il est à noter que si l'on ne pratique pas de recuit il n'est pas possible d'observer de guidage en couplage découplage par la tranche.

La figure 42 nous présente le profil d'indice i-WKB pour les échantillons LN 10-2 et LN 10-3. L'échantillon LN 10-1 ne possédant que deux modes guidés on ne peut réaliser un

calcul i-WKB. Ces profils sont établis à partir des valeurs expérimentales données dans le tableau 5 pour les deux indices de réfraction  $n_o$  et  $n_e$ . Pour les guides LN 10-2 et LN 10-3 on constate que les épaisseurs données par le profil sont en très bon accord avec celles calculées par le modèle d'un guide à saut d'indice parfait du tableau 5.

La variation maximale de l'indice de réfraction obtenue est de  $2,5 \cdot 10^{-2}$  au voisinage de la barrière pour les deux indices de réfraction dans le cas du guide LN 10-3. Tandis qu'elle est de  $2 \cdot 10^{-2}$  pour  $n_e$  et de  $2,3 \cdot 10^{-2}$  pour  $n_o$  dans le cas du guide LN 10-2. L'indice de la couche guidante est quant à lui constant.

### 3.1.3 Mesures de pertes

Les expériences de spectroscopie des lignes noires précédentes nous ont permis d'étudier les propriétés optiques linéaires de nos guides implantés. Nous avons ainsi pu démontrer que nous obtenons des modes guidés en polarisation TE et TM, aux longueurs d'onde pompe et harmonique et cela pour les trois épaisseurs considérées. Il nous faut à présent caractériser les pertes dans nos guides. La technique de mesure employée est une technique qui a été développée par Boudrioua et al au laboratoire MOPS [62]. Elle est basée sur le couplage par prisme/découplage par la tranche. Il est donc indispensable pour mettre cette technique en place de disposer de guides polis sur les tranches.

Pour réaliser cette mesure on injecte un faisceau laser en couplant dans le guide avec un prisme puis l'on mesure l'intensité transmise par le guide avec une photodiode placée en sortie de celui-ci. En couplant successivement à deux distances différentes et en faisant le rapport des intensités transmises par le guide on peut remonter aux pertes globales (diffusion, absorption et effet tunnel optique) [63].

La difficulté majeure posée par cette méthode est qu'il faut s'affranchir des pertes par couplage, i.e. qu'il faut s'assurer d'avoir un couplage identique pour chacune des deux mesures. Pour cela nous analysons à chaque fois le spectre de ligne noire. On sait en effet que ce spectre est fortement dépendant de la valeur du coefficient de couplage (des simulations à l'aide de la méthode de la réflectivité présentée dans le chapitre 1 nous ont permis de le vérifier).

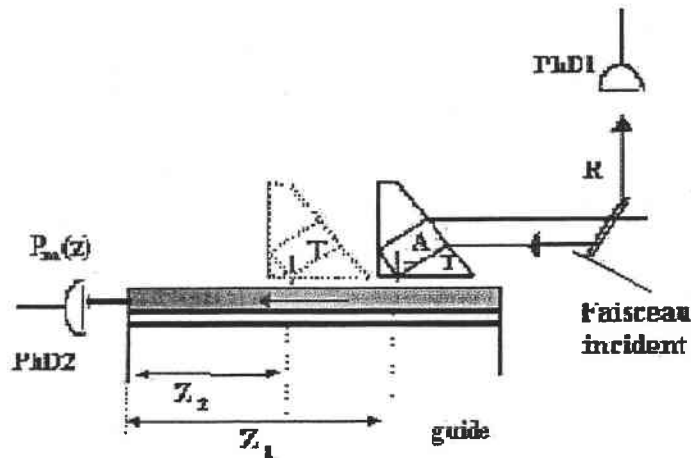


Figure 43 : Schéma de principe de mesure de pertes par couplage par prisme, découplage par la tranche

La figure 43 donne une représentation schématique du principe de cette technique de mesure de pertes.

Avec les notations de la figure 43 les pertes optiques sont données par:

$$\alpha(\text{dB/cm}) = -\frac{4.3}{(Z_1 - Z_2)} \ln\left(\frac{I_1}{I_2}\right) \quad (39)$$

Où  $I_1$  et  $I_2$  sont respectivement l'intensité transmise lorsque l'on couple à la distance  $Z_1$  et  $Z_2$ .

Le rapport des intensités transmises pour chaque mode permet de déterminer les pertes associées. La figure 44(A) montre un recouvrement quasi-parfait entre les spectres réalisés pour chaque distance de propagation ; on peut donc, dans nos calculs, s'affranchir de l'efficacité de couplage comme nous l'avons fait dans l'équation (39).

Nous présentons dans les deux courbes ci-dessous un exemple de mesure de pertes. Celles-ci ont été faites pour l'échantillon LN 10-2.

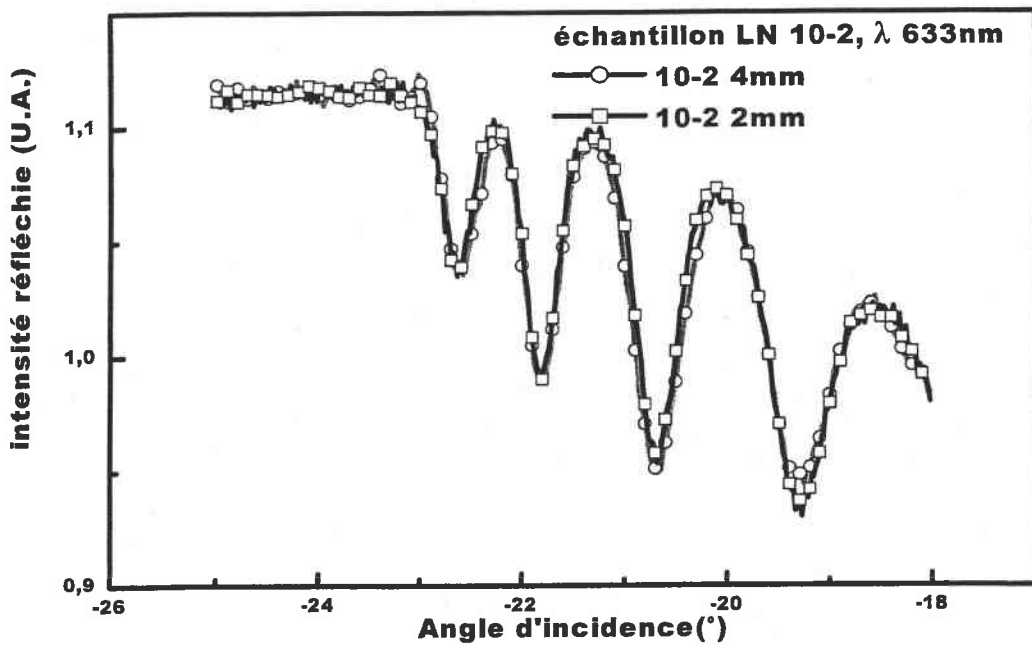


Figure 44 A: Contrôle du couplage par lignes noires, échantillon LN 10-2

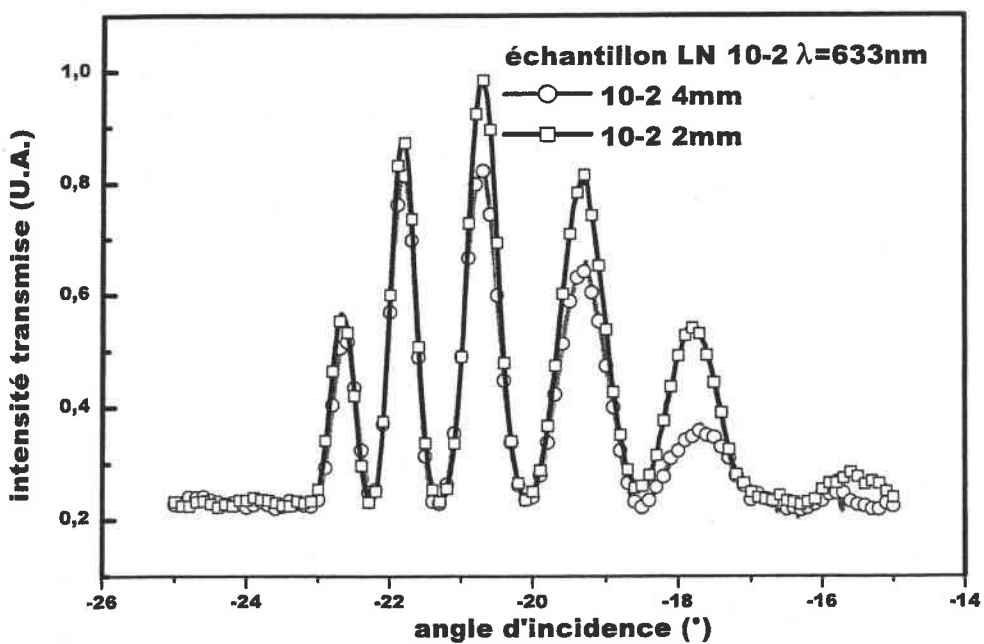


Figure 44 B: Lignes brillantes pour deux propagations de longueurs différentes.

Sur la figure 44 (B) on présente les lignes brillantes correspondant aux lignes noires présentées dans la figure 44 (A). On distingue clairement une baisse de l'intensité transmise pour la distance la plus longue. On constate également que cette différence augmente nettement avec l'ordre du mode.

La position angulaire des lignes brillantes est identique à celle identifiée pour les lignes noires ( pas de modes manquant dans les spectres de lignes noires).

A partir des intensités relatives transmises pour les deux distances de propagation (valeurs prises au maximum du pic) et à l'aide de l'équation 39, nous sommes en mesure de remonter aux pertes associées à chaque mode de propagation.

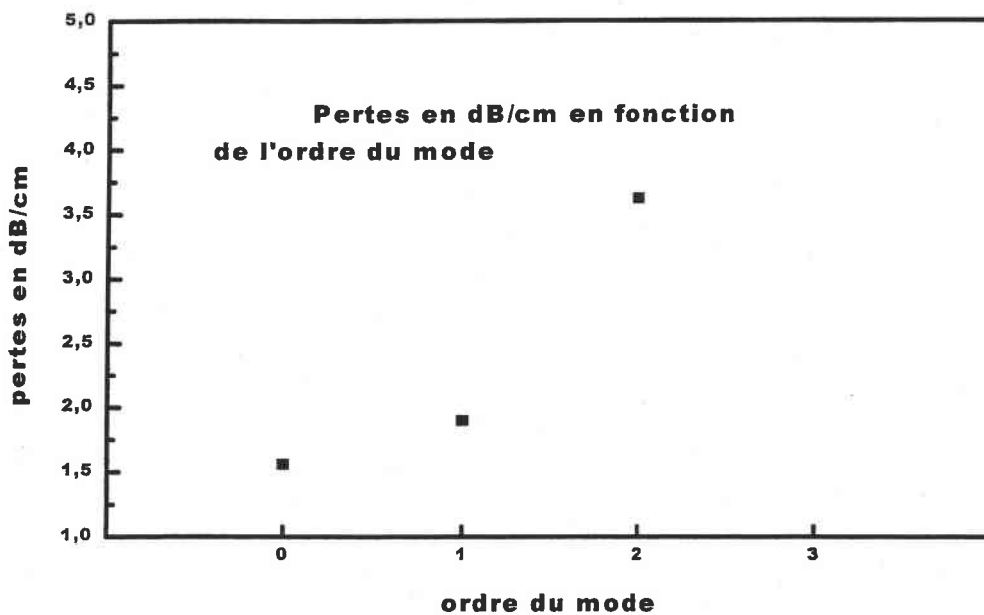


Figure 45 Pertes en dB/cm en fonction de l'ordre du mode pour l'échantillon LN 10-2.

La figure 45 regroupe les résultats obtenus pour les trois premiers modes identifiés précédemment comme étant des modes guidés pour l'échantillon LN 10-2.

L'étude précédente a été reproduite sur les trois guides PPLN :He+ de pas  $10\mu\text{m}$ , nous regroupons les résultats dans le tableau 6.

Nom de l'échantillon (épaisseur correspondante $\mu\text{m}$ ) \diagdown	Ordre du mode	Pertes en dB/cm pour le mode 0, $\pm 0,2\text{dB/cm}$	Pertes en dB/cm pour le mode 1, $\pm 0,2\text{dB/cm}$
10-1 (2,5)		2,0dB/cm	3,5dB/cm
10-2 (3,1)		1,6dB/cm	1,9 dB/cm
10-3 (3,5)		1,3 dB/cm	1,7 dB/cm

**Tableau 6 : Pertes en fonction de l'épaisseur du guide.**

De manière à pouvoir comparer les différents résultats on ne présente ici que les valeurs obtenues pour les deux premiers modes guidés (l'échantillon LN 10-1 ne comporte en effet que deux modes guidés à cette longueur d'onde).

On constate tout d'abord que les pertes augmentent en fonction de l'ordre du mode pour chacun des trois guides. De plus les pertes les plus importantes sont attribuées au guide de plus faible épaisseur.

Le guide LN 10-1 comporte des pertes trop importantes pour être acceptables. Le fait que les pertes augmentent si rapidement lorsque l'épaisseur diminue nous laisse à penser que ce sont les pertes par effet tunnel optique qui sont dominantes dans nos guides. En effet, on sait que lorsque l'épaisseur diminue et/ou que l'ordre du mode augmente, le champ électrique vient tester de manière plus significative la barrière optique. Ce phénomène est alors d'autant plus important dans l'échantillon LN 10-1 de plus faible épaisseur.

Après avoir fait cette étude des modes guidés et des pertes de nos guides d'ondes en fonction des énergies utilisées nous nous sommes intéressés à l'influence du recuit sur nos guides. Nous avons donc fait une étude similaire sur l'échantillon LN 10-3 pour différentes durées de recuit.

## 3.2 Etude en fonction du recuit

### 3.2.1 Mesures des indices effectifs et calcul du profil d'indice

Le choix de l'échantillon LN 10-3 a été fait car il présente les plus faibles pertes à la propagation.

A noter que chaque recuit a été effectué dans l'air ambiant et que les échantillon ont été insérés dans le four directement à la température de 200°C et qu'ils ont été retiré ensuite pour refroidir à température ambiante.

La figure 46 présente les profils iWKB de l'échantillon LN 10-3, pour les différents temps de recuits, reconstruit à partir des valeurs des indices effectifs pour les indices  $n_o$  et  $n_e$ . Nous pouvons faire deux remarques sur ce profil : tout d'abord l'épaisseur a été légèrement réduite au bout de 2h et la variation d'indice n'est plus que de  $1,6 \cdot 10^{-2}$  pour  $n_o$  et de  $1,8 \cdot 10^{-2}$  pour  $n_e$  au voisinage de la barrière. On peut penser que les ions  $He^+$  ont diffusé, et ceci au moins en direction de la surface, ce qui expliquerait la variation de l'épaisseur, de plus la plus faible concentration en ions dans la barrière justifierait, a priori, la baisse de la variation de l'indice de réfraction. Ces résultats sont en accord avec des études de recuit effectués au laboratoire sur le KTP [64].

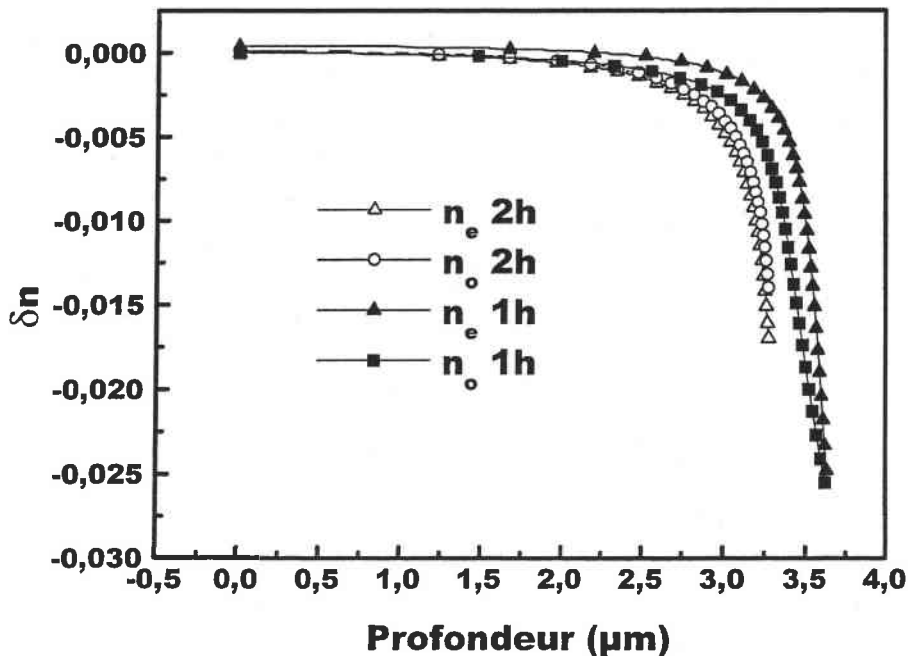


Figure 46 : Profil d'indice échantillon 10-3 après recuit de 1h et 2h.

Il est à noter que, concernant cet échantillon, nous avons tenté de pratiquer un couplage/découplage par la tranche sans aucun recuit et que cela a été impossible. Bien que des travaux précédents aient montré qu'il existe une barrière d'indice sans recuit [65], dans nos conditions d'implantation il ne nous a pas été possible d'obtenir le guidage sans recuit. On peut penser que la barrière optique, bien qu'existante, ne possède pas les propriétés suffisantes en terme de pertes, pour propager la lumière sur toute la longueur de l'échantillon.

Cet échantillon a également fait l'objet d'un recuit de 4h, mais au bout de cette durée il nous a été impossible de pratiquer le couplage-découplage par la tranche. Il est probable que la barrière optique existe toujours mais son épaisseur et/ou son amplitude est trop faible pour confiner la lumière. Nous avons réalisé des mesures en spectroscopie des lignes noires après ce recuit de 4h. Nous avons observé des lignes noires pour les deux polarisations, cependant, il nous a été impossible de reconstruire un profil i-WKB cohérent, certainement parce qu'il y avait moins de trois modes guidés. De plus il nous a été impossible d'identifier les modes guidés en réalisant un couplage par la tranche découplage par prisme car, comme nous l'avons dit pour le couplage-découplage par la tranche, nous n'avons pas pu confirmer l'existence d'un guide après ces 4 h de recuit.

De même que pour l'étude en fonction de l'énergie nous avons mesuré l'évolution des pertes en fonction de la durée du recuit.

### 3.2.2 Mesures de pertes

Les mesures effectuées comme décrit précédemment sont regroupées dans le Tableau 7.

Les résultats sont présentés pour trois durées de recuit différentes mais à une température constante de 200°C. On constate que le passage de 1h à 2h de recuit permet de diminuer sensiblement les pertes pour les deux premiers modes guidés. Les valeurs atteintes au bout des ces 2H de recuit atteignent des niveaux acceptables de 1dB/cm pour le mode fondamentale. Mais l'une des informations les plus intéressantes tient à la destruction des propriétés guidantes au bout de 4h de recuit à 200°C.



Durée du recuit	Pertes en dB/cm pour le mode d'ordre 0. ( $\pm 0,2$ dB/cm)	Pertes en dB/cm pour le mode d'ordre 1. ( $\pm 0,2$ dB/cm)
0H	Pas de guide.	Pas de guide.
1H	1,3	1,7
2H	1,0	1,4
4H	Le guide est détruit.	Le guide est détruit.

**Tableau 7 : Pertes en fonction de la durée du recuit**

Les travaux précédents qui avaient analysé les effets du recuit sur les guides implantés s'étaient bornés à des expériences de spectroscopie des lignes noires. Or la présence d'une barrière optique est certes une condition nécessaire mais pas suffisante car c'est une mesure locale dans laquelle on n'analyse pas la propagation de l'onde. On peut donc penser que la barrière persiste mais que celle-ci est trop fine ou trop faible (en variation d'indice) pour guider la lumière efficacement (i.e. avec des pertes limitées) sur toute la longueur de l'échantillon.

Cette étude permet de dégager des tendances qui permettront d'optimiser les guides en terme de propriétés guidantes mais également de pertes. On sait en effet que l'obtention d'un guide quasi monomode est une perspective séduisante (en terme d'intégrale de recouvrement) mais qu'elle induit, dans le cas des guides implantés, des problèmes liés aux pertes par effet tunnel optique [66]. On sait également que le recuit nous permet de réduire les pertes mais que ce gain est limité. Il faudrait sans doute faire une étude avec des durées différentes et plus rapprochées et éventuellement s'intéresser à d'autres températures.

Il paraît également intéressant d'étudier le comportement des pertes pour des guides réalisés avec plus de trois implantations.

Une dernière conclusion est que les interactions qui donnent lieu à la GSH dans les guides sont préférentiellement celles d'ordre faible, et cela non seulement par la valeur de l'intégrale de recouvrement mais également à cause des pertes qui augmentent très rapidement avec l'ordre du mode.

### ***3.3 Etude complémentaire : Spectroscopie des lignes noires en fonction de la longueur d'onde.***

Dans le cadre de ce travail nous nous sommes également intéressés à réaliser des expériences de lignes noires à différentes longueurs d'onde. En effet on peut se demander si les défauts nucléaires introduisant la variation de l'indice de réfraction sont vus de la même façon à toutes les longueurs d'ondes.

Les résultats de ces expériences dont nous ne rapporterons ici que l'aspect qualitatif nous ont permis de conclure qu'une barrière optique est créée à toutes les longueurs d'onde utilisées et que des modes guidées ont été obtenus pour chacune d'elle. On a également pu conclure que les résultats obtenus à 633nm sont extrapolables pour des longueurs d'onde proches (entre 450 et 1000 nm environ).

Mais ces mesures présentent un autre intérêt non négligeable. En appliquant le modèle du guide saut d'indice on a déterminé la valeur de l'indice de réfraction dans la partie guidante. La partie guidante peut en effet avoir un indice modifié par rapport au cristal vierge (ce qui est plus particulièrement vrai pour l'indice extraordinaire). On a donc pu réaliser un ajustement de ces valeurs en fonction de la longueur d'onde et en déduire une équation de type Sellmeier.

En effet, si l'on désire faire un calcul précis des longueurs d'onde d'accord de phase dans nos guides, il convient d'avoir les courbes de dispersion exactes de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde, pour nos substrats. Cette étude a été réalisée sur un seul échantillon, mais cela ne semble pas limitatif si l'on considère que les échantillons sont tous homogènes (une seule série de substrats a été utilisée pour réaliser les échantillons décrits dans le paragraphe 2.1.1).

L'ajustement théorique est obtenu en utilisant les équations de Sellmeier dépendantes de la température du niobate de lithium congruent, extraites de la thèse de V. Pruneri [53] dont la forme générale est donnée par l'équation :

$$n_{e}^2 = A_{1ne} + \frac{(A_{2ne} + A_{3ne} \times (T - A_{8ne})(T + A_{9ne}))}{\lambda^2 - (A_{4ne} - A_{5ne} \times (T - A_{8ne})(T + A_{9ne}))^2} + A_{6ne} \times (T - A_{8ne})(T + A_{9ne}) - A_{7ne} \times \lambda^2$$

où

$\lambda$  est la longueur d'onde en nanomètre

T est la température en Celsius

$A_{ine}$  sont les coefficients de Sellmeier pour l'indice extraordinaire.

Les valeurs des indices de réfractons pour le LN sont données dans le tableau 8 :

Longueur d'onde (nm)	Indice ordinaire	Indice extraordinaire
514	2,333	2,25
633	2,287	2,207
899,7	2,246	2,173
929,6	2,244	2,172
979,4	2,241	2,168

**Tableau 8 : Valeurs des indices de réfraction aux différentes longueurs d'onde.**

L'ajustement théorique est donné pour les deux indices de réfraction dans les courbes suivantes. On remarque que nous avons utilisé les valeurs des indices de la barrière optique, données par la méthode iWKB et que nous avons superposé à ces courbes celles données par V. Pruneri. On note que si l'indice ordinaire est en parfait accord dans la partie guidante, en revanche l'indice extraordinaire est légèrement supérieur dans nos expériences. Cela peut s'expliquer par le fait que l'implantation ionique par He+ peut provoquer une augmentation de l'indice extraordinaire dans la couche guidante du LN [61].

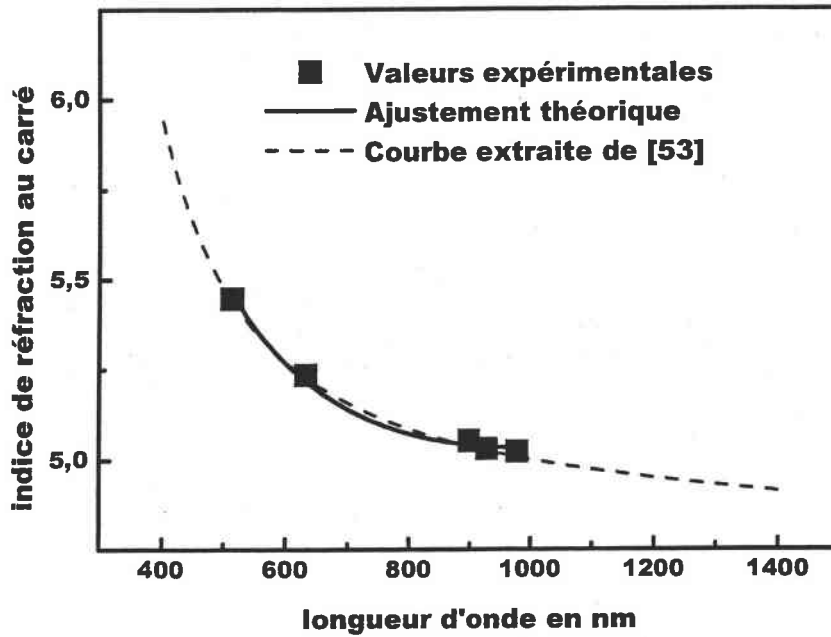


Figure 47 : Dispersion de l'indice ordinaire de la partie guidante.

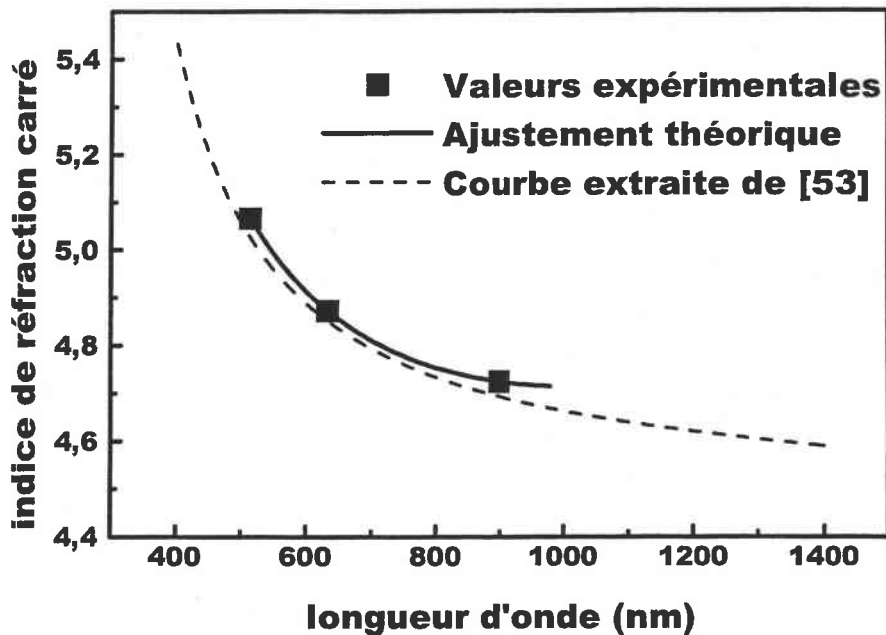


Figure 48 : Dispersion de l'indice extraordinaire de la partie guidante.

On rapporte dans le tableau 9 les valeurs des paramètres d'ajustement déterminés pour les courbes présentées dans les figures 47 et 48.

	$n_o$	$n_e$
$A_1$	5,10	5,01
$A_2$	216579,7	2204,0
$A_3$	546,50	0,65
$A_4$	-0,036	0,490
$A_5$	0,0032	$-9,77 \cdot 10^{-7}$
$A_6$	0,0701	$8,0 \cdot 10^{-6}$
$A_7$	$-2,26 \cdot 10^{-7}$	$-1,50 \cdot 10^{-7}$
$A_8$	20,3	45,5
$A_9$	1,6	3295,6

**Tableau 9 : Coefficients des équations de Sellmeier pour le LN congruent.**

## 4 Caractérisation non-linéaire

### 4.1 Description du dispositif

Nous avons montré, dans la section précédente, que l'on pouvait réaliser des guides par implantation dans des structures PPLN. Nous avons de plus caractérisé ces guides pour diverses conditions de fabrication et de post fabrication, tant au niveau des propriétés de guidage que des pertes. La suite de ce chapitre s'attachera donc à montrer les aptitudes de ces guides pour la génération de second harmonique. Pour cela nous avons mis en place un banc qui nous permet d'obtenir la GSH en massif et dans le guide. Ce dispositif a ensuite été entièrement automatisé et ceci afin d'en rendre l'utilisation plus aisée et les résultats plus reproductibles.

Le dispositif de doublage de fréquence est composé d'une cavité Ti :Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pompée par un laser Argon. La puissance du laser de pompe Argon est de 27 W maximum en continu. La cavité Titane saphir émet sur une large bande, et un réseau à l'intérieur de la cavité permet de sélectionner la raie laser sur laquelle le laser va émettre. A la sortie du laser Ti :Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> on dispose d'une puissance continue d'environ 1W suivant la longueur d'onde à laquelle on travaille. Trois jeux de miroirs différents permettent de couvrir la gamme de longueur d'onde allant de 750 nm à 1050 nm.

Le faisceau est ensuite polarisé avec un polariseur de GLAN. Après le polariseur une lame demi-onde permet de faire tourner la polarisation suivant que l'on veut travailler avec une polarisation TE ou TM dans le guide d'onde.

Le faisceau ainsi polarisé est ensuite focalisé sur la tranche du guide d'onde grâce à un objectif de microscope pour pratiquer le couplage par la tranche. A la sortie du guide on découple le faisceau grâce à un autre objectif de microscope. Les trois éléments : guide et objectifs de microscope sont disposés sur des systèmes de déplacement micrométrique trois axes, le cristal dispose de plus d'un degré de liberté assuré par une platine de rotation horizontale.

En sortie de guide on récolte le faisceau pompe résiduel ainsi que le faisceau harmonique. On filtre le fondamentale, grâce à un filtre passe bas, et l'on détecte le faisceau doublé avec un photo multiplicateur ou avec une photodiode suivant la puissance et suivant que l'on désire faire une mesure en absolu ou en relatif. A noter que pour limiter le bruit (bruit

de détection, lumière ambiante résiduelle ou bruit thermique) on module le faisceau pompe. L'utilisation d'une détection synchronisée sur cette modulation nous permet de limiter le bruit total.

L'automatisation est assurée par un moteur pas à pas commandé par un bus GPIB par l'intermédiaire d'un indexeur rotateur. Ce moteur permettant d'agir sur le vernier (qui déplace un réseau de diffraction à l'intérieur de la cavité) du laser  $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$  et d'en faire varier la longueur d'onde. Simultanément, une carte d'acquisition Kethley permet le traitement du signal détecté par un photomultiplicateur. Un Vi (« Virtual instrument ») élaboré sous Labview coordonne l'ensemble sur un PC par l'intermédiaire d'une interface conviviale.

La figure 49 présente le schéma de principe de ce dispositif.

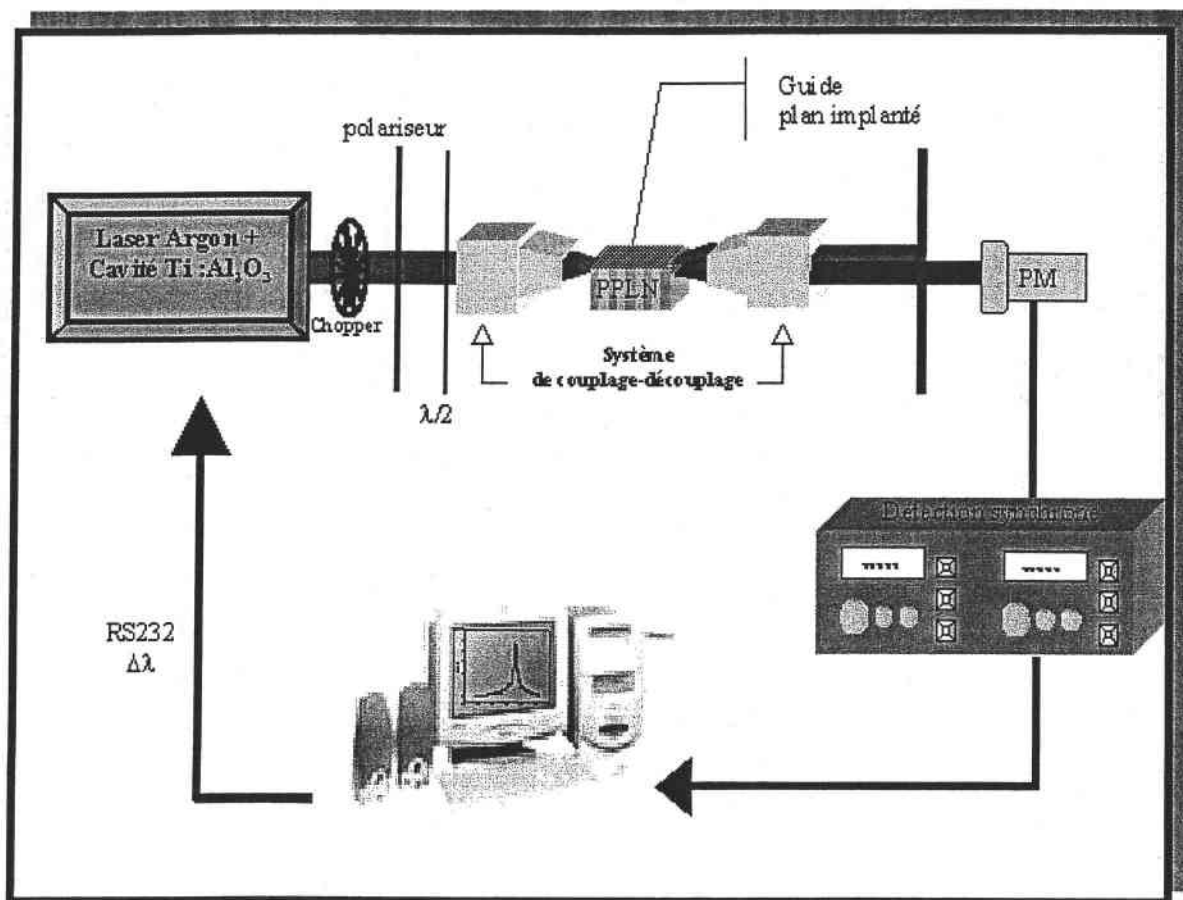


Figure 49 : Dispositif expérimental de GSH

Un tel dispositif permet de caractériser la non linéarité du guide à travers deux paramètres :

- Tout d'abord la variation en longueur d'onde et la détection simultanée de la puissance harmonique permettent de déterminer la longueur d'onde d'accord de phase reliée au pas du réseau de QAP, à l'ordre de QAP et à la dispersion du matériau (voir expression (20) p. 14).
- Ensuite, la largeur à mi-hauteur de ce pic permet de remonter à la longueur d'interaction effective au sein de ce guide. La figure 50 donne une représentation des variations du pic d'accord de phase en fonction de la longueur d'interaction (PPLN congruent de pas  $10\mu\text{m}$ ). Ces courbes sont établies à partir de l'équation (12).

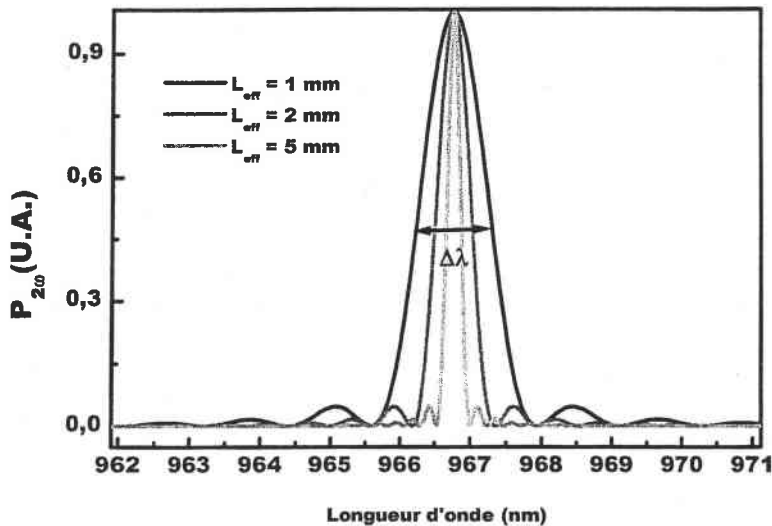


Figure 50 : Variation des conditions d'accord de phase en fonction de la longueur d'interaction.



## 4.2 GSH dans PPLN :He+ plan de pas $10\mu\text{m}$

L'étude que nous avons menée sur les échantillons de pas  $10\mu\text{m}$  avait plusieurs objectifs. Comme on l'a déjà vu, il s'agissait de réaliser une étude en fonction des paramètres du guide et notamment de l'épaisseur de celui-ci mais également de la durée du recuit. Ces deux paramètres peuvent nous permettre, par leur optimisation, de réduire les pertes optiques. Mais il convient également d'examiner le couplage, c'est à dire l'intégrale de recouvrement entre modes. On sait en effet que si l'on a un guide monomode pour la longueur d'onde fondamentale, on va éviter à l'énergie pompe de se répartir dans des modes qui ne participent pas à la GSH. Cependant comme nous allons le voir, la conclusion n'est pas aussi immédiate.

Avant de réaliser la GSH dans le guide plan, nous nous sommes intéressés à la GSH en massif, de manière à confirmer les longueurs d'onde d'accord de phase déterminées grâce à la connaissance du pas du réseau et aux équations de Sellmeier calculées plus haut. On constate sur la figure 51 que le balayage en longueur d'onde, sur une grande plage (utilisant deux jeux de miroirs différents), permet d'obtenir trois longueurs d'onde d'accord de phase différentes. Ces trois longueurs d'onde de QAP correspondent aux ordres 2, 3 et 4. L'ordre 1 qui se trouve à  $1200\text{nm}$  environ n'est pas accessible avec notre laser accordable.

Le fait que l'on puisse voir ces trois ordres dans une même région de notre cristal nous confirme, comme nous avons pu le constater dans le chapitre 2, que le facteur de cycle de nos structures n'est pas de 50%.

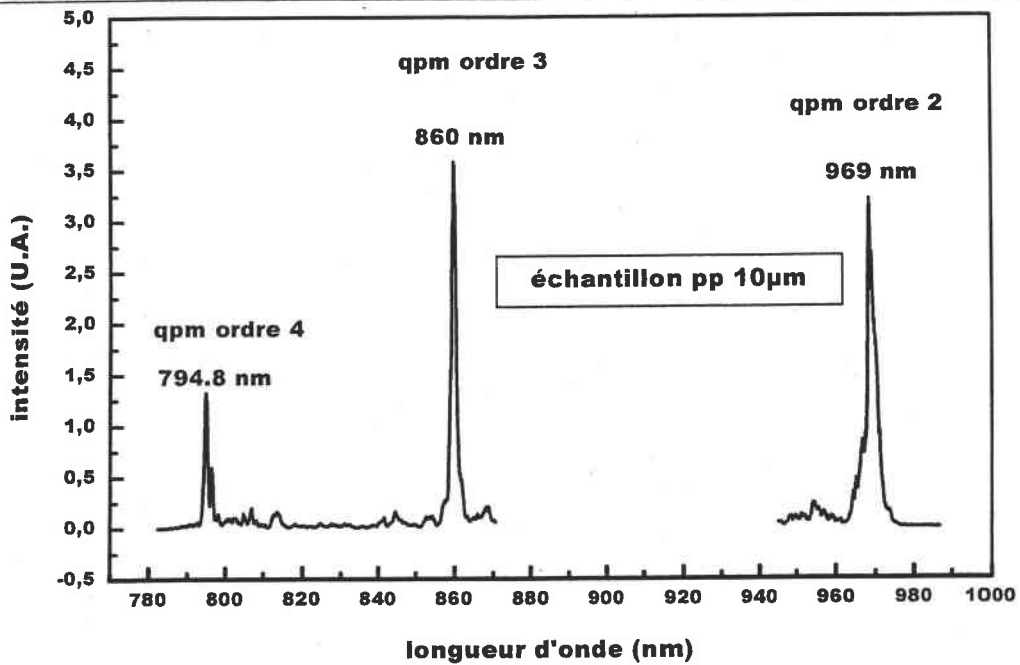


Figure 51 : GSH dans le massif PPLN 10 $\mu$ m

Sur la courbe de la figure 51, on ne peut pas comparer les intensités relatives de l'ordre 2 avec celles des deux autres ordres car celles-ci ont été réalisées dans d'autres conditions.

Cependant, les ordres 3 et 4 peuvent être comparés. Les courbes de la figure 52 et de la figure 53 donnent l'efficacité normalisée, en fonction du facteur de cycle, pour les quatre premiers ordres, ainsi que le rapport d'efficacité entre l'ordre trois et l'ordre quatre. Sur la figure 51 on voit que ce rapport est de 2,7. Ce rapport est vrai pour plusieurs valeurs du facteur de cycle. Ceci est dû à la symétrie des courbes par rapport à un facteur de cycle de 50%.

Mais la valeur qui est la plus proche de 65% (mesuré de façon approximative par microscope optique après attaque acide voir dans le chapitre 2) est détaillée par des cercles en traits épais sur la figure 53 et correspond à un facteur de cycle de 71% (ou 29% par symétrie).

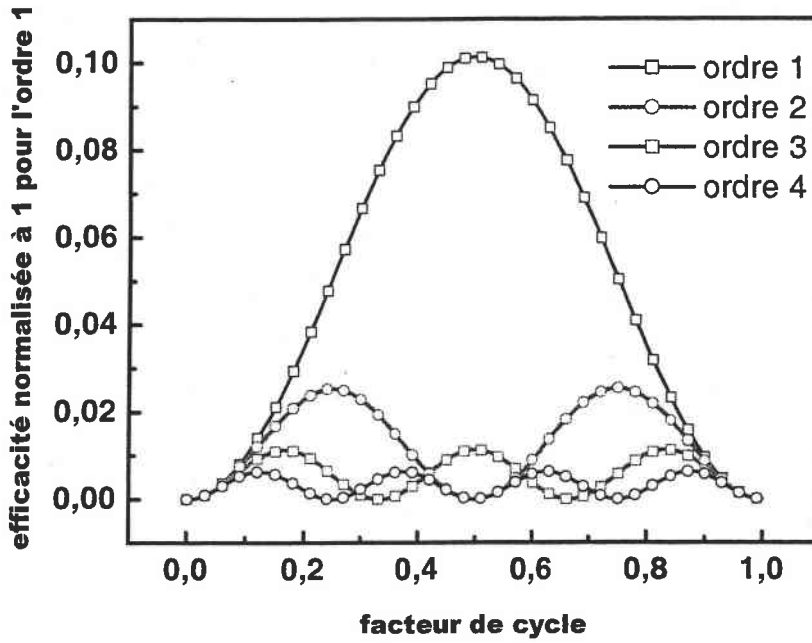


Figure 52 : Efficacité normalisée pour les différents ordres en fonction du facteur de cycle

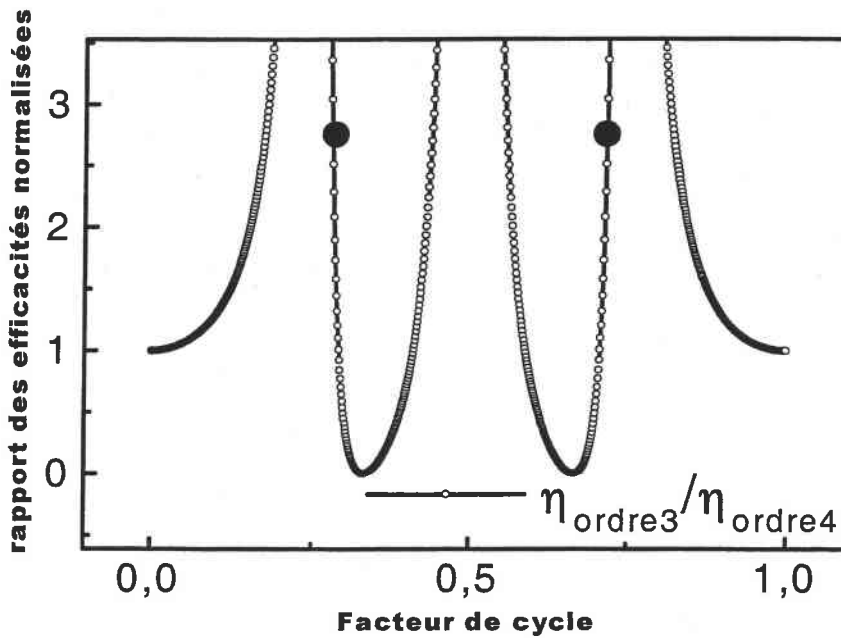


Figure 53 : Rapport des efficacités en fonction du facteur de cycle pour l'ordre 3 et 4.

Ce calcul est intéressant car il permet de connaître avec plus de précision la valeur du facteur de cycle et donc de donner des informations de manière à prédire les ordres de QAP qui seront observables dans le guide.

La figure 54 présente la puissance de second harmonique en fonction de la longueur d'onde pour le guide LN 10-2. On constate que la longueur d'onde d'accord de phase est de 982 nm et qu'un autre pic est observable vers 980nm. Une courbe similaire est obtenue pour le guide LN 10-1 avec plusieurs pic entre 965 et 970 nm.

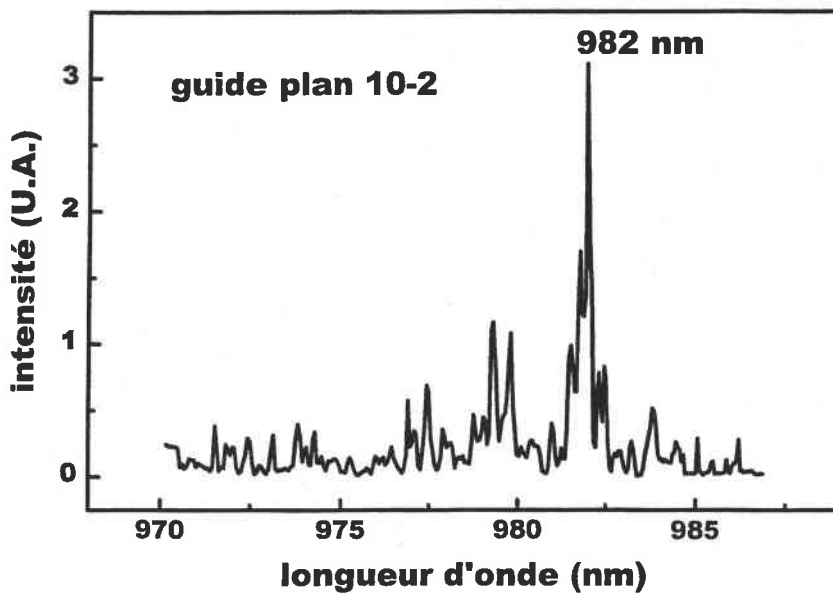


Figure 54 : GSH du second ordre dans le guide plan LN 10-2.

Il faut noter que le signal de SH est très faible ( $<100\text{nW}$ ) dans les deux guides alors que le massif nous permet d'avoir plusieurs  $\mu\text{W}$  pour  $100\text{mW}$  de pompe. Cela peut s'expliquer car il est très difficile de coupler dans ces guides De plus comme on peut le constater sur la figure 54 on observe plusieurs longueurs d'onde pour lesquelles on a la GSH.

Ceci peut s'expliquer par le fait que le mauvais couplage, entre le faisceau pompe et le guide, permet l'excitation de tous les modes guidés et pas seulement le mode fondamental et donc plusieurs types d'interaction sont visibles. Cela peut également être dû au fait que le guide étant beaucoup plus mince les défauts de celui-ci sont plus critiques. On sait en effet que s'il y a des défauts d'homogénéité du guide (surtout en variation d'indice), l'indice effectif va être modifié sur une certaine distance et alors une nouvelle longueur d'onde

d'accord de phase devient possible. Bien entendu ceci est très préjudiciable à l'efficacité de conversion.

Enfin nous présentons sur la figure 55 les résultats de doublage de fréquence sur l'échantillon LN 10-3. Ce guide nous a permis d'obtenir une GSH du second ordre suffisamment efficace pour pouvoir faire des mesures de taux de conversion reproductibles. Nous avons donc pu faire une étude plus approfondie en terme de recuit de manière à voir si l'efficacité de conversion pouvait être augmentée de façon significative.

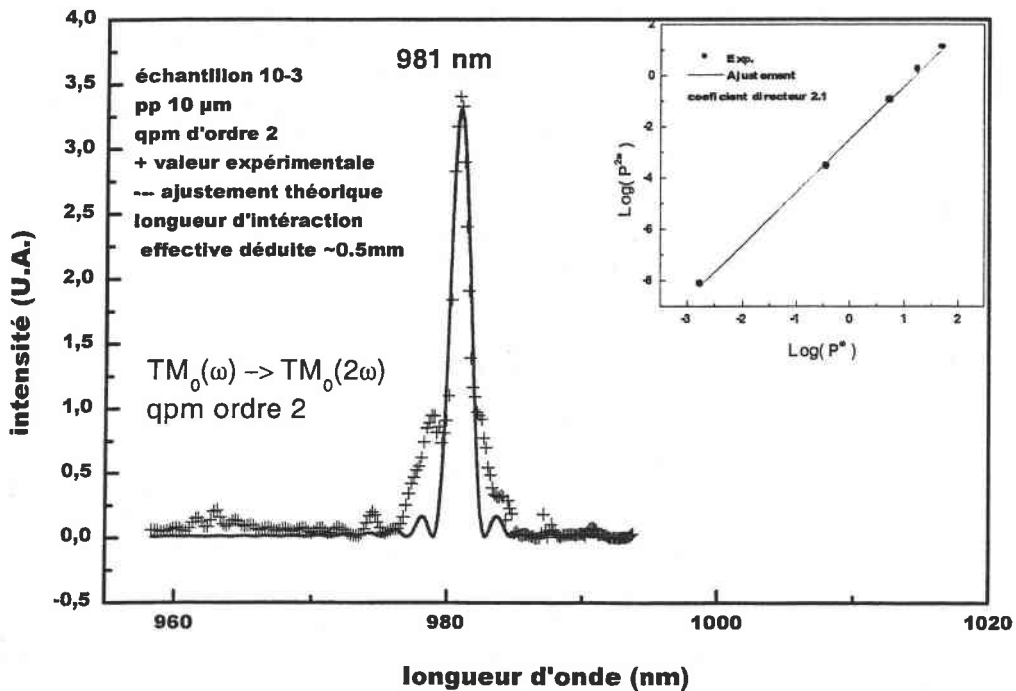


Figure 55 : GSH du second ordre dans le guide plan 10-3 recuit 1h.

		GSH échantillon 10-3			
Ordre de QAP	$\lambda_{qap}$ massif	Théorie			Résultats expérimentaux. ± 1 nm
		Interaction	$I_{OVL}(m^{-1/2})$	$\lambda_{qap}(nm)$	
2 <sup>ème</sup>	967	TM <sub>0</sub> (ω)→TM <sub>0</sub> (2ω)	1373	978	981
3 <sup>ème</sup>	859	TM <sub>0</sub> (ω)→TM <sub>0</sub> (2ω)	1430	866	870
4 <sup>ème</sup>	794	TM <sub>0</sub> (ω)→TM <sub>0</sub> (2ω)	1474	799	805

Tableau 10 : Comparaison théorie expérience pour la GSH dans le guide plan 10-3 recuit 1h.

Si l'on prend le modèle du guide plan à saut d'indice parfait avec les paramètres de guides et les équations de Sellmeier déterminées dans le paragraphe 2.3, on s'aperçoit dans le tableau 10 qu'on a une très bonne corrélation entre les valeurs mesurées expérimentalement et les calculs prédictifs basés sur les mesures linéaires. L'influence de la dispersion modale est donc parfaitement prise en compte par ce modèle, et elle permet de donner les paramètres de guides et la période du réseau de QAP pour générer une longueur d'onde précise.

Nous avons répété l'expérience de GSH, après le recuit, pour l'ordre 2 seulement. Le but étant de savoir si la longueur d'onde était modifiée de façon significative par des changements du guide, et surtout si l'on pouvait montrer que l'efficacité de conversion pouvait être améliorée. La figure 56 présente le résultat de GSH après recuit de 2h à 200°C.

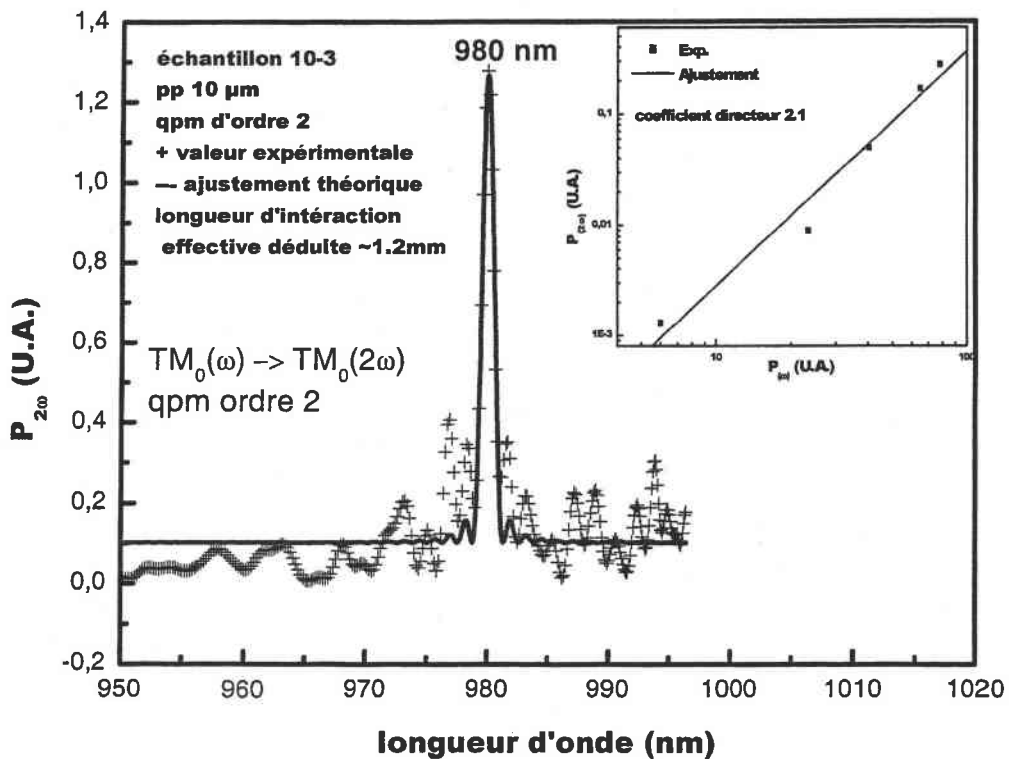


Figure 56 : GSH du second ordre dans guide plan 10-3 (recuit 2h)

Les encarts dans les figures 55 et 56 représentent la variation quadratique de la puissance harmonique en fonction de la puissance fondamentale, ces courbes nous ont permis

de faire des calculs de taux de conversion. Pour comparaison, à l'ordre 2 de QAP, le taux de conversion est de  $2,5 \cdot 10^{-3} \%/W$  ( $\pm 0,5 \cdot 10^{-3} \%/W$ ) alors qu'il passe à  $3,6 \cdot 10^{-3} \%/W$  ( $\pm 0,5 \cdot 10^{-3} \%/W$ ) dans le guide plan 10-3 recuit une heure et à  $6,5 \cdot 10^{-3} \%/W$  ( $\pm 0,5 \%/W$ ) dans le guide plan 10-3 recuit 2h à 200°C. Nous avons donc pu améliorer de façon sensible le taux de conversion. On peut d'ailleurs le voir également sur la longueur effective d'interaction qui passe de 0.5 mm à 1.2 mm dans les figures 55 et 56.

Cependant, dans toutes ces expériences, si l'on soumet le guide à des puissances de plusieurs mW pendant plusieurs minutes, on observe une chute de l'intensité de second harmonique qui est due à l'endommagement par effet photoréfractif. La section suivante s'attachera à exposer des solutions pour empêcher ce problème.

L'amélioration du taux de conversion grâce au recuit peut être expliquée de deux façons différentes. Tout d'abord une amélioration de la structure PPLN, cependant celle-ci ayant été recuite après fabrication, on considère qu'elle ne doit pas subir de nouvelles modifications. En revanche on a vu que les performances du guide étaient améliorées en terme de pertes. Il est donc probable qu'il soit aussi plus homogène après recuit ce qui expliquerait une plus grande longueur d'interaction et un meilleur taux de conversion.

## 5 Conclusion

Ces taux de conversion restent cependant insuffisants. La faible efficacité du cristal massif provient bien évidemment d'une structure PPLN hétérogène tant au niveau de la distance d'interaction efficace (voir figures 55 et 56) que d'un facteur de cycle mal adapté, comme nous l'avons montré précédemment. De plus l'ordre 2 est quatre fois moins efficace que l'ordre 1 de QAP.

Cependant il est intéressant de noter que cette efficacité de conversion est accrue par l'utilisation du guide d'onde plan, d'environ 50%. Nous sommes encore assez loin de l'ordre de grandeur qui devrait être normalement gagné lorsque l'on passe du massif au guide plan, cependant il faut noter que les pertes restent encore trop importantes, c'est pourquoi nous avons pratiqué un recuit dans l'espoir de les réduire.

Comme nous l'avons vu au début de cette partie celles-ci ont été notablement réduites par l'utilisation de ce recuit. Le taux de conversion s'en ressent puisque après 2h de recuit à 200°C on obtient presque le double d'efficacité. Enfin nous savons que si l'implantation d' $\text{He}^+$  permet de conserver les propriétés non linéaires du cristal en grande partie (50%)[68], l'implantation d' $\text{H}^+$  permet quant à elle de les préserver en quasi-totalité [69]. C'est donc une voie qu'il paraît intéressant d'explorer.



---

## 6 Bibliographie

- [61] A. Boudrioua. Thèse pour l'obtention du doctorat. Université de Metz. (1996).
- [62] A. Boudrioua, J.C. Loulergue. Optics Communications 137(1997)37-40.
- [63] Townsed, P.D., Chandler, P.J., Zhang, L. , 'Optical effects of ion implantation'. (Cambridge University Press, Cambridge 1994).
- [64] P. Bindner. Thèse pour l'obtention du doctorat. Université de Metz. (1999)
- [65] A. Boudrioua , J.C. Loulergue, F. Laurell and P. Moretti. December 2001, vol. 18, No. 12/J.Opt.Soc.Am.B.
- [66] Pliska, T., Fluck, D., Günter, P., Beckers, L., Buchal, Ch., J. Opt.Soc. Am. B 15, 628 (1998).
- [67] V. Pruneri. Thesis submitted for the degree of doctor of philosophy. May 1996. University of Southampton.
- [68] P. D. Twonsend. Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B, 46, 18, (1990).
- [69] A Boudrioua, R. Kremer, J. C. Loulergue, S. Ould Salem, and P. Moretti, Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. (1998)

**Chapitre 3 B :**  
**Caractérisation de guides**  
**implantés dans des PPLN :Zn**  
**de pas 6.7 et 6.8 $\mu$ m**

# SOMMAIRE

1	Introduction .....	118
2	Effet photo-réfractif .....	118
2.1	Dans un cristal mono domaine de niobate de lithium (« Single domain lithium niobate » SDLN) .....	118
2.2	Dans un cristal périodiquement polarisé de niobate de lithium (PPLN) .....	121
2.3	Effets du dopage .....	122
2.3.1	Dopage par MgO .....	122
2.3.2	Dopage par ZnO .....	122
3	Caractérisation linéaire .....	123
3.1	Présentation des échantillons et détermination du profil d'indice .....	123
3.1.1	Conditions d'implantation .....	123
3.1.2	Profil d'indice .....	123
3.1.3	Calcul des coefficients de Sellmeier .....	127
3.2	Mesures de pertes .....	130
4	Caractérisation non linéaire .....	135
5	Conclusion .....	139
6	Bibliographie .....	140

## 1 Introduction

Comme nous l'avons vu dans la fin du chapitre précédent qui traitait de la GSH dans des guides PPLN :He+, il est difficile de maintenir l'efficacité de conversion constante avec le temps. En effet, l'endommagement des cristaux dû à l'effet photo-réfractif induit une variation de l'indice de réfraction et donc de la longueur d'onde d'accord de phase. Si nous voulons intégrer ces cristaux PPLN dans des dispositifs tout solides et compacte il est indispensable de résoudre ce problème. Différentes techniques peuvent être utilisées pour éviter l'endommagement dû à l'effet photo-réfractif. Nous avons quant à nous choisi de travailler avec des cristaux dopés Zn. La motivation de ce choix sera détaillée dans ce chapitre.

Ce chapitre sera donc pour nous l'occasion de faire un rappel sur la nature et l'origine de l'effet photo-réfractif dans le LN et de comparer son influence sur un cristal PPLN. Nous nous attacherons ensuite à détailler les solutions qui existent pour parer à cet effet.

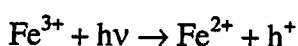
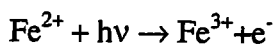
Puis, nous suivrons un plan similaire à celui du chapitre 3A pour présenter les résultats concernant la fabrication et la caractérisation linéaire et non linéaire des guides implantés dans les PPLN :Zn.

## 2 Effet photo-réfractif

### 2.1 Dans un cristal mono domaine de niobate de lithium (« Single domain lithium niobate » SDLN)

Dans la liste des effets présents dans le niobate de lithium, il convient de parler de l'effet qui consiste à modifier l'indice de réfraction d'un matériau lorsqu'il est soumis à une radiation lumineuse [70]. En optique non linéaire, où le but est de conserver un faisceau de bonne qualité, l'effet photo réfractif est plutôt un effet indésirable. Nous allons tout d'abord analyser la source de cet effet photo réfractif, puis nous verrons plus tard qu'il se manifeste différemment dans un cristal mono domaine que dans un monocristal qui est polarisé périodiquement.

Quand de la lumière se propage dans le LN, des impuretés ioniques (typiquement, Fe<sup>2+</sup> et Fe<sup>3+</sup>) peuvent être photo-excités et produire ainsi des électrons ou des trous en suivant le mécanisme ci-dessous [71]:



L'effet photo-réfractif est en fait la somme de phénomènes physiques bien connus.

Tout d'abord, lorsque la distribution de l'intensité lumineuse  $I$  n'est pas uniforme sur une section du faisceau les électrons et les trous se déplacent dans la même direction, il y a apparition de courants de diffusion :

$$j_D = D \nabla n$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion et  $n$  la densité de porteur

Ces courants sont de signes opposés et tendent à se compenser.

Contrairement au courant de diffusion, une autre contribution appelée photovoltaïque est due au fait que ces porteurs de charge sont dans un potentiel asymétrique le long de l'axe  $c$ . Les électrons et les trous qui voient le même potentiel et ont des charges opposées vont migrer dans le sens contraire et créer des courants de même signe. Le courant photovoltaïque est proportionnel à l'intensité lumineuse et s'écrit :

$$J_{PV} = \alpha G I c$$

Où  $\alpha$  est le coefficient d'absorption linéaire,  $G$  est la constante de Glass [72] et  $c$  est le vecteur unitaire selon l'axe  $c$ .

La génération de ces courants induit des transports de charges et donc la création de champ de charges d'espace  $E_s$  auquel est associé un courant ohmique :

$$j_o = \sigma E_s$$

$\sigma$  est la conductivité totale du matériau qui est la somme d'une composante  $\sigma_D$  (conductivité sans éclairage) et de la photoconductivité  $\sigma_{ph} = \alpha K_{ph} I$  proportionnelle à l'intensité lumineuse  $I$ .

En l'absence de champ externe, et dans l'hypothèse d'une charge d'espace stationnaire, le champ  $E_s$  est donné par :

$\nabla \cdot j = \nabla \cdot (j_D + j_{PV} + j_o) = 0$  avec les conditions aux limites. Dans le cas d'un faisceau qui se propage selon l'axe  $ox$  et dans l'hypothèse d'un circuit ouvert ( $j = 0$  aux limites du faisceau) le courant total est tel que  $j = 0$ . donc :

$$E_s = -\frac{D}{\sigma} \nabla n - \frac{\alpha G I}{\sigma} c$$

Le premier terme est le champ dû à la diffusion tandis que le deuxième terme est dû à l'effet photovoltaïque [73]. En considérant que  $\sigma$  est proportionnelle à  $n$  et pour des intensités  $\geq 10^3$  à  $10^4$  W/cm<sup>2</sup> la partie de la conductivité qui n'est pas due à l'éclairement est négligeable. On est en régime dit de photoconductivité. La composante due à la diffusion est de l'ordre de  $kT/2ew$ , où  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  est la température du cristal,  $e$  la charge élémentaire et  $w$  la dimension transverse du faisceau. Pour LN la valeur de  $G/K_{ph} \sim 10$  à  $10^2$  kV/cm alors que  $kT/2ew$  est de quelques ordres de grandeur moindre

L'effet photovoltaïque est dominant dans le LN surtout dans les interactions dans le massif car la taille du faisceau est grande devant celle du guide d'onde ce qui rend la contribution de la diffusion moindre. La contribution photovoltaïque ne change pas beaucoup du massif au guide d'onde à cause de la saturation avec l'intensité lumineuse mais la composante due à la diffusion peut devenir non négligeable si la taille du guide est très faible.

Le champ de charge d'espace  $E_s$  induit un changement d'indice de réfraction par effet électro-optique (effet photo-réfractif). Le changement d'indice suit la distribution spatiale de  $E_s$ , donc la contribution de la diffusion se situe surtout sur les bords du faisceau, tandis que la contribution due à l'effet photovoltaïque se situe à l'intérieur du faisceau. Dans le LN les deux effets sont plus grands selon l'axe  $z$  que selon l'axe  $y$  à cause des valeurs plus grandes de  $r_{33}$  comparée à  $r_{13}$ . C'est pourquoi dans le cristal de LN mono cristallin, lors de la propagation selon l'axe  $ox$  les dommages dus à l'effet photo réfractif induisent une déformation du faisceau selon l'axe  $c$ . C'est aussi pourquoi la situation est radicalement différente dans les cristaux de PPLN ou le signe du coefficient électro-optique, ainsi que le sens du courant photovoltaïque, change de signe à chaque changement de domaine.

Une solution pour éviter l'effet photo-réfractif est d'accroître la conductivité intrinsèque (sans éclairage) du cristal en le dopant par exemple avec du MgO et/ou d'augmenter la température du cristal [73]. Une autre alternative est d'équilibrer les taux de  $Fe^{2+}$  et  $Fe^{3+}$ , cela est particulièrement vrai pour les cas où le courant de diffusion est plus important. Il est important de voir que l'effet photo-réfractif, qui est basé sur la photo-excitation d'impuretés présentes dans le cristal, est d'autant plus important aux basses longueurs d'onde. C'est pourquoi ce phénomène est plus gênant pour le doublage de fréquence que pour les applications d'OPO.

## 2.2 Dans un cristal périodiquement polarisé de niobate de lithium (PPLN)

Dans la section précédente nous avons vu en détails l'effet photo-réfractif dans un LN mono-domaine. Nous allons à présent détailler cet effet dans un cristal PPLN. Nous avons mis en avant le fait que le champ de charges d'espace photo-induit  $E_{ph}$ , associé au courant photovoltaïque, est typiquement de  $10$  à  $10^2$  kV/cm. Il est saturé pour des intensités relativement faibles de l'ordre de  $10^3$  à  $10^4$  W/cm<sup>2</sup>. Il en résulte une variation de l'indice de réfraction  $\Delta n_{LN}$  ( $=n^3 r_{33} E_{ph}/2$ ) de l'ordre de  $10^{-4}$  à  $10^{-3}$ . Dans le cas du PPLN l'effet est différent car le courant photovoltaïque, donc le champ résultant le long de l'axe  $c$  change de direction de façon périodique. On peut représenter une charge induite lorsque l'on soumet l'échantillon à une radiation lumineuse comme sur le schéma 57 suivant :

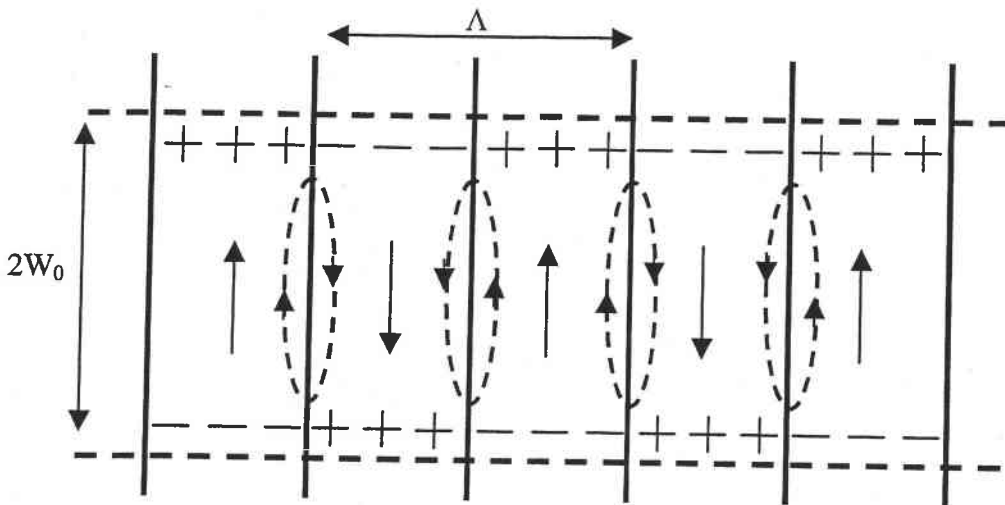


Figure 57 : Schématisation des courants et des déplacements de charge dans un PPLN sous éclairage. Les flèches pointillées représentent le sens des courants. [74]

Où  $2W_0$  est la dimension transverse du faisceau pompe et  $\Lambda$  la période du réseau de QAP.

Pruneri *et al* [74] ont proposé un modèle pour relier l'effet photo-réfractif avec le paramètre  $2W_0/\Lambda$ . Lorsque la taille du faisceau est grande par rapport à la période du réseau de QAP il peut y avoir compensation de charge accumulée sur le bord du faisceau. Dans ce cas là le champ électrique est localisé sur le bord du faisceau et sa composante transverse ainsi que le changement d'indice de

réfraction extraordinaire sont faibles. On comprend donc que l'effet photo-réfractif est plus faible dans un cristal PPLN que dans un cristal de LN mono-domaine. Il a également été fait l'hypothèse de l'existence d'un courant résultant de la combinaison d'un courant ohmique, longitudinal d'un domaine à l'autre et d'un courant transverse d'origine ohmique, et photo-galvanique le long de chaque domaine. Il comprend alors que la compensation de charge devient faible lorsque  $2W_0/\Lambda \leq 1$ . Dans ce cas là, les changements de l'indice de réfraction deviennent équivalents à ceux d'un LN mono-domaine. Il a été montré que le rapport  $\Delta n_{\text{PPLN}}/\Delta n_{\text{LN}}$  est proportionnel au carré du rapport  $\Lambda/2W_0$  [75]. De plus, à la frontière entre deux domaines le champ électrique transverse devient très faible et la variation de l'indice de réfraction également.

## 2.3 Effets du dopage

### 2.3.1 Dopage par MgO

A l'heure actuelle le seul LN dopé commercialisé est le MgO:LN, car la technique de Czochralsky est une technique de croissance qui est difficile à mettre en place lorsque l'on veut un taux d'impureté constant dans le volume du cristal.

En effet, dans les premières études réalisées sur le LN dopé, MgO a été longuement étudié pour son aptitude à réduire les dommages dus à l'effet photo-réfractif. Il a été montré que pour un seuil de 5% de MgO le seuil de dommage optique (intensité de SH d'un laser Nd :YAG au-delà de laquelle le faisceau est déformé le long de l'axe c du cristal pour une exposition de 10mn) peut être augmenté [76] tandis qu'un seuil de 1.8% seulement est suffisant dans le LN stœchiométrique [77].

L'accroissement du seuil de dommage optique est attribué à la baisse de la charge d'espace. On pourrait facilement penser que, comme la polarisation spontanée, le champ coercitif ne dépend pas de la stœchiométrie ou de la concentration en impuretés. Cependant une étude récente de polarisation pas décharge corona a montré que l'on pouvait polariser des cristaux de MgO : LN avec un champ de 2,5 kV/mm, que l'on peut comparer avec les 21kV/mm d'un LN congruent pure [78]. Le problème principal lié à l'utilisation de Mg pour les structures PPLN est le changement du comportement de propagation des domaines lors de la polarisation périodique du matériau. En effet, dans MgO :LN on constate que la vitesse de propagation des domaines transversalement au champ appliqué augmente fortement [79] et empêche la réalisation de structures PPLN de faible pas.

### 2.3.2 Dopage par ZnO

Plus récemment des équipes de chercheurs ont essayé de trouver d'autres dopants qui pourraient être incorporés dans la matrice de LN. Volk et al [80] ont suggéré que le ZnO :LN



pouvait être une bonne réponse aux problèmes du MgO :LN (création de centre coloré lorsqu'il est illuminé avec des fortes fluences et augmentation de la propagation transverse des domaines lors de la polarisation par application de champs électriques.) Durant la croissance par Czochralsky, ZnO peut être ajouté au bain de croissance. Peng *et al* [81] ont montré qu'il était possible de faire baisser le champ coercitif et simultanément de maintenir un contrôle précis du déplacement latéral des domaines lors de la polarisation en utilisant le ZnO comme dopant dans la matrice de LN. Une collaboration avec la National Taiwan University s'est donc formée avec le laboratoire MOPS pour l'étude de structure PPLN :Zn .

### 3 Caractérisation linéaire

#### 3.1 Présentation des échantillons et détermination du profil d'indice.

##### 3.1.1 Conditions d'implantation

Concernant les structures PPLN :Zn nous avons choisi d'effectuer des guides de d'épaisseurs plus importantes (le maximum autorisé (2MeV) par notre accélérateur Van de Graff) et ceci afin de pouvoir coupler plus facilement une grande quantité de puissance dans le guide. Les paramètres utilisés pour réaliser nos guides sont donnés dans le tableau 11:

Nom de l'échantillon	Epaisseur (mm)	Dopage	Pas du réseau ( $\mu\text{m}$ )	Type de guide	Energies (MeV)	Doses ( $10^{16}$ ions/cm <sup>2</sup> )
67-1	0,5	Oui Zn - 6%	6,7	Plan	1,8/1,9/2,0	0,5
68-1	0,5	Oui Zn - 6%	6,8	Plan	1,8/1,9/2,0	0,5

Tableau 11 : Conditions d'implantations des guides plans.

Les débits de fluences sont pour toutes les implantations de  $0,5\mu\text{A}/\text{cm}^2$ .

##### 3.1.2 Profil d'indice

Nous avons utilisé le même dispositif des lignes noires que décrit précédemment pour caractériser le profil d'indice de nos guides qui a été recalculé par la méthode i-WKB.

Nous montrons ci-dessous un résultat typique en polarisation TE pour l'échantillon 68-1 mais la même étude a été effectuée pour l'échantillon 67-1.

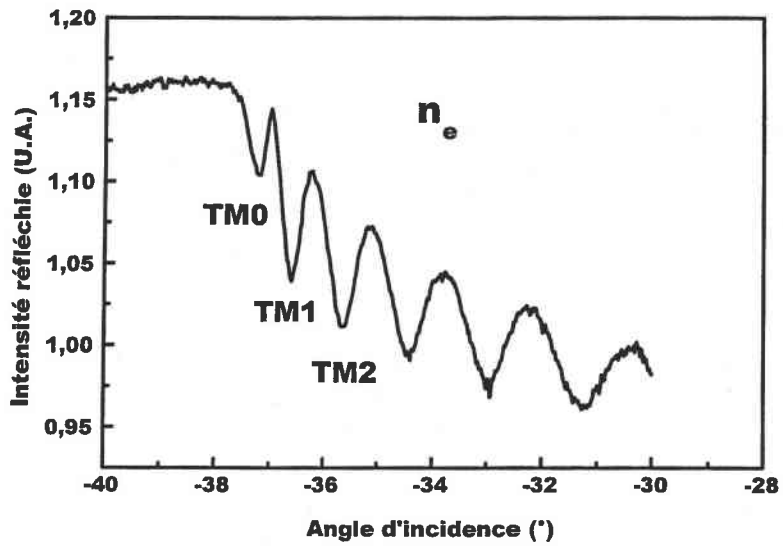


Figure 57 A) :Spectre de ligne noire en polarisation TM à 633nm échantillon 68-1.

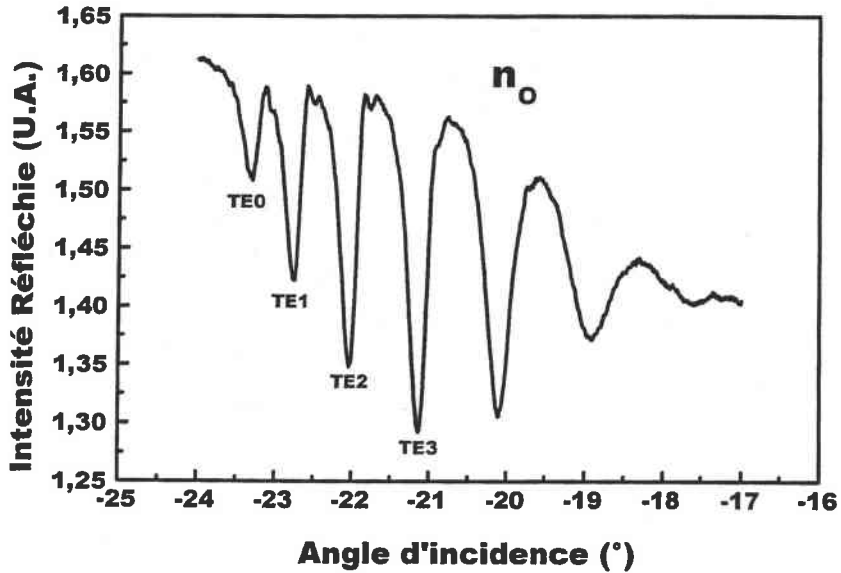


Figure 57 B) :Spectre de ligne noire en polarisation TE à 633nm échantillon 68-1.

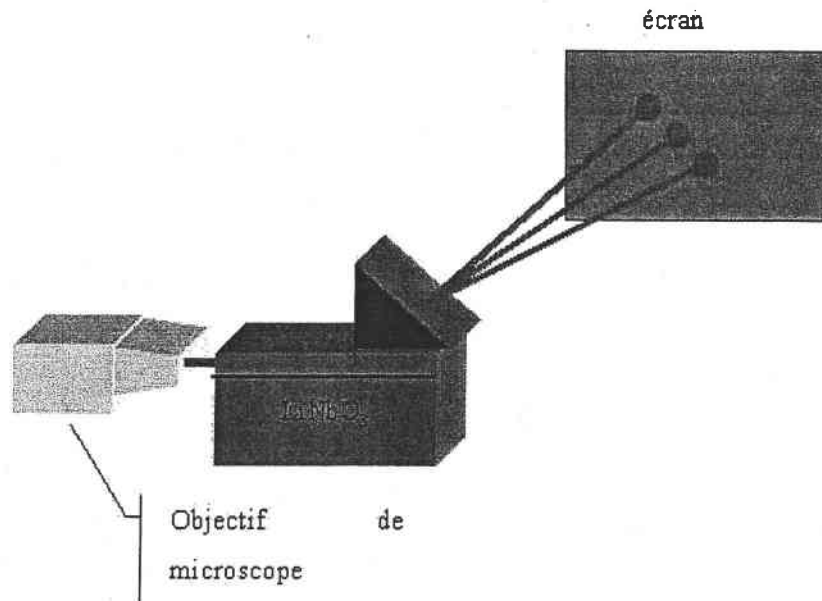
Tableau 12 : Détermination des indices effectifs dans les guides ( $\pm 3.10^{-4}$ ).

Nom de l'échantillon	polarisation	Indice du guide	Epais. $\mu\text{m}$	Ordre du mode	Angle synchrone ( $^\circ$ )	Indices effectifs mesurés	Indices effectifs calculés	Différence $*10^4$
67-1	TE	2,278	3,2	0	-22,96	2,2764	2,2764	-0
				1	-22,33	2,2702	2,2711	-9
				2	-21,52	2,2622	2,2623	-1
				3	-20,59	2,2528	2,2510	18
	TM	2,205	3,7	0	-37,23	2,2039	2,2039	-0
				1	-36,60	2,1992	2,1996	-4
				2	-35,64	2,1918	2,1924	-6
68-1	TE	2,2863	3,3	0	-23,11	2,2845	2,2846	-1
				1	-22,52	2,2786	2,2794	-8
				2	-21,75	2,2710	2,2711	-1
				3	-20,82	2,2617	2,2605	+12
	TM	2,2061	3,5	0	-37,35	2,2045	2,2046	-1
				1	-36,69	2,1996	2,2000	-4
				2	-35,70	2,1920	2,1925	-5

Le tableau 12 montre que plusieurs modes guidés ont été obtenus pour chaque polarisation confirmant ainsi la présence de la barrière optique.

De plus le tableau 12 permet de voir les indices effectifs qui sont mesurés et leurs comparaisons avec ceux calculés pour un guide d'onde à saut d'indice parfait dont on donne les paramètres. La bonne corrélation entre ces valeurs nous permet d'affirmer que notre guide est à quasi-saut d'indice, ce qui sera confirmé plus loin par la reconstruction *i*-WKB.

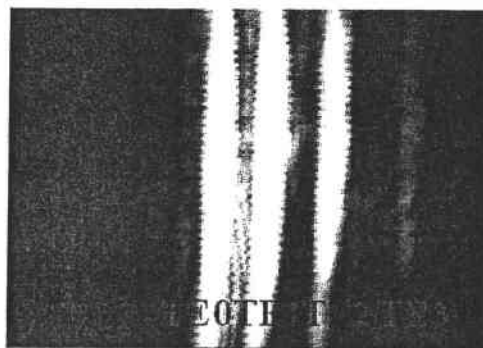
Nous nous sommes également intéressés à travailler en ligne brillante pour obtenir une visualisation des modes qui se propageaient dans la structure. Pour cela nous avons couplé directement en focalisant sur la tranche de notre guide le faisceau laser, puis nous avons découplé le faisceau avec un prisme de rutile.



**Figure 58:** Schéma de principe de couplage par la tranche découplage par prisme.

Les résultats présentés sur les figures 59 et 60 sont prises avec une caméra CCD en faisant l'image de l'écran décrit sur la figure. Ces photographies montrent que nous avons trois modes guidés en polarisation TM et quatre modes en polarisation TE.

Ce résultat est cohérent avec le tableau 12 et confirme les analyses qui ont été faites jusqu'à présent.



**Figure 59:** Image des modes découplés par le prisme en polarisation TE.

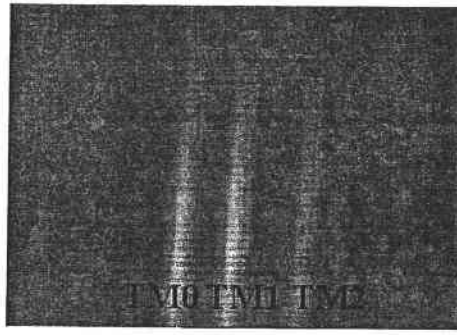


Figure 60: Image des modes découplés par le prisme en polarisation TM.

En effet, bien que la technique des lignes noires soit intéressante, car elle permet de remonter au profil d'indice, il ne faut cependant pas oublier qu'avec cette méthode on ne peut pas identifier avec certitude un mode de propagation comme étant un mode guidé ou un mode de substrat. Le fait de vérifier ceci de façon expérimentale, apporte une confirmation évidente de l'analyse qui a été faite précédemment sur les spectres de lignes noires.

Comme nous l'avons fait pour les guides PPLN de pas  $10\mu\text{m}$ , nous avons répété les expériences de spectroscopie des lignes noires à différentes longueurs d'onde. Ces études présentent en effet le double intérêt de montrer la création d'un guide d'onde à différentes longueurs d'onde, mais également d'analyser les variations des indices de réfraction en fonction de la longueur d'onde.

### 3.1.3 Calcul des coefficients de Sellmeier

Les expériences de spectroscopie des lignes noires montrées précédemment ont été réalisées à plusieurs longueurs d'onde, et cela afin de déterminer les lois de variation de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde. Cette étude est d'autant plus importante car les équations de type Sellmeier qui ont déjà été étudiées pour le niobate de lithium dopé Zn peuvent différer suivant les auteurs.

Le tableau 13 donne les valeurs mesurées de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde de la partie guidante de l'échantillon.

Longueur d'onde (nm)	Indice ordinaire ( $\pm 3.10^{-4}$ )	Indice extraordinaire ( $\pm 3.10^{-4}$ )
457,9	2,3804	2,2843
514	2,3391	2,2462
632,8	2,2782	2,2054
899,7	2,2400	2,1717
929,6	2,2392	2,1703
956,7	2,2369	2,1675
979,4	2,2359	2,1656

Tableau 13: Indices de réfraction mesurés à diverses longueurs d'onde.

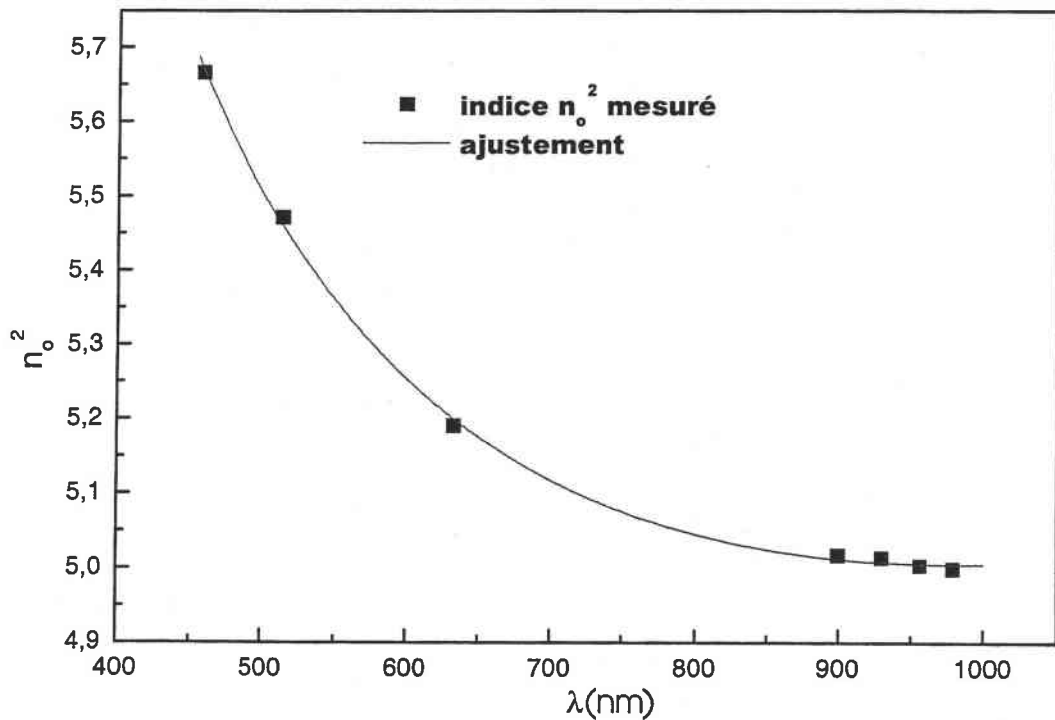


Figure 61 : Dispersion de l'indice ordinaire avec la longueur d'onde.

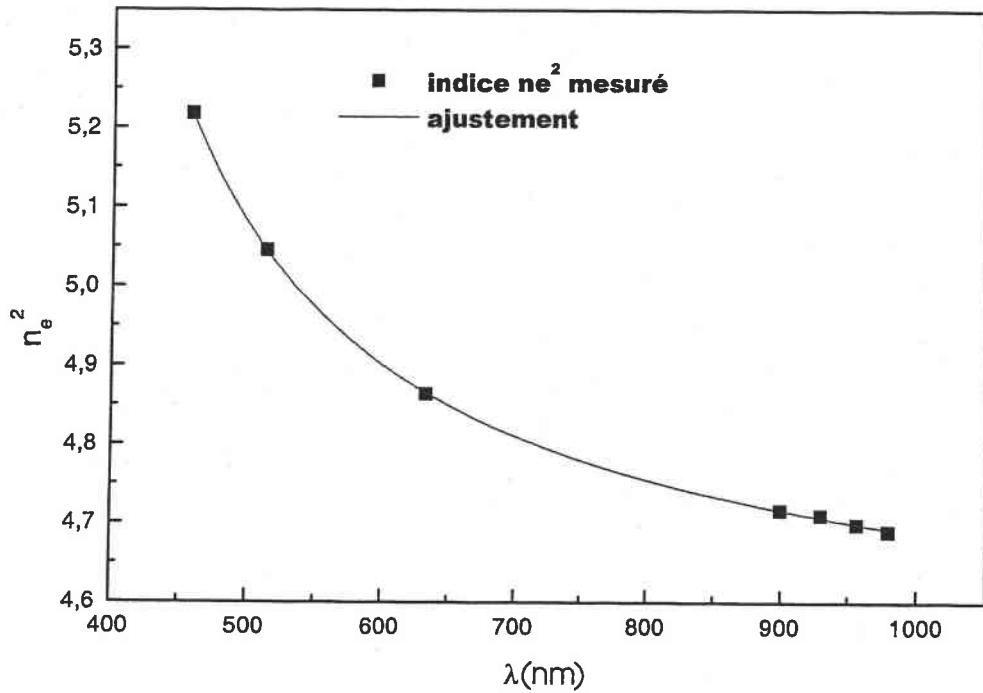


Figure 62 : Dispersion de l'indice extraordinaire avec la longueur d'onde.

Les figures 61 et 62 présentent la dispersion chromatique de la partie guidante de l'échantillon pour les deux indices de réfraction. Ces valeurs expérimentales ont été ajustées avec les équations de Sellmeier présentées dans le chapitre 3A.

On constate un très bon accord entre les valeurs déterminées de façon expérimentale et l'ajustement théorique par la fonction de type Sellmeier.

On rapporte dans le tableau 14 les valeurs des paramètres d'ajustement déterminés pour les courbes présentées dans les figures 61 et 62.

	$n_o$	$n_e$
A <sub>1</sub>	5,1	4,6
A <sub>2</sub>	220430	90695
A <sub>3</sub>	-0,078	0,95
A <sub>4</sub>	0,056	205,1
A <sub>5</sub>	$-5,7 \cdot 10^{-7}$	0,0046
A <sub>6</sub>	$5,6 \cdot 10^{-6}$	-2,6
A <sub>7</sub>	$-2,5 \cdot 10^{-7}$	4,4
A <sub>8</sub>	57,2	13,4
A <sub>9</sub>	2640	2548,2

**Tableau 14 : Coefficients des équations de Sellmeier pour le LN :Zn.**

Ces équations peuvent être extrapolées dans une faible mesure, en effet elles ne sont valables que en dehors des zones d'absorption, de plus elles divergent aux basses longueurs d'ondes. Ces équations nous permettent de faire des calculs théoriques des longueurs d'onde d'accord de phase en fonction du type d'interaction qui se produit lors de la génération de second harmonique dans le guide.

### **3.2 Mesures de pertes**

Le dispositif de mesure de pertes est le même que celui décrit dans le chapitre 3A. Afin de compléter l'étude sur les pertes qui avait été initiée en fonction du recuit et des paramètres du guide, nous nous sommes intéressés à l'influence des différentes pertes sur nos guides d'ondes. D'après les travaux de Townsend *et al* [63], et comme il a été rappelé dans le chapitre 3A, nous savons que les pertes optiques dans les guides d'ondes fabriqués par implantation ont trois origines : la diffusion, l'absorption et l'effet tunnel optique.

En ce qui concerne l'absorption, les cristaux de niobate de lithium, dopé ou non, sont considérés comme transparents à nos longueurs d'onde, cependant il faut être prudent en ce qui concerne la partie guidante de nos échantillons. En effet, on sait que l'implantation crée des défauts de nature électronique et, en moindre proportion, de nature nucléaire dans le guide, qui peuvent conduire à une augmentation de l'absorption principalement aux courtes longueurs d'onde.



Les pertes par diffusion augmentent également lorsque la longueur d'onde diminue car la diffusion Rayleigh (défauts de 10nm de diamètre env.) est proportionnelle à  $(1/\lambda^4)$ . (La principale autre source de pertes par diffusion est la diffusion de Mie qui est maximale lorsque la longueur d'onde est proche de la taille des défauts mis en cause.)

Enfin, les pertes par effet tunnel optique restent l'un des principaux problèmes liés aux guides d'ondes fabriqués par implantation ionique. Même si celles-ci sont réduites par l'élargissement de la barrière optique, obtenu par l'utilisation d'implantations multiples, elle n'en est pas moins préjudiciable à la bonne qualité de nos guides. Ce dernier type de pertes augmente avec l'ordre du mode mais également, et ceci contrairement aux deux premiers cités, avec la longueur d'onde. En effet, plus la longueur d'onde est élevée et plus le champ électrique s'étend au voisinage de la barrière optique (les pertes comme nous l'avons déjà vu au chapitre 3A sont plus importantes pour la pompe que pour l'harmonique).

Nous présentons sur les courbes suivantes un exemple des mesures de pertes qui ont été effectuées sur l'échantillon 67-1 à 514nm. Etant donné que l'échantillon 68-1 possède le même taux de dopants et que le guide a été réalisé dans les mêmes conditions, nous pouvons considérer a priori que les pertes sont identiques sur cet échantillon.

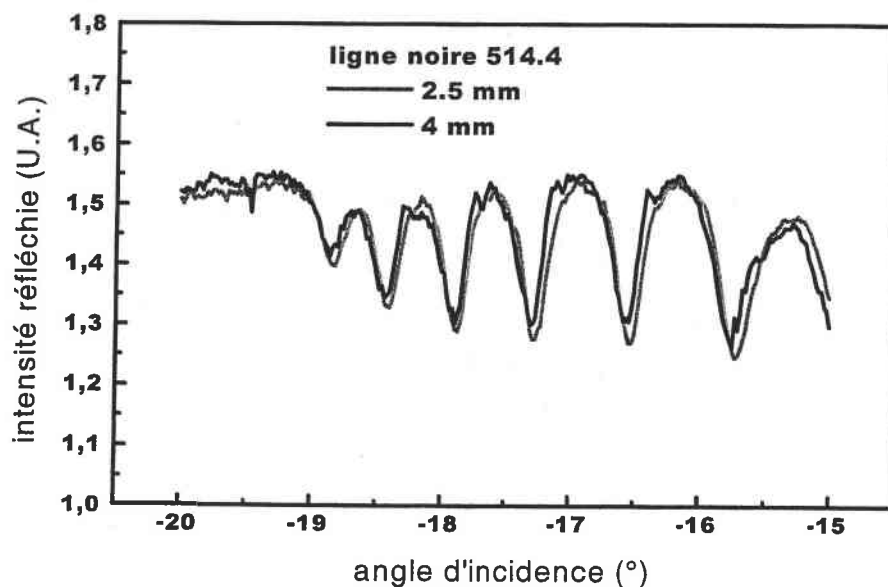


Figure 63 : Spectres de lignes noires pour l'échantillon 67-1 à 514.4nm.

La figure 63 montre un exemple de spectre de lignes noires à 514,4nm pour l'échantillon 67-1. La superposition des deux spectres effectués à différents endroits de l'échantillon confirme que le couplage est équivalent pour les deux points de mesures. Ceci nous permet de considérer l'intensité transmise par le guide comme étant indépendante de l'efficacité de couplage par prisme.

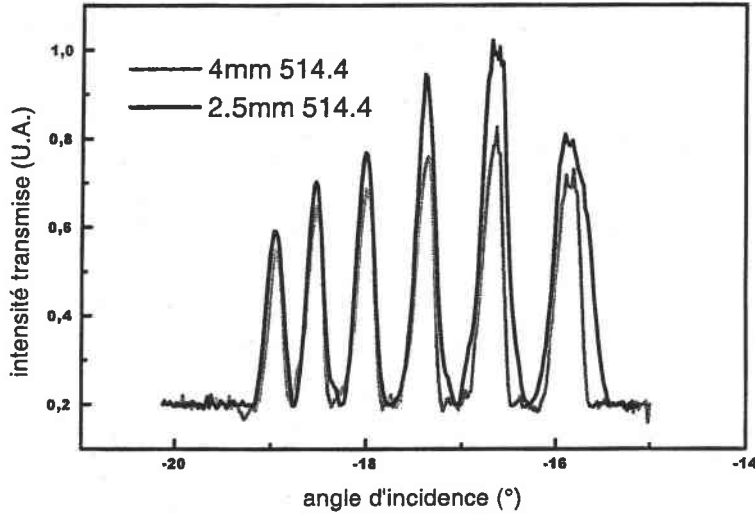


Figure 64 : Spectres de lignes brillantes pour l'échantillon 67-1 à 514,4nm.

Comme nous l'avons observé dans la première section de ce chapitre concernant les guides PPLN :He+ de pas 10  $\mu\text{m}$  on constate sur la figure 64 que les pertes augmentent en fonction de l'ordre du mode. Ce que l'on peut également constater sur la figure 65.

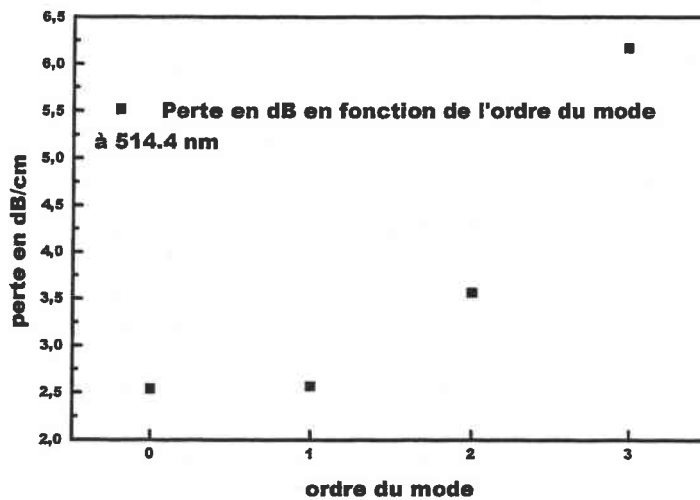


Figure 65 : Pertes en dB/cm en fonction de l'ordre du mode.

Ce qui nous intéresse dans l'étude des pertes est de connaître leur influence sur le faisceau pompe et harmonique. Nous avons donc, dans un premier temps, essayé de mesurer les pertes en fonction de la longueur d'onde.

Ordre du mode \ Longueur d'onde (nm)	0	1	2	3
514.4	2,5	2,6	3,6	6,2
633	1,7	2,2	2,7	-
820	2,1	3	3,5	-

Tableau 15 : Pertes en fonction de la longueur d'onde (échantillon 67-1) ( $\pm 0.2$  dB/cm).

Le tableau 15 présente donc un résumé des mesures effectuées sur l'échantillon 67-1. On constate qu'il n'y a pas de valeurs de pertes à 633 et 820 nm pour le mode d'ordre 3, en effet à ces longueurs d'onde le mode n'est plus un mode guidé mais un mode de substrat.

On peut constater sur ce tableau que les pertes pour le mode d'ordre zéro sont plus élevées aux basses longueurs d'ondes. Cela peut s'expliquer par le fait que l'absorption y est plus forte, mais également parce que les pertes par diffusion sont plus importantes lorsque la longueur d'onde diminue. Ce qui explique que les pertes sont les plus faibles à 633 nm et qu'elles réaugmentent à 820 nm, en effet plus la longueur d'onde croît et plus le champ électrique s'étale vers la barrière.

Cet effet est très net si l'on s'intéresse aux pertes à 514nm, on voit que celles-ci augmentent très nettement pour le dernier mode guidé. Cela est dû au fait que seul ce mode vient tester de manière significative la barrière optique. L'augmentation des pertes optiques avec l'ordre du mode est significative pour les trois longueurs d'onde. Dans le cas des guides d'ondes implantés, les pertes par diffusion et par absorption engendrées par les défauts de la barrière s'ajoutent aux pertes par effet tunnel optique.

Les pertes mesurées sur cet échantillon restent malgré tout trop importantes, mais il convient de rappeler qu'il s'agit ici d'un guide qui n'a fait l'objet que d'un recuit de 1h à 200°C, durée qui n'est pas optimale comme nous l'avons vu dans la partie du chapitre 3A précédente. De plus les paramètres du guide ne sont également pas optimums puisque l'épaisseur de celui-ci, si elle permet

---

un bon couplage avec le faisceau pompe va autoriser l'excitation de plusieurs modes tant pour l'onde fondamentale, que pour l'onde harmonique. L'optimisation des paramètres du guide et notamment de l'épaisseur de la barrière optique, devrait nous permettre de faire baisser les pertes vers des niveaux plus acceptables en dessous du dB/cm que ce soit pour l'onde pompe ou harmonique.

### 4 Caractérisation non linéaire

Dans ce chapitre l'étude de l'influence du dopage reste la motivation principale. Nous avons vu que le fait d'utiliser un cristal de LN dopé ne modifie pas (hormis bien entendu l'indice de réfraction) les conditions de fabrication des guides d'ondes. Le principal résultat attendu reste l'influence sur la résistance à l'effet photoréfractif. Nous devons pour cela montrer dans un premier temps qu'il est possible d'obtenir la GSH dans ce type de guides PPLN :Zn :He+.

Le dispositif utilisé pour la GSH est identique au dispositif présenté dans le chapitre précédent.

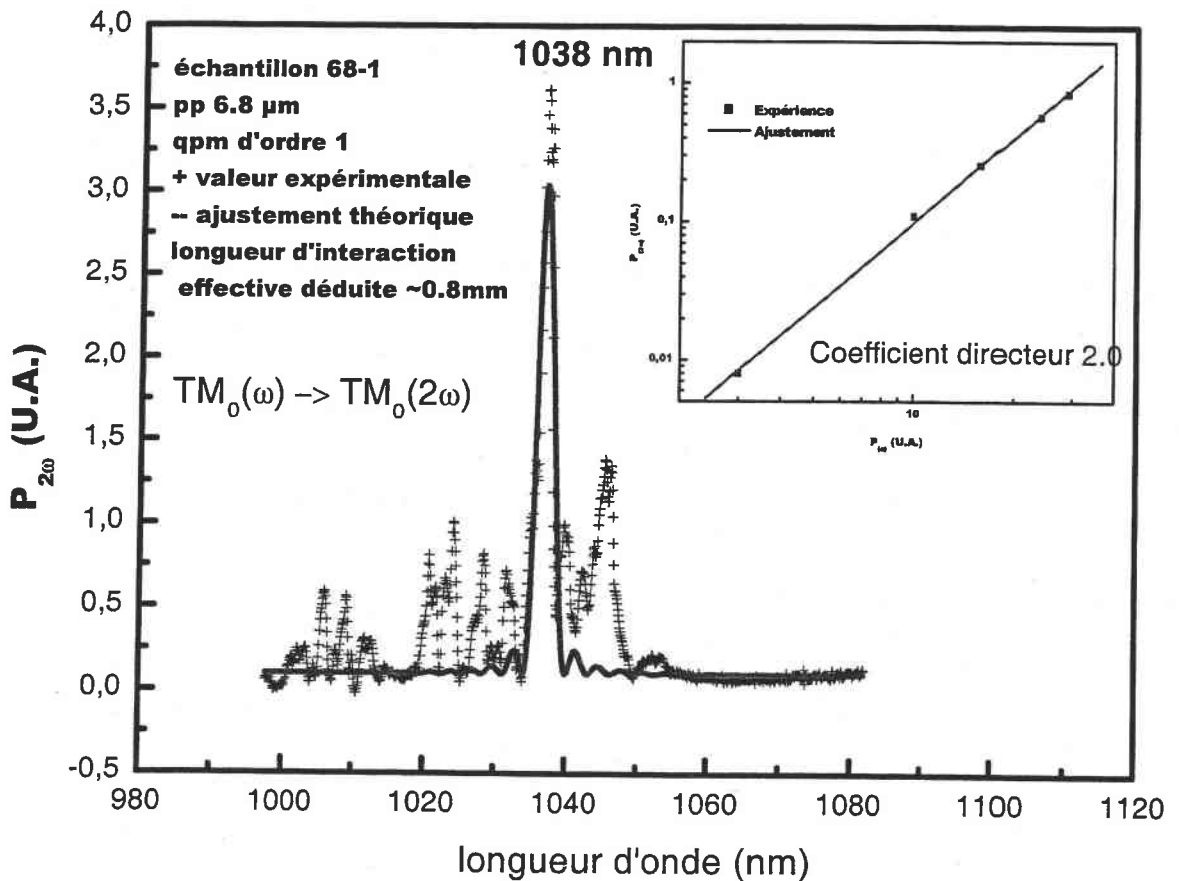


Figure 66 : GSH dans l'échantillon 68-1, ordre de QAP 1 guide plan.

La figure 66 montre un pic principal d'accord de phase avec plusieurs pics secondaires de part et d'autre. Ces pics peuvent s'expliquer par des irrégularités du guide mais également par des

défauts dans la structure PPLN. En effet, des observations précédant la GSH avaient été faites après attaque chimique par l'acide HF. Ces observations avaient fait apparaître des irrégularités au niveau du facteur de cycle mais également au niveau de la structure qui, au même titre que celles dont nous avons présenté les photos au chapitre 2, comportait de nombreux domaines manquant. Ces irrégularités peuvent amener à des longueurs d'ondes d'accord de phase.

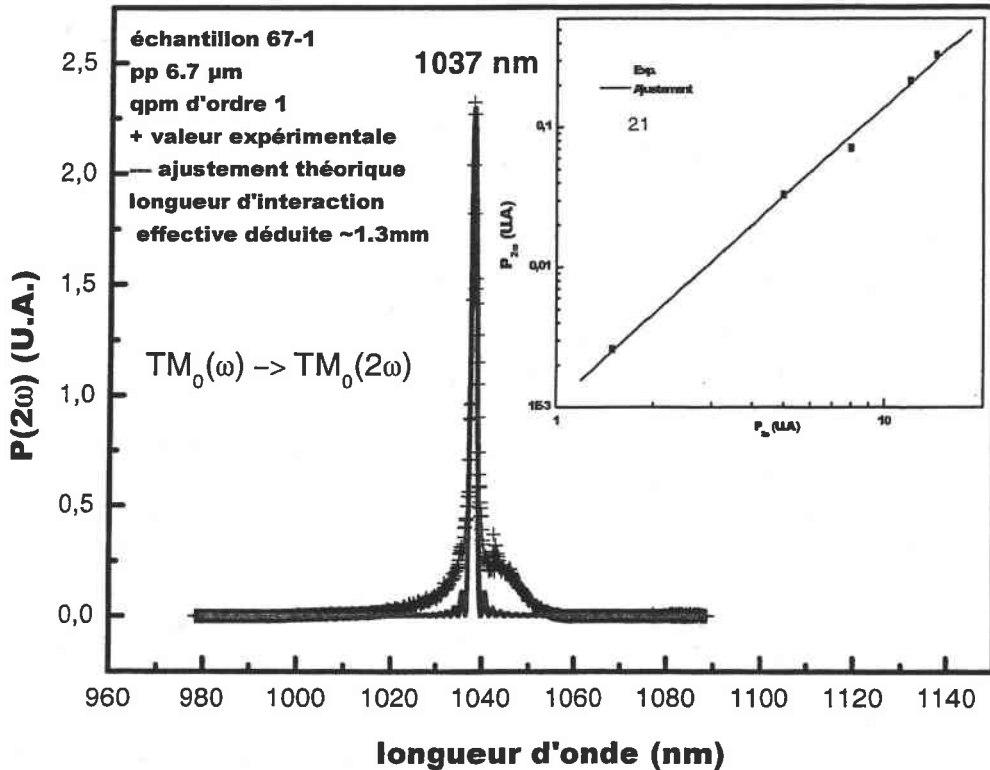


Figure 67 : GSH dans l'échantillon 67-1, ordre de QAP 1 guide plan.

La figure 67 quant à elle montre un très bon accord de phase ce qui confirme l'observation après attaque acide qui avait révélé une structure PPLN plus régulière que pour l'échantillon 68.

Comme nous pouvons le constater sur les figures 66 et 67 la GSH a été obtenue au premier ordre pour les deux guides. Nous ne présentons ici que les courbes concernant l'accord de phase dans les guides mais les mêmes expériences ont été réalisées dans le massif.

Les encarts dans les figures 66 et 67 montrent la puissance harmonique en fonction de la puissance fondamentale. On constate que le coefficient directeur de 2 confirme le processus du second ordre.

On a regroupé dans le tableau 16 les résultats concernant ces deux guides.

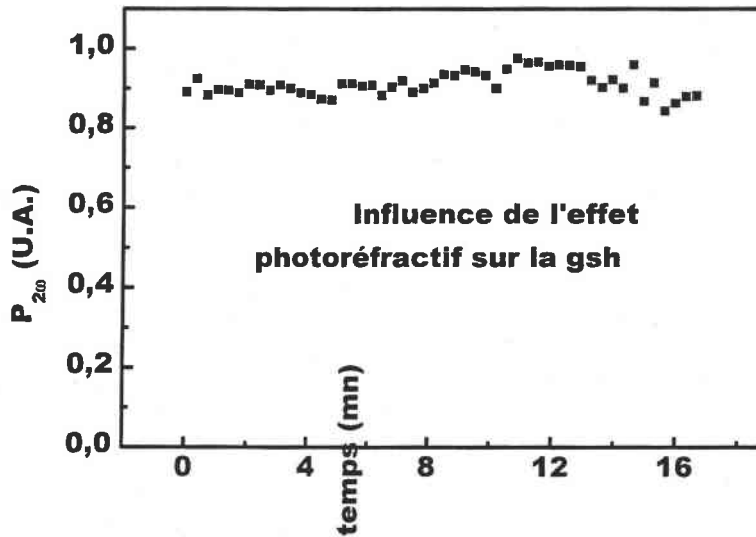
			GSH échantillon 10-3			
Nom	$\lambda_{\text{gap}}$ en massif Théo.	$\lambda_{\text{gap}}$ en massif Exp.	Théorie			Résultats expérimentaux ( $\pm 1$ nm)
			Interaction	$I_{\text{OVL}}(\text{m}^{-1/2})$	$\lambda_{\text{gap}}(\text{nm})$ dans le guide.	
67-1	1057	1039	$\text{TM}_0(\omega) \rightarrow \text{TM}_0(2\omega)$	1296	1067	1037
68-1	1063	1041	$\text{TM}_0(\omega) \rightarrow \text{TM}_0(2\omega)$	1294	1072	1038

Tableau 16 : Bilan des expériences de GSH comparaison avec la théorie.

Contrairement aux résultats précédents du chapitre 3A, on constate un écart important entre la théorie et l'expérience. La seule différence provient du dopage par Zn, on peut donc penser que les équations de Sellmeier déterminées précédemment ne sont pas correctes. Il est notamment possible que l'homogénéité du cristal ne soit pas parfaite au point de vue de la concentration en dopant ce qui pourrait expliquer que les valeurs diffèrent ainsi. En effet les équations de Sellmeier ont été déterminées de façon locale par la spectroscopie des lignes noires.

Une fois que nous avons caractérisé les longueurs d'onde d'accord de phase et les longueurs effectives d'interaction dans nos guides, nous nous sommes intéressés à l'effet photo-réfractif dans ces guides. Pour cela, et faisant suite à l'étude similaire de Peng *et al* [81] dans le cristal massif, nous avons injecté une puissance suffisante pour provoquer un effet photo-réfractif dans le cristal congruent pur (ici 26mW) et nous avons analysé l'intensité relative de la SH en fonction du temps.

Nous pouvons voir sur le graphique de la figure 68 que l'intensité de SH est stable pendant plusieurs minutes et ne montre donc aucune baisse d'efficacité due à l'effet photo-réfractif.



**Figure 68: Puissance harmonique en fonction du temps dans un guide plan PPLN:Zn :He+**

Ce dernier résultat est d'une très grande importance car il démontre l'intérêt des guides fabriqués par implantation dans les PPLN. On sait à présent que les propriétés optiques non linéaires sont préservées par l'implantation ionique, que celle-ci ne perturbe pas la structure PPLN mais de plus elle n'introduit pas de photoréfractivité dans des cristaux de LN dopés, ne présentant pas ces effets lorsqu'ils sont vierges d'implantation.



## 5 Conclusion

Ce chapitre, qui termine l'étude linéaire et non linéaire des guides fabriqués par implantation ionique dans des cristaux PPLN : Zn , nous a permis de conclure quant à la faisabilité des guides d'ondes par implantation d'ions légers dans des structures PPLN dopés.

On a de plus montré l'influence de la longueur d'onde sur les pertes optiques, ce qui nous a permis de pondérer de manière qualitative l'influence des différentes origines de pertes sur la valeur globale, ouvrant ainsi la voie vers des optimisations des guides.

Mais l'un des résultats les plus remarquables, et qu'il convient de souligner, est la conservation des propriétés de résistance à l'effet photoréfractif après l'implantation dans des PPLN :Zn. Il s'agit en effet après la conservation des propriétés non linéaire et celle du réseau de QAP du paramètre le plus important si l'on veut pouvoir un jour intégrer ce genre de composant avec une diode laser pour réaliser une source laser tout solide émettant dans le visible.

## 6 Bibliographie

- [70] A.Ashkin, D.D. Boyd, J.M. Dziedzic, R.G. Smith, A.A. Ballman, J.J. Levinstein and K. Nassau. *Appl. Phys. Lett.* 9,72-74 (1966).
- [71] A.M. Prokhorov and Yu.S. Kuz'minov, 'physics and chemistry of crystallin lithium niobate', Adam Hilger, Bristol, 1990.
- [72] A.M. Glass, D. Von der Linde, and T.J. Negrain. *Appl. Phys. Lett.* 25, 233-235 (1974).
- [73] B.I. Sturman and V.M. Fridkin, 'the photovoltaic and Photorefractive effects in noncentrosymmetric materials', Gordon and Breach Science Publishers S.A., Reading, U.K., (1992).
- [74] V. Pruneri, P.G. Kazansky, J. Webjörn, P.St.J. Russell, and D.C. Hanna. *Appl. Phys. Lett.* 67, 1957-1959 (1995).
- [75] B. Sturman, M. Aguilar, F.A. Lopez, V. Pruneri, P.G. Kazansky, and D.C. Hanna, *Appl. Phys. Lett.* (1996).
- [76] D.A. Bryan, R. Gerson, and H.E. Tomaschke, *Appl. Phys. Lett.* 44, 847 (1984).
- [77] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, and H. Hatano, *Opt. Lett.* 23, 1892 (1998).
- [78] K. Mizuuchi, K Yamamoto, and M. Kato. *Electron. Lett.* 22, 2091 (1996).
- [79] Y. Kong, J. Xu, X. Chen, C. Zhang, W. Zhang, and G. Zhang, *J. Appl. Phys.* 87, 4410 (2000).
- [80] T. R. Volk, V.I. Pryalkin and N.M. Rubinina, *Optics Lett.* 15 (1990) 996.
- [81] L.H. Peng, Y.-C. Zhang, and Y.-C. Lin, *Appl. Phys. Lett.* 78, 4-6 (2001).

# **Conclusion Générale**

L'objet de ce travail était de réaliser des guides d'ondes implantés dans des structures périodiquement polarisées, puis de caractériser leurs propriétés optiques linéaires et non linéaires.

Cela a nécessité la maîtrise de plusieurs techniques développées au laboratoire, mais également la réalisation de plusieurs dispositifs ainsi que la mise au point des procédures nécessaires à l'utilisation de ceux-ci.

Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à maîtriser les étapes de photolithographie sur LN. Nous avons ainsi pu définir les conditions nécessaires pour la réalisation d'électrodes régulières, avec une résolution de l'ordre du micron nécessaire à la réalisation de PPLN de pas  $4,8\mu\text{m}$ . Nous avons ensuite déterminé les caractéristiques de nos substrats afin de réaliser les PPLN par application de champs électriques, la valeur du champ coercitif obtenue est de  $23220\text{V/mm}$  et la valeur de la polarisation spontanée de  $90\mu\text{C/cm}^2$ .

Une des parts importantes de ce travail a consisté à mettre au point un banc de réalisation de structures PPLN par application de champs électriques, ainsi que la procédure qui convient pour le type de substrat que nous avons utilisé et le pas du réseau désiré. L'élaboration de cette procédure a été effectuée avec des réseaux de pas  $10\mu\text{m}$  et  $20\mu\text{m}$ . Ces réseaux ont ensuite été contrôlés par différentes techniques, dont la plus usitée est l'attaque acide, afin de révéler le réseau de QAP. Nous avons ainsi pu montrer que des réseaux de polarisation étaient créés et contrôler leur qualité. En plus de l'utilisation de techniques classiques de caractérisation, nous avons montré qu'il était possible d'utiliser la spectroscopie micro Raman pour la visualisation des réseaux de QAP dans le LN. En effet, en établissant une cartographie des modifications du spectre Raman nous avons montré que l'on pouvait observer le réseau PP. Nous avons ainsi également proposé une explication des modifications du spectre Raman basée sur l'effet photovoltaïque. Mais nous avons de plus observé des variations de l'intensité de luminescence associée aux défauts du LN entre les zones de polarisation renversée et les zones de polarisation originelle. Ces changements ont été attribués à des modifications de la densité de polarons qui sont créés lors du renversement périodique de la polarisation.

La technique de fabrication des guides d'ondes par implantation a été directement adaptée des résultats obtenus précédemment au laboratoire sur des cristaux de LN mono domaine. De même nous avons également utilisé la spectroscopie des lignes noires pour la

---

caractérisation linéaire de nos guides et, grâce à une technique mise au point au laboratoire, nous avons pu mesurer précisément et en fonction de divers paramètres les pertes de nos guides implantés.

Lors de la caractérisation de nos guides d'onde nous avons pu exciter des modes en polarisation TE et TM, ce qui confirme la création d'un guide par implantation d'ions dans les PPLN. De plus les pertes ont été mesurées, dans tous les cas, comme inférieures à 2dB/cm pour les modes fondamentaux et, dans le meilleur des cas, à une valeur proche de 1dB/cm. Nous avons également pu montrer, sur des guides de différentes épaisseurs, que ces pertes étaient liées en grande partie à l'effet tunnel optique ce qui a été confirmé par une étude en fonction de la longueur d'onde. De plus les pertes ont pu être sensiblement réduites par les recuits qui ont été effectués.

La caractérisation linéaire à diverses longueurs d'onde nous a permis de montrer les possibilités de nos guides en terme de modes guidés mais également de mesurer l'indice de réfraction à diverses longueurs d'onde. Nous avons également constaté que l'implantation ionique ne détruisait pas le réseau périodique de polarisation ce qui constituait une des plus grandes inconnues au début de ce travail. En effet, toutes les autres méthodes de fabrication de guides d'ondes ont comme points communs de perturber le réseau PP et aussi les propriétés non linéaires du cristal.

Nous nous sommes intéressés à la possibilité de fabriquer le composant en réalisant la procédure inverse, c'est à dire en fabriquant le guide d'onde puis en essayant de réaliser une structure PP dans ce guide. Les résultats ont alors montré que le guide d'onde empêche tout renversement périodique de la polarisation et seuls des débuts de nucléation ont été obtenus sur la face Z+ de l'échantillon.

Enfin nous avons monté et automatisé un banc de génération de second harmonique en configuration massive ou guidée, par variation de la longueur d'onde fondamentale ou de la température du cristal. Grâce à ce dispositif la génération de faisceaux lasers bleu et vert a été obtenue dans des structures PPLN implanté He+.

Nous avons pu calculer le facteur de cycle de nos structures et confirmer ainsi les observations par microscope optique qui nous donnaient une valeur de 65% environ ce qui est loin de la valeur idéale de 50%. L'efficacité de conversion peut donc être largement augmentée par l'optimisation des structures périodiquement polarisée en s'approchant de

50%. Nous avons également montré que les calculs établis d'après les mesures faites par spectroscopie des lignes noires permettaient dans le cas des PPLN non dopés de prévoir précisément les longueurs d'onde d'accord de phase. Nous avons aussi calculé les longueurs efficaces de GSH dans le guide qui sont de l'ordre de 1 mm seulement. Les taux de conversion obtenus sont alors de l'ordre de  $10^{-3}\%/W$  ce qui reste très loin des taux de conversion obtenus par ailleurs avec des guides fabriqués par échange protonique dans des structures PPLN de bonne qualité mais qui nous laisse de bons espoirs quant aux possibilités offertes par de tels composants. En effet, on peut espérer obtenir une longueur d'interaction de l'ordre du centimètre avec un facteur de cycle de 50% et un ordre de QAP égale à 1. Si, dans le même temps, les pertes sont ramenées à des valeurs proche de celles obtenus pour les guides échangés (env. 0.1dB/cm) cela devrait nous permettre de gagner plus de trois ordres de grandeurs et l'on aurait ainsi des taux de conversion du même ordre que ceux rapportés récemment dans la littérature (Cf. Annexe 5).

Enfin l'étude des structures PPLN dopés Zn a montré que tous les résultats obtenus sur les cristaux congruents purs pouvaient être transposés aux cristaux dopés. De plus nous avons observé qu'il n'y avait alors plus de décroissance de l'intensité de SH en fonction du temps due à l'effet photo réfractif.

Cette étude constitue une avancée importante car elle démontre la faisabilité de micro-sources lasers tout solide par QAP à l'aide de guides d'ondes implantés. Si l'on veut dans l'avenir obtenir des dispositifs commercialisables, à présent que la faisabilité et l'intérêt de tels composants sont démontrés, il faudra réduire de façon importante les pertes dans nos guides mais également améliorer la longueur d'interaction ainsi que le facteur de cycle des structures PP.

L'optimisation des structures guidantes pourrait être obtenue par des traitements thermiques plus adaptés ou bien encore par l'élargissement de la barrière optique. Une autre voie pour l'amélioration des guides d'ondes consisterait à utiliser non plus des ions He<sup>+</sup> mais des protons. En effet, on sait que les propriétés non linéaires sont encore plus préservées par l'implantation d'ions H<sup>+</sup>, de plus les guides seraient plus épais et donc moins sensibles aux effets photoréfractifs (le compromis entre augmentation du confinement et résistance aux dommages optiques reste à étudier).

Il faudra également travailler avec des guides canaux, dans l'idée d'augmenter encore le confinement et donc l'efficacité de conversion. De plus, le système pourrait alors être (comme c'est le cas pour des systèmes équivalents et qui sont à l'heure actuelle commercialisés) entièrement intégré grâce à l'utilisation de fibres optiques.

# **ANNEXES**



## ANNEXE 1

Nous avons vu que dans le cas de la GSH dans le cristal massif, la puissance harmonique fait intervenir un terme appelé surface d'interaction. Ce calcul est analogue mais en configuration guidée. Il est destiné à montrer comment intervient le terme d'intégrale de recouvrement entre les modes guidés qui sont à l'origine de la GSH.

A partir des équations de Maxwell on peut trouver l'équation de propagation suivante :

$$\nabla^2 \vec{E}_{SH} = \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}_{SH}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 P_{NL}^{(SH)}}{\partial t^2} \quad (A1-1)$$

$$\text{avec } P_{NL}^{(SH)} = \varepsilon_0 [d_{ij}] \left[ \vec{E}_F \right]^2 = [\chi^{(2)}] \left[ \vec{E}_F \right]^2$$

Admettons que le champ fondamental soit polarisé suivant z et ne présente pas de variation suivant y.

$$E_F(x, y, z, t) = E_F(x, y, z) e^{i\omega t} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ A_{0,F} F_F(z) e^{i(\omega t - \beta_{\omega} x)} \end{bmatrix}$$

Si l'on projette (A1-1) sur l'axe z, nous cherchons une solution pour l'onde harmonique de la forme :

$$E_F(x, y, z, t) = E_F(x, y, z) e^{i\omega t} = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ A_{SH}(x) F_F(z) e^{i(\omega t - \beta_{\omega} x)} \end{bmatrix}$$

$\beta_F$  et  $\beta_{SH}$  représentent la projection des vecteurs d'onde sur l'axe de propagation.  $n_F^{\text{eff}}$  et  $n_{SH}^{\text{eff}}$  sont les indices effectifs du mode fondamentale et harmonique.

$A_{0,F}$  et  $A_{SH}(x)$  sont l'amplitude des champs fondamentaux et harmoniques. On remarque que le champ fondamental est indépendant de x. En effet, on fait l'hypothèse de non-déplétion de la pompe, c'est à dire d'un faible taux de conversion et d'un milieu sans pertes.

$F_F(z)$  et  $F_{SH}(z)$  sont les profils des champs normalisés tels que :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} F_F(z) F_F^*(z) dz = 1$$

$$\int_{-\infty}^{+\infty} F_{SH}(z) F_{SH}^*(z) dz = 1$$

si  $x, y, z$  correspondent aux axes du cristal alors le tenseur non linéaire d'ordre 2 du  $\text{LiNbO}_3$  peut s'écrire :

$$\frac{\chi^{(2)}}{\epsilon_0} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

La polarisation non linéaire s'écrit donc :

$$P_{NL}^{(SH)}(x, y, z, t) = P_{NL}^{(SH)}(x, y, z) e^{i2\omega t}$$

$$P_{NL}^{(SH)}(x, y, z) = \epsilon_0 [d_{ij}] \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ E_F^2(x, y, z) \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} = \epsilon_0 d_{33} E_F^2(x, y, z)$$

l'expression (23) page 14 devient alors :

$$F_{SH} \frac{\partial^2 A_{SH}}{\partial x^2} + A_{SH} \frac{\partial^2 F_{SH}}{\partial z^2} - \beta_{SH}^2 A_{SH} F_{SH} - 2i\beta_{SH} F_{SH} \frac{\partial A_{SH}}{\partial x}$$

$$= -4\omega^2 \mu_0 \epsilon A_{SH} F_{SH} - 4\omega^2 \mu_0 \epsilon_0 d_{33} (A_{0,F} F_F)^2 e^{i\Delta\beta x}$$

avec  $\Delta\beta = \beta_{SH} - 2\beta_F$

on suppose que  $\frac{\partial A_{SH}}{\partial x} \beta_{SH} \gg \frac{\partial^2 A_{SH}}{\partial x^2}$

on obtient alors :

$$\left[ \nabla_{yz}^2 F_{SH} + [4\omega^2 \mu_0 \epsilon - \beta_{SH}^2] F_{SH} \right] A_{SH}(x) - 2i\beta_{SH} F_{SH} \frac{\partial A_{SH}}{\partial x} = -4\omega^2 \mu_0 \epsilon_0 d_{33} (A_{0,F} F_F)^2 e^{i\Delta\beta x}$$

dans le cas d'une onde guidée, nous avons :

$$\nabla_z^2 F_{SH} + (4\omega^2 \mu_0 \epsilon - \beta_{SH}^2) F_{SH} = 0$$

l'équation de propagation devient alors :

$$2i\beta_{SH} \frac{\partial A_{SH}}{\partial x} F_{SH}(z) = 4\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 d_{33} A_{0,F}^2 F_F^2 e^{i\Delta\beta x}$$

en multipliant par le profil complexe conjugué du mode :

$$2i\beta_{SH} \frac{\partial A_{SH}}{\partial x} F_{SH}(z) F_{SH}^*(z) = 4\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 d_{33} A_{0,F}^2 F_{SH}^*(z) F_F^2 e^{i\Delta\beta x}$$

puis en intégrant sur une section droite du guide :

$$2i\beta_{SH} \frac{\partial A_{SH}}{\partial x} = 4\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 d_{33} A_{0,F}^2 \int_{-\infty}^{+\infty} F_{SH}^*(z) F_F^2 e^{i\Delta\beta x} dz$$

$$\frac{\partial A_{SH}}{\partial x} = -\frac{2\omega^2 \mu_0 \varepsilon_0 i}{\beta_{SH}} d_{33} A_{0,F}^2 \int_{-\infty}^{+\infty} F_{SH}^*(z) F_F^2 e^{i\Delta\beta x} dz$$

soit encore :

$$\frac{\partial A_{SH}(x)}{\partial x} = -ie^{i\Delta\beta x} B d_{33} S_{eff}$$

avec :

$$B = \sqrt{\mu_0 \varepsilon_0} \left( \frac{\omega}{n_{SH}^{eff}} \right) A_{0,F}^2 = \frac{1}{c} \left( \frac{\omega}{n_{SH}^{eff}} \right) A_{0,F}^2$$

$$\text{et } S_{eff} = \int_{-\infty}^{+\infty} F_{2\omega}^*(z) F_{\omega}^2 dz$$

on obtient donc en intégrant sur une longueur d'interaction L :

$$A_{SH}(x) = -i \int_0^x e^{i\Delta\beta x} B d_{33} S_{eff} dx \quad (A1-2)$$

(A1-2) s'écrit alors :

$$A_{SH}(x) = -id_{33} B S_{eff} \int_0^x e^{i\Delta\beta x} dx$$

$$A_{SH}(L) = -id_{33} B \frac{(e^{i\Delta\beta L} - 1)}{i\Delta\beta} S_{eff}$$

$$A_{SH}(L) A_{SH}^*(L) = d_{33}^2 B^2 L^2 \sin^2 \left( \frac{\Delta\beta L}{2} \right) S_{eff}^2$$

la puissance harmonique peut donc s'écrire:

$$P_{SH}(L) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} n_{SH}^{eff} \int_{-\infty}^{+\infty} |E_{SH}(L, z)|^2 dz$$

$$P_{SH}(L) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} n_{SH}^{eff} |A_{SH}(L)|^2 \int_{-\infty}^{\infty} |F_{SH}(z)|^2 dz$$

$$P_{SH}(L) = \frac{1}{2} d_{33}^2 L^2 S_{eff}^2 \sin^2 \left( \frac{\Delta\beta L}{2} \right) \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \frac{\omega^2}{c^2 n_{SH}^{eff}} |A_{0,F}(L)|^4$$

or :

$$P_F = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} n_F^{eff} |A_{0,F}|^2 \int_{-\infty}^{\infty} |F_F(z)|^2 dz = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} n_F^{eff} |A_{0,F}|^2$$

$$\boxed{P_{SH}(L) = 2 \frac{\mu_0}{c} P_F^2 S_{eff}^2 \frac{\omega^2 d_{33}^2 L^2}{n_{SH}^{eff} (n_F^{eff})^2} \sin^2 \left( \frac{\Delta\beta L}{2} \right)} \quad (A1-3)$$

Alors dans le cas du QAP et d'après (20) et (22) page 14 et ) on peut écrire (A1-3) comme :

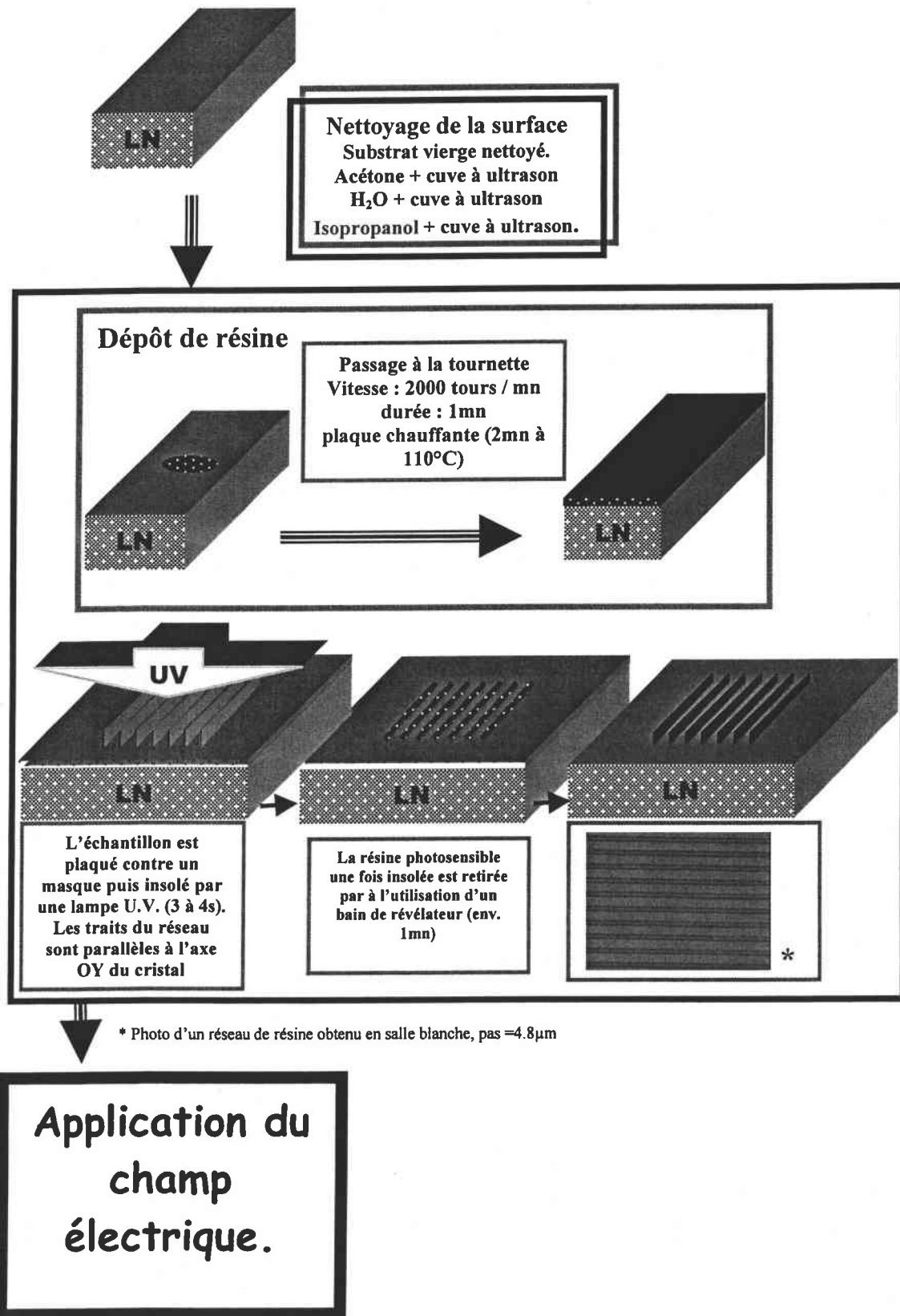
$$P_{SH}(L) = 2 \frac{\mu_0}{c} P_F^2 S_{eff}^2 \frac{\omega^2 L^2}{n_{SH}^{eff} (n_F^{eff})^2} \left( \frac{2d_{33}}{\pi m} \right)^2 \sin^2(\pi m \alpha)$$

Si l'on pose :

$$A_{OVL M} = \frac{1}{S_{eff}^2}$$

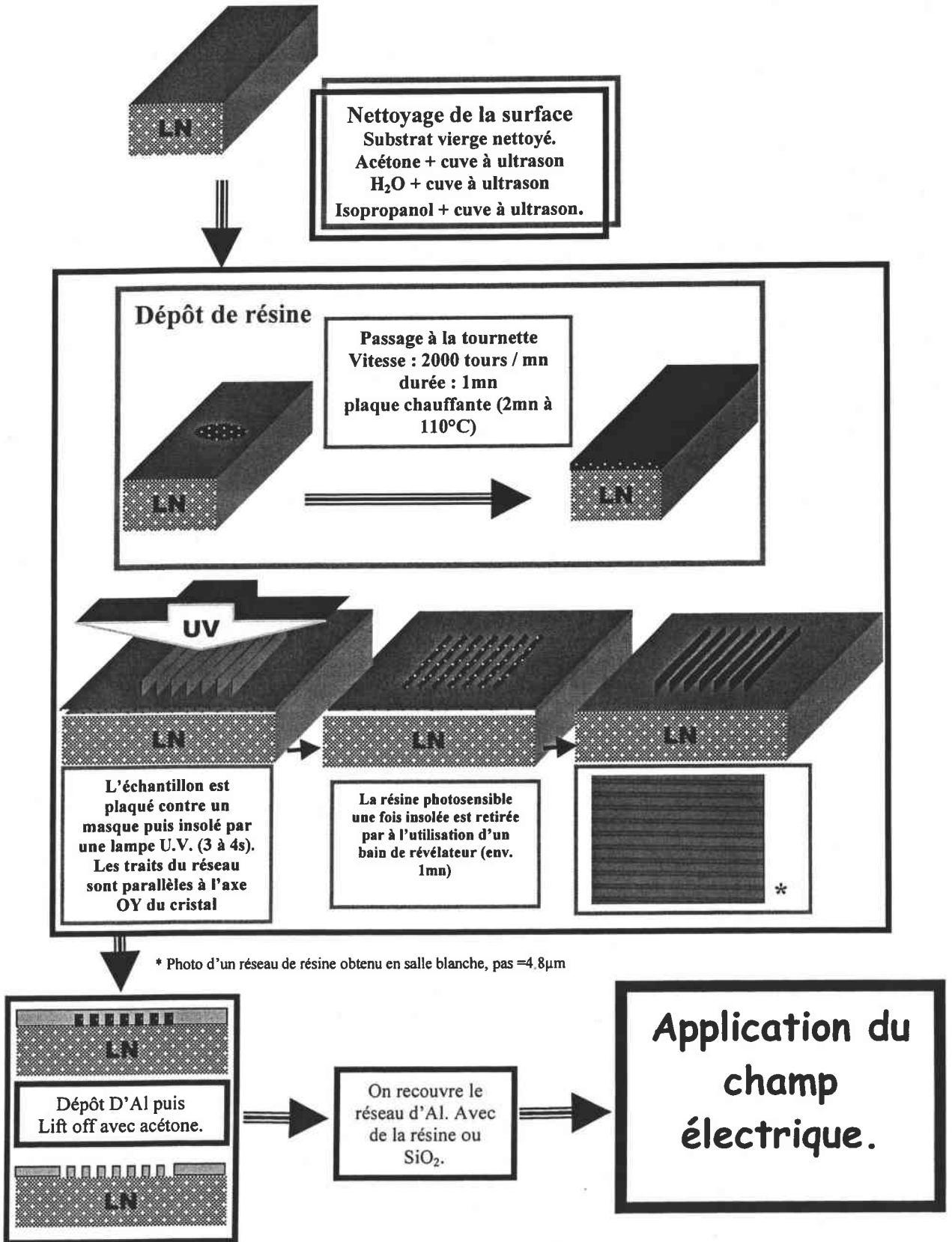
## ANNEXE 2

Réalisation d'un réseau de résine.



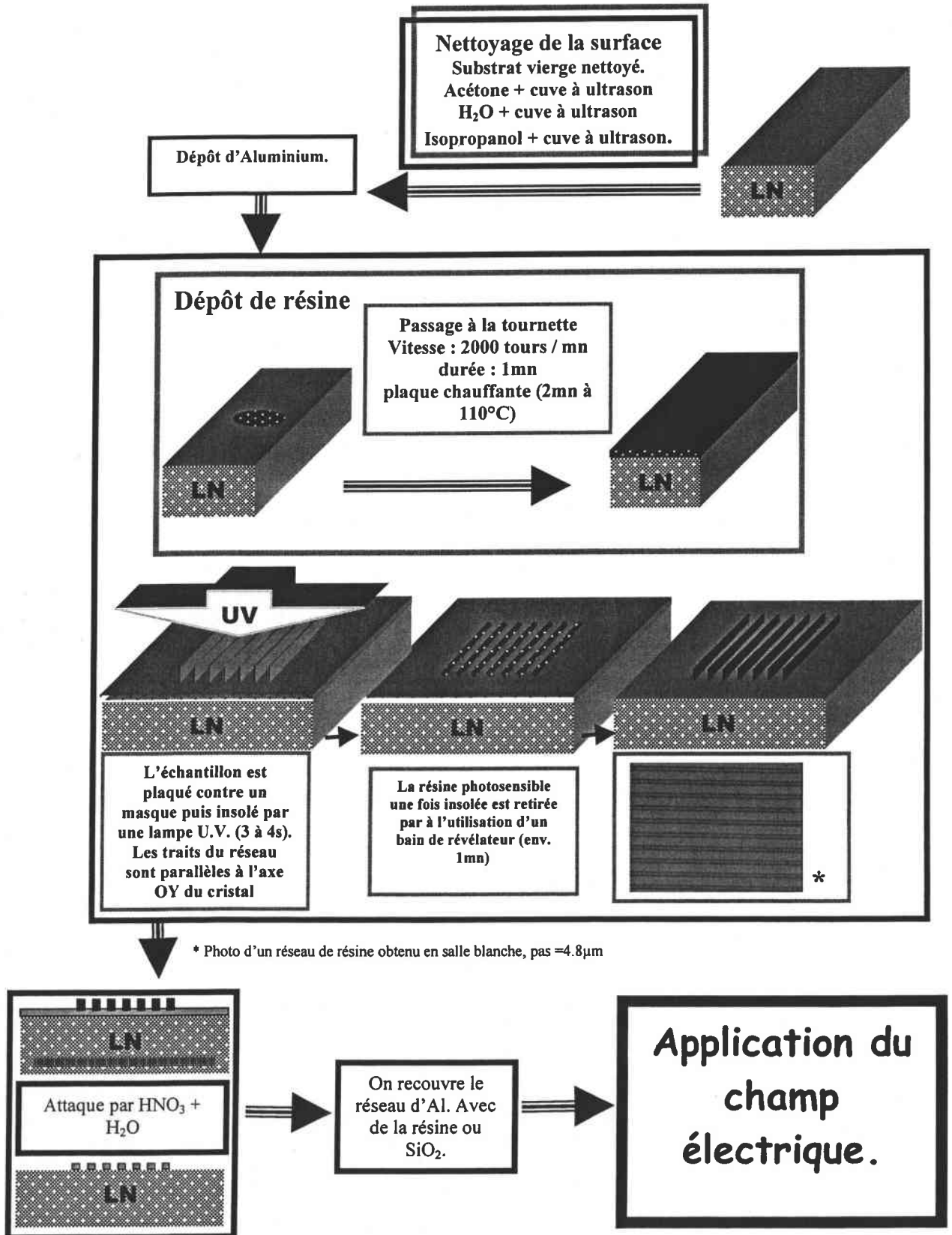
### ANNEXE 3

Réalisation d'un réseau d'Aluminium par lift-off.



# ANNEXE 4

Réalisation d'un réseau d'aluminium par gravure.



## ANNEXE 5

Ce tableau est une revue des résultats obtenus par GSH dans le niobate de lithium par QAP durant les quatorze dernières années. Il nous permet de situer notre travail dans le contexte international et historique que ce soit pour les techniques utilisées ou pour les taux de conversion obtenus.

Année Référence	Méthode de fabrication du guide	Guide canal ou plan	Longueur (cm)	Ordre de QPM	Technique de renversement de domaine	Laser	Longueur d'onde SH (nm)	Puissance pompe en mW (L)	Puissance harmonique mW	Efficacité de conversion (%/W <sup>-1</sup> )
1989 1	A.P.E.	Plan	0.1	3	Diffusion Titane	Nd:YAG	532	1	$5.10^{-7}$	$4.10^{-2}$
1989 2	A.P.E.	Canal	0.1	3	Diffusion Titane	Styryl-9 Dye	410	17.1	$1.1.10^{-3}$	0.36
1989 3	A.P.E.	Canal	1.4	1	Exo-diffusion de Li <sub>2</sub> O	DL	416	3	$6.10^{-5}$	0.35
1989 4	Diffusion Titane	Canal	0.7	1	Diffusion Titane	Nd :YAG (mode pulsé)	532	160 (puissance crête)	0.36 (puissance crête)	0.056 (puissance crête)



1991 5	A.P.E.	Canal	0.3	1	Diffusion Titane	Nd :YAG	532	---	$1.5 \cdot 10^{-5}$	16.6
1991 6	A.P.E.	Canal	0.2	1	Diffusion Titane	DL	662.4	---	$6.52 \cdot 10^{-1}$	0.16
1991 7	A.P.E.	Canal	0.4	1	Traitement thermique	Nd :YAG	532	---	$2.6 \cdot 10^{-5}$	16.3
1991 8	P.E.	Canal	0.9	3	Exo-diffusion de $\text{Li}_2\text{O}$	Ti : $\text{Al}_2\text{O}_3$	417	5	$1.5 \cdot 10^{-3}$	1.81
1992 9	A.P.E.	Canal	1.0	1	Diffusion Titane	Ti : $\text{Al}_2\text{O}_3$	435	77.9	0.65	6.8
1992 10	A.P.E.	Canal	1.05	---	Exo-diffusion de $\text{Li}_2\text{O}$	D.L.	416	---	---	2.3
1992 11	A.P.E.	Canal	0.33	1	E.B.S.	Nd :YAG	532	1.7	$1.3 \cdot 10^{-3}$	40
1992 12	A.P.E.	Canal	0.5	2	Diffusion Titane	Ti : $\text{Al}_2\text{O}_3$	432	52	0.257	8.5

1992 13	A.P.E.	Canal	0.6	2	Diffusion Titane	D.L.	425.1	36	0.3	18.5
1992 14	A.P.E.	Canal	0.6	2	Diffusion Titane	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Nd :YAG	433 532	45.2 30	0.45 0.25	17.6 22.4
1992 15	A.P.E.	Canal	0.33	1	E.B.S.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	440	2.5	4.10 <sup>-3</sup>	55
1993 16	A.P.E.	Canal	0.3	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	425.9	195.9	20.7	47
1993 17	A.P.E.	Canal	0.33	1	E.B.S.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	440	2.5	0.0045	62
1994 18	A.P.E.	Canal	1.05	1	Diffusion Titane	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	488	En 0 : <1	---	---
1996 19	A.P.E.	Canal	0.3 0.3	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> D.L.	432 432.5	34 0.8	1.7 4.8.10 <sup>-4</sup>	128 66
1996 20	A.P.E.	Canal	0.3 0.3	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> D.L.	383 383	En 0 : 56 En 0 : 14.5	1.9 0.072	61 34

1997 21	Diffusion Titane	Canal	0.5	3	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	422.5	En 0 : 45	0.079	0.39
1997 22	A.P.E	Canal	1.0	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	434	56	19	382
1997 23	A.P.E	Canal	0.7	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	475	90	2.2	20
1997 24	A.P.E	Canal	0.5	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	434	42	5.5	249
1997 25	A.P.E	Canal	1.0	1	E.F.P.	D.L.	426	---	17 (puissance crête)	---
1997 26	A.P.E	Canal	1.0	1	Diffusion Titane	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	421.5	120	25	110
		Canal	1.0	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	551.5	---	---	---
1997 27	A.P.E	Canal	1.0	1	E.F.P.	Ti :Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	475	107	37	203

2002 28	Diffusion Zinc	Canal		1	Durant le procédé de croissance.	D.L.	397.5	1.28	$78.10^{-9}$	0.05
------------	-------------------	-------	--	---	--	------	-------	------	--------------	------

Certaines abréviations ont été conservées sous leur forme anglophone car elles sont aujourd'hui les plus courantes ceci afin de ne pas perdre le lecteur.

APE: "Annealed Proton Exchange." Echange protonique avec recuit.

PE : « Proton Exchange » Echange protonique.

EFP : « Electric Field Poling » Polarisation par application de champs électrique.

EBS : « Electron Beam Scanning.» Polarisation par faisceau d'électrons.

DL : Diode Laser

1	Lim, E.J., Fejer, M.M., Byer, R.L., Electron. Lett. <b>25</b> , 174 (1989).
2	Lim, E.J., Fejer, M.M., Byer, R.L., Kozlovsky, W.J. Electron. Lett. <b>25</b> , 731 (1989).
3	Webjörn, J., Laurell, F., F. Arvidsson, G., IEEE Photon. Technol. Lett. <b>1</b> , 316 (1989).
4	Webjörn, J., Laurell, F., F. Arvidsson, G., J. Lightwave Technol. <b>7</b> , 1597 (1989).
5	Ishigame, Y., Suhara, T., Nishihara, H., Opt. Lett. <b>16</b> , 375 (1991)
6	Shinozaki, K., Fukunaga, T. Watanabe, K., Kamijoh, T., Appl. Phys. Lett. <b>59</b> , 510 (1991).
8	Fujimura, M., Suhara, T., Nishihara, H., Electron. Lett. <b>27</b> , 1207 (1991).
9	Yamamoto, K., Mizuuchi, K., Takeshige, K., J. Appl. Phys. <b>70</b> , 1947 (1991).
10	Armani, F., Delacourt, D., Lallier, E., Papuchon, M., He, Q., De Micheli, M., Ostrowsky, D.B., Electron. Lett. <b>28</b> , 139 (1992).
11	Helmfrid, S., Arvidsson, G., Webjörn, J., J. Opt. Soc. Am. B <b>10</b> , 222 (1992).
12	Fujimura, M., Suhara, T., Nishihara, H., Electron. Lett. <b>28</b> , 721 (1992).
13	Cao, X., Srivastava, R., Ramaswamy, R.V., Opt. Lett. <b>17</b> , 592 (1992).
14	Cao, X., Rose, B., Ramaswamy, R.V., Sristava, R., Opt. Lett. <b>17</b> , 795 (1992).
15	Cao, X., Srivastava, R., Ramaswamy, R.V., Appl. Phys. Lett. <b>60</b> , 3280 (1992)
16	Fujimura, M., Kintaka, K., Suhara, T., Nishihara, H., Electron. Lett. <b>28</b> , 1868 (1992)

17	Yamada, M., Nada, N., Saitoh, M., Watanabe, K., Appl. Phys. Lett. <b>62</b> , 435 (1993).
18	Fujimura, M., Kintaka, K., Suhara, T., Nishihara, H., J. Lightwave Technol. <b>11</b> , 1360 (1993).
19	Bortz, M.L., Field, S.J., Fejer, M.M., Nam, D.W., Waarts, R.G., Welch, D.F. IEEE Trans. Quantum Electron. <b>TQE-30</b> , 2953 (1994)
20	Kintaka, K., Fujimura, M., Suhara, T. Nishihara, H., J. Lightwave Technol. <b>14</b> , 462 (1996).
21	Kintaka, K., Fujimura, M., Suhara, T. Nishihara, H., Electron. Lett. <b>32</b> , 2237 (1996).
22	Amin, J., Pruneri, V., Webjörn, J., Russel, P.St.J., Hanna, D.C., Wilkinson, J.S., Opt. Commun. <b>135</b> , 41 (1997).
23	Mizuuchi, K., Yamamoto, K., Kato, M., Electron. Lett. <b>33</b> , 806 (1997).
24	Sonoda, S., Tsuruma, I., Hatori, M., Appl. Phys. Lett. <b>70</b> , 3078 (1997).
25	Mizuuchi, K., Ohta, H., Yamamoto, K., Kato, M., Opt. Lett <b>22</b> , 1217 (1997).
26	Kitaoka, Y., Yokoyama, T., Mizuuchi, K., Yamamoto, K., Kato, M., Electron. Lett. <b>33</b> , 1638 (1997).
27	Sonoda, S., Tsuruma, I., Hatori, M., Appl. Phys. Lett. <b>71</b> , 3048 (1997).
28	M. Domenech, R. E. Di Paolo, G. Lifante, and F. Cussó. Phys. Stat. Sol. (a) <b>192</b> No. 1, 135-138 (2002).

## **Conversion de fréquences dans des guides d'ondes fabriqués par implantation ionique dans des structures périodiquement polarisées de LiNbO<sub>3</sub>.**

La réalisation de sources lasers tout-solides et compactes par conversion de fréquences nécessite l'utilisation de guides d'onde fabriqués dans des matériaux optiques non linéaires. Nous avons choisi de combiner les avantages des guides implantés He<sup>+</sup> avec ceux des structures périodiquement polarisées (PP) dans le LiNbO<sub>3</sub> (LN). Dans ce but, nous avons mis en place un dispositif de fabrication de structures PP dans LN par application de champs électriques. Les réseaux de polarisation ainsi fabriqués ont été qualifiés par des techniques classiques (attaque par acide fluorhydrique) mais aussi par des techniques originales (spectroscopie  $\mu$ -Raman et luminescence des défauts). Nous avons ensuite fabriqué pour la première fois des guides d'ondes implantés dans des structures PPLN. De plus, nous avons étudié les performances de nos guides (guidage et pertes) en fonction des paramètres de fabrication (énergie) et de post fabrication (recuit). Pour cela, nous avons utilisé un dispositif de spectroscopie des lignes noires ainsi qu'une technique de mesure de pertes originale développée au laboratoire. Nous avons pu exciter des modes guidés en polarisation TE et TM, de plus les pertes les plus faibles obtenues sont de l'ordre de 1 dB/cm. Afin de qualifier les propriétés non linéaires de nos guides d'ondes, nous avons monté et automatisé un dispositif de doublage de fréquence en configuration guidée. Nos résultats montrent que le doublage de fréquence par quasi-accord de phase est plus efficace dans le guide ( $6,5 \cdot 10^{-3} \%$ /W) que dans le cristal massif ( $2,5 \cdot 10^{-3} \%$ /W). Ceci nous permet d'affirmer que le réseau périodique de polarisation n'est pas détruit par l'implantation. Une étude similaire sur des PPLN dopés ZnO a montré des caractéristiques identiques mais avec un intérêt supplémentaire qui est la résistance aux effets photoréfractifs.

## **Frequency conversion in periodically poled lithium niobate implanted waveguides.**

To obtain all solid-state compact lasers by frequency conversion, one needs the utilization of waveguides fabricated in non linear optical materials. In this work, we have chosen to combine the advantages of He<sup>+</sup> implanted waveguides with those of periodically poled (PP) structures in lithium niobate (LN). In this aim, we have realized an experimental setup to fabricate periodically poled structures by electric field poling. The obtained gratings have been qualified by conventional methods (etching by hydrofluorhydric acid) and also studied by original methods ( $\mu$ -Raman spectroscopy and luminescence of the defects). After that, we have performed, for the first time to our knowledge, He<sup>+</sup>-implanted waveguides in periodically poled lithium niobate (PPLN). Besides, we have studied the guiding properties as a function of the fabrication (energy) and post fabrication (annealing) parameters. For that, we have used dark m-lines spectroscopy. The optical losses have been measured by using an original method developed at MOPS laboratory. Both TE and TM guided modes have been excited and the optical losses have been estimated to be about of 1 dB/cm. In order to characterize the non linear optical properties of our waveguides, we have realized a second harmonic generation set-up in guiding configuration. Our results pointed out that the conversion efficiency of frequency doubling by quasi phase matching within the waveguide ( $6,5 \cdot 10^{-3} \%$ /W) was higher than that in bulk configuration ( $2,5 \cdot 10^{-3} \%$ /W). In addition to that, these results indicated that the periodic grating have not been destroyed by the implantation process. A similar study have been performed on ZnO doped PPLN wich showed similar results as for un-doped PPLN. Nevertheless, no photorefractive effects have been observed in such structures.