



AIX-MARSEILLE UNIVERSITE

ECOLE DOCTORALE : PHYSIQUE, SCIENCES DE LA MATIERE (ED 352)

UFR SCIENCES

INSTITUT FRESNEL

Discipline : Optique, Photonique et Traitement d'Image

Thèse présentée pour obtenir le grade universitaire de docteur par

Antoine BOURGADE

COMPOSANTS MULTICOUCHES SPATIALEMENT
STRUCTURES POUR LES DOMAINES DU VISIBLE ET DE
L'INFRAROUGE

Soutenue le 11/10/2019 devant le jury :

Pierre AMBS	MIPS	Rapporteur
Christophe MOSER	EPFL	Rapporteur
Annie PRADEL	ICGM	Examinatrice
Alexandre JOERG	SAFRAN-REOSC	Examineur
Karine MATHIEU	CNES	Invitée
Philippe ADAM	DGA	Invité
Thomas BEGOU	Institut Fresnel	Co-directeur
Julien LUMEAU	Institut Fresnel	Directeur

RESUME

Au cours de ces dernières décennies, d'énormes progrès ont été réalisés dans le domaine de la synthèse et de la fabrication de filtres optiques interférentiels, c'est-à-dire à base de couches minces optiques. Or, ces progrès ont été essentiellement tournés vers l'amélioration des techniques de calcul d'empilements ou des procédés de dépôts (en particulier le contrôle des procédés et des épaisseurs optiques déposées), mais très peu de développements ont été menés, au sein de cette communauté, sur l'intégration de nouveaux matériaux. A ce jour, les filtres intègrent essentiellement des couches à base d'oxydes (silice, pentoxyde de tantale, pentoxyde de niobium) pour les domaines visibles et proche infrarouge tandis que des matériaux moins stables tels que du sulfure de zinc, du germanium, et des fluorures d'yttrium ou d'ytterbium sont utilisés pour les applications infrarouge. Ces matériaux sont communément utilisés dans le domaine des filtres optiques interférentiels, on voit donc que très peu d'évolutions sur le choix des matériaux utilisés se sont produites. En même temps, il est intéressant de noter que, dans la communauté scientifique des matériaux, de très nombreux nouveaux verres ont vu le jour au cours de ces dernières décennies. En particulier des verres de phosphates ou des verres de chalcogénures ont été produits, avec une vaste gamme de compositions, ainsi qu'un nombre d'applications croissant (capteurs, fibres...) mais aucune (ou très peu) d'applications dans le domaine des composants optiques multicouches complexes. Dans le cadre de cette thèse, nous avons cherché à démontrer que des couches minces à base de verres de chalcogénures de qualité optique peuvent être fabriquées à l'aide des technologies modernes de dépôts de couches minces optiques et ce afin de permettre la réalisation de composants optiques multicouches à base de verres de chalcogénures avec des performances identiques voire meilleures que celles obtenues avec des procédés classiques de fabrication. Une étude détaillée des couches d' As_2S_3 pour la réalisation de filtres optiques multicouches a été réalisée. Nous avons ainsi montré que des couches homogènes et uniformes pouvaient être fabriquées par évaporation par canon à électrons avec des épaisseurs comprises entre 100 et 5000 nm. Ces couches présentent des propriétés de photosensibilité et il a été montré que ces variations photoinduites d'épaisseur optique (d'indice et/ou d'épaisseur) pouvaient être soit positive (+4%) soit négative (-2%) résultant en une variation relative de phase proportionnelle. Nous avons également montré qu'en utilisant des bicouches $\text{Ag}/\text{As}_2\text{S}_3$ il était possible, par phénomènes photoinduits, de contrôler l'amplitude locale transmise. Nous avons ensuite montré que ces couches de chalcogénures étaient compatibles avec la fabrication de filtres optiques interférentiels passe-bande du type Fabry-Perot simple et multi-cavités et que l'emploi de couches à base de verres de chalcogénures permet non seulement la fabrication d'empilement complexes à performances spectrales similaires à celles obtenues avec des matériaux classiques en couches minces optiques mais également d'améliorer ces performances en réalisant une correction a posteriori des variations des propriétés optiques de par la surface du composant afin de produire des composants à très grande uniformité. Enfin, nous avons montré que l'emploi de couches à base de verres de chalcogénures offrait une nouvelle

approche pour la réalisation d'éléments diffractifs optiques de volume. Pour ce faire, nous avons développé une technique analogue à celles couramment utilisées pour la réalisation d'éléments optiques diffractifs par lithographie pour la réalisation d'éléments optiques diffractifs similaires mais basée sur des variations d'indice photoinduites.

MOTS CLEFS : Verres de chalcogénures, filtres optiques interférentiels, éléments optiques diffractifs, applications couches minces optiques, et photosensibilité

SUMMARY

During the last few decades, large progress has been made in the field of the design and the manufacturing of optical interference filters based on multilayer structures. However, these evolutions have been mainly focused on the improvement of stack design techniques or deposition processes (in particular process control and the monitoring of deposited optical thicknesses), but very few developments have been carried out within this community, on the integration of new materials. To date, the filters mainly include oxide-based layers (silica, tantalum, niobia) for the visible and near-infrared spectral ranges while less stable materials such as zinc sulfide, germanium, and yttrium or ytterbium fluorides are used for infrared applications. Commonly used in the field of interference optical filters, we therefore see that very few changes in the materials used have occurred. At the same time, it is interesting to note that in the scientific community of materials, many new glasses have emerged in recent decades. In particular, phosphates glasses or chalcogenide glasses have been produced, with a wide range of compositions, as well as a growing number of applications (sensors, fibers, etc.) but no (or very few) applications in the field of complex multilayer optical components. Within this thesis, we have demonstrated that optical quality thin layers based on chalcogenide glasses can be manufactured using modern optical thin-film deposition technologies and allow the fabrication of multilayer optical components with same or better performances than those obtained with conventional manufacturing processes. We carried out a detailed study of As_2S_3 layers for the realization of multilayer optical filters. We have shown that homogeneous and uniform layers can be manufactured by electron beam deposition with thicknesses ranging from 100 and 5000 nm. These layers have photosensitive properties and it has been shown that photoinduced optical thickness (index and / or thickness) variations can be either positive (+ 4%) or negative (-2%) resulting in a relative proportional phase variation. We have also shown that by using $\text{Ag}/\text{As}_2\text{S}_3$ bilayers, it is possible, by photoinduced phenomena, to control the local transmitted amplitude. We then demonstrated that these chalcogenide layers are compatible with the fabrication of single and multi-cavity Fabry-Perot band-pass optical interference filters and that the use of chalcogenide-based layers not only allows the fabrication of optical filters with performances similar to those obtained with conventional optical thin film materials but also to improve these performances by performing an a-posteriori correction of the variations of the optical properties over the surface of the component and produce components with very high uniformity. Finally, we have shown that the use of chalcogenide glass layers offers a new approach for the fabrication of optical diffractive optical elements. To achieve this, we have developed a technique similar to those commonly used for the production of diffractive optical elements (i.e. by lithography) for producing similar diffractive optical elements but based on photoinduced index variations.

KEY WORDS: Chalcogenide glasses, optical filters, diffractive optical elements, thin-film applications, and photosensitivity

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE.....	5
CHAPITRE 1 COMPOSANTS OPTIQUES EN COUCHES MINCES ET VERRES	
DE CHALCOGENURES	9
1.1 Filtres optiques interférentiels	9
1.1.1 Introduction aux filtres optiques interférentiels.....	9
1.1.2 Formalisme matriciel des couches minces optiques	11
1.1.2.1 Phénomène d'interférences.....	11
1.1.2.2 Formalisme matriciel des couches minces	12
1.1.3 Structures interférentielles classiques	14
1.1.3.1 Couche quart d'onde.....	15
1.1.3.2 Structure antireflet	16
1.1.3.3 Miroir diélectrique quart d'onde	17
1.1.3.4 Filtre passe-bande étroit (Fabry-Perot).....	18
1.2 Eléments optiques diffractifs (EODs)	20
1.2.1 Principe de fonctionnement des EODs	20
1.2.2 Conception du motif.....	21
1.3 Verres de Chalcogénures.....	23
1.3.1 Composition de base des verres de chalcogénures.....	23
1.3.2 Verres de chalcogénures aux propriétés photosensibles	25
1.3.3 Exemples d'applications de verres de chalcogénures	26
CHAPITRE 2 DEPOT ET CARACTERISATION DE MATERIAUX CHALCOGENURES EN COUCHES	
MINCES OPTIQUES.....	31
2.1 Dépôt de couches minces optiques.....	31
2.1.1 Introduction aux dépôts	31
2.1.2 Techniques de dépôts classiques.....	32
2.1.2.1 Dépôt chimique.....	32
2.1.2.2 Dépôt physique.....	32
2.1.3 Dépôt Physique par évaporation à l'Institut Fresnel.....	33
2.1.3.1 BAK 600.....	34
2.1.3.2 Bühler SYRUSpro 710.....	35
2.2 Outils de Caractérisation des dépôts	37
2.2.1 Spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050	37
2.2.2 Profilomètre Optique Zygo NewView 7300	39
2.2.3 Microscopes	41

2.2.3.1	Microscope optique	41
2.2.3.2	Microscope à Contraste Interférentiel (DIC)	42
2.3	Paramètres caractéristiques de couches minces	43
2.4	Détermination d'indice et d'épaisseur des matériaux utilisés	43
2.4.1	<i>Programme de calcul.....</i>	<i>43</i>
2.4.2	<i>Couches minces d'As₂S₃.....</i>	<i>44</i>
2.4.3	<i>Autres matériaux exotiques :</i>	<i>48</i>
2.4.3.1	Couches minces de Ge ₃ As ₂ S ₅	48
2.4.3.2	Couches minces de GeSe et de GeSbTe	49
2.4.3.1	Couches minces de Sb ₂ Te.....	51
CHAPITRE 3	ETUDE DE LA CINETIQUE DE LA PHOTOSENSIBILITE DE L'As₂S₃	55
3.1	Introduction	55
3.2	Choix de la source d'exposition	56
3.3	Variation de la transmission en fonction de l'exposition.....	58
3.4	Variation des paramètres opto-géométriques (n, k et d en fonction de l'exposition)	60
3.5	Etude du recuit comme moyen d'accès à l'hystérésis.....	66
3.6	Stabilité des couches d'As₂S₃.....	68
3.6.1	<i>Adhérence après dépôt.....</i>	<i>68</i>
3.6.2	<i>Stabilité temporelle.....</i>	<i>69</i>
3.6.2.1	Stabilité avant exposition	70
3.6.2.2	Stabilité après exposition.....	70
3.7	Composants binaires et sauts de phase.....	71
3.7.1	<i>Montage de caractérisation du déphasage (Mach-Zehnder)</i>	<i>72</i>
3.7.2	<i>Composants binaires à saut de phase : $0 \rightarrow \pi/6$ et $0 \rightarrow -\pi/6$</i>	<i>73</i>
3.7.3	<i>Modélisation de composants de phase binaires multicouches</i>	<i>73</i>
3.7.4	<i>Démonstration expérimentale de déphasages $0 \rightarrow 2\pi$</i>	<i>77</i>
3.8	Photo-dissolution de l'argent dans des couches d'As₂S₃	78
CHAPITRE 4	FILTRES OPTIQUES INTERFERENTIELS MULTICOUCHES	83
4.1	Introduction	83
4.2	Filtre Fabry-Perot à base de couches d'As₂S₃	84
4.2.1	<i>Design de la structure.....</i>	<i>84</i>
4.2.2	<i>Fabrication d'un prototype.....</i>	<i>85</i>
4.2.3	<i>Choix de la taille du faisceau d'exposition et de mesure.....</i>	<i>87</i>
4.2.4	<i>Système expérimental automatisé d'exposition et de mesure locale de la réponse spectrale du filtre</i>	<i>88</i>
4.2.5	<i>Mesure de l'uniformité du filtre après dépôt.....</i>	<i>89</i>

4.2.6	<i>Caractérisation de la cinétique de la variation de la longueur d'onde de centrage du filtre en fonction de l'exposition</i>	90
4.2.7	<i>Uniformisation du filtre par photosensibilité</i>	92
4.2.8	<i>Caractérisations supplémentaires des performances spectrales du filtre</i>	93
4.3	Filtres Fabry-Perot double cavité	95
4.3.1	<i>Etude d'un Fabry-Perot à double cavité à couches quart d'onde</i>	95
4.3.1.1	Design	95
4.3.1.2	Etude de l'influence d'une exposition à 470 nm	97
4.3.2	<i>Filtre Fabry-Perot double Cavité à structure optimisée</i>	99
4.3.2.1	Calcul d'une structure optimisée	99
4.3.2.2	Démonstration expérimentale	102
4.4	Filtre Fabry-Perot à trois cavités	104
4.5	Conclusion	106
CHAPITRE 5	ELEMENTS OPTIQUES DIFFRACTIFS	109
5.1	Introduction aux éléments optiques diffractifs	109
5.2	Design d'EODs	109
5.2.1	<i>Logiciel de design d'EODs : VirtualLab</i>	109
5.2.1.1	Paramètres de design utilisés par le logiciel VirtualLab	110
5.2.1.2	Exemples d'EODs binaires	112
5.2.1.3	Design d'EODs multi-niveaux	114
5.3	Développement d'un banc optique d'exposition pour la fabrication d'EODs	115
5.3.1	<i>Description du banc optique d'exposition</i>	116
5.3.2	<i>Optimisation de l'exposition pour la fabrication d'EODs</i>	119
5.3.2.1	Optimisation du contraste entre pixels noirs et blancs	119
5.3.2.2	Durée d'exposition optimale théorique	120
5.3.3	<i>Alignement et positionnement de l'échantillon</i>	120
5.4	Fabrication d'EODs binaires en Phase	122
5.4.1	<i>Fabrication d'EODs par photo-lithographie</i>	122
5.4.1.1	Méthode de fabrication d'EODs par photo-lithographie	122
5.4.1.2	Résultats	123
5.4.2	<i>Fabrication d'EODs par photosensibilité dans des couches d'As₂S₃</i>	127
5.4.2.1	Fabrication	127
5.4.2.2	Résultats	128
5.4.3	<i>Comparaison des résultats obtenus pour les différentes méthodes de fabrication</i>	131
5.4.3.1	Comparaison qualitative des EODs	131
5.4.3.2	Efficacité de diffraction de l'ordre zéro	132
5.5	EODs en amplitude par photo-dissolution	133
5.6	Optimisation des EODs fabriqués dans des couches d'As₂S₃	135
5.6.1.1	Diminution de la taille des motifs	135
5.6.1.2	Processus de réplique des motifs	136

5.6.1.3	Etude de l'influence de la taille du motif initial.....	137
5.6.1.4	Exemples d'EODs optimisés	138
CONCLUSION ET PERSPECTIVES		141
RÉFÉRENCES.....		145
ANNEXE : CONSTANTES OPTIQUES DES MATERIAUX UTILISES POUR LES EMPILEMENTS		
MULTICOUCHES		157
0.1	Couches de matériaux haut indice.....	158
0.1.1	Couches de Nb_2O_5	158
0.1.2	Couches de ZnS	159
0.2	Couches de matériaux bas indice.....	161
0.2.1	Couches de SiO_2	161
0.2.2	Couches d' YF_3	161

Introduction générale

Cette thèse s'est déroulée au sein de l'Institut Fresnel à Marseille et plus particulièrement dans l'équipe de Recherche en Couches Minces Optiques (RCMO). Elle s'est intéressée au développement de composants optiques intégrant des couches minces à base de verres de chalcogénures. En effet, au cours de ces quelques dernières décennies, de très grands progrès ont été réalisés dans le domaine de la synthèse et de la fabrication des filtres optiques interférentiels. Or, ces progrès ont été essentiellement tournés vers l'amélioration des techniques de calcul d'empilements ou les procédés de dépôts (en particulier le contrôle des procédés ou le contrôle des épaisseurs optiques déposées), mais très peu de développements ont été menés, au sein de cette communauté, sur l'intégration de nouveaux matériaux. A ce jour, les matériaux oxydes tels que la silice, le pentoxyde de tantale ou de niobium sont les plus couramment utilisés pour fabriquer des filtres pour le visible ou le proche infrarouge tandis que des matériaux tels que du sulfure de zinc, du germanium, et des fluorures d'yttrium ou d'ytterbium sont utilisés pour les applications infrarouge. On voit donc que très peu d'évolutions sur les matériaux en couches minces optiques se sont produites. En même temps, il est intéressant de noter que, dans la communauté des sciences des matériaux, de très nombreux nouveaux verres ont vu le jour au cours de ces dernières décennies. En particulier des verres de phosphates ou des verres de chalcogénures ont été produits, avec une vaste gamme de compositions, ainsi qu'un nombre d'applications croissant (capteurs, fibres...) mais aucune (ou très peu) d'applications dans le domaine des composants optiques multicouches complexes.

Nous nous sommes donc intéressés à l'utilisation des verres de chalcogénures pour la réalisation de composants optiques multicouches à hautes performances. Ces travaux sont la suite directe des travaux de thèse de M. Alexandre JOERG (2012-2015). Dans le cadre de cette thèse, un ensemble de preuves de concepts avaient été démontrées. En particulier, il avait été montré que l'emploi de couches minces à base de GeAsSe, du fait de ses propriétés de photosensibilité (i.e. des variations d'indice photoinduites qui peuvent être produites par exposition à un rayonnement laser), permet la réalisation de composants optiques multicouches spatialement structurés tels que des éléments diffractifs optiques ou des filtres optiques interférentiels.

Dans le cadre de cette thèse, nous avons donc cherché à lever les verrous technologiques qui n'avaient pas été levés dans l'étude précédente. En particulier, nous avons cherché à démontrer que des couches minces à base de verres de chalcogénures de qualité optique peuvent être fabriquées à l'aide des technologies modernes de dépôts de couches minces

optiques et ce afin de permettre la réalisation de composants optiques multicouches à base de verres de chalcogénures avec des performances identiques voire meilleures que celles obtenues avec des procédés classiques de fabrication.

Ce manuscrit comprend cinq chapitres. Après une étude bibliographique (Chapitre 1), nous aborderons la fabrication de couches minces à base de verres de chalcogénures (Chapitre 2). Nous présenterons une étude détaillée de couches d'As₂S₃ mais également d'un ensemble d'autres matériaux qui ont été développés dans le cadre de cette thèse pour des applications autres que celles qui seront décrites dans cette thèse. En particulier, nous présenterons les dispersions d'indice qui ont été extraites à partir des courbes de transmission spectrales mesurées après dépôt. Le Chapitre 3 s'intéressera aux variations de propriétés optiques qui peuvent être photoinduites dans ces couches. En particulier, nous présenterons les variations d'indice et d'épaisseur, induites par l'exposition à un rayonnement laser, dans des monocouches d'As₂S₃ ainsi qu'une étude des variations de phase associées. Nous présenterons également les variations de transmission photoinduites dans des bicouches Ag/As₂S₃ et les cinétiques associées à ces deux types de phénomènes. Les Chapitre 4 et Chapitre 5 seront dédiés au développements de composants optiques à base de ces couches d'As₂S₃. Le Chapitre 4 s'intéressera aux filtres optiques interférentiels passe-bande du type Fabry-Perot simple et multi-cavités. Nous montrerons que l'emploi de couches à base de verres de chalcogénures permet non seulement la fabrication d'empilement complexes à performances spectrales similaires à celles obtenues avec des matériaux classiques en couches minces optiques mais également d'améliorer ces performances en réalisant une correction a posteriori des variations des propriétés optiques de par la surface du composant afin de produire des composants à très grande uniformité. Le Chapitre 5 s'intéressera à l'emploi de couches à base de verres de chalcogénures pour la réalisation d'éléments diffractifs optiques de volume. Pour ce faire, nous présenterons une transposition des techniques couramment utilisées pour la réalisation d'éléments optiques diffractifs par lithographie à la réalisation d'éléments optiques diffractifs similaires mais basées sur des variations d'indice photoinduites. Enfin, dans un dernier Chapitre, nous présenterons une conclusion aux travaux réalisés ainsi que les perspectives envisagées.

Chapitre 1

Composants optiques en couches minces et verres de chalcogénures

Ce chapitre a pour but d'introduire les différents domaines qui seront abordés dans le cadre de cette thèse. Tout d'abord, nous introduirons les méthodes de mise en forme de faisceau par un contrôle spectral ou spatial de la lumière. Pour le contrôle spectral, nous décrirons le principe de couches minces optiques et de filtres optiques interférentiels. Le contrôle spatial reposera sur la notion d'éléments optiques diffractifs. Enfin nous finirons par une description des matériaux de types verres de chalcogénures qui nous permettront, dans le cadre de cette thèse, de réaliser des composants optiques multicouches spatialement structurés.

1.1 Filtres optiques interférentiels

1.1.1 Introduction aux filtres optiques interférentiels

Les filtres optiques se basant sur un effet d'interférences sont des éléments optiques très connus et très utilisés. Ces filtres sont fabriqués pour une grande variété de domaines allant des télécommunications [1] à la bio-photonique [2] en passant par l'industrie automobile [3] ou encore la lunetterie [4], [5]. Ce type de filtre optique est obtenu par l'alternance de couches minces de matériaux hauts et bas indices sur un substrat (de quelques couches à quelques centaines de couches). L'épaisseur de ces couches est en général comprise entre quelques nanomètres et plusieurs micromètres. Par un phénomène d'interférences, ces filtres vont alors

permettre le contrôle des propriétés spectrales de la lumière transmise ou réfléchi. Les combinaisons possibles de matériaux et d'épaisseur permettent l'obtention d'un grand nombre de fonctions spectrales différentes [6]: filtres passe-haut, filtres passe-bas, filtres coupe-bande, séparateurs de faisceau (polarisés ou non), miroirs, antireflets, filtres passe-bande...

Au cours des trois dernières décennies, des progrès considérables ont été réalisés dans le domaine du filtrage spectral et des couches minces. Ces améliorations concernent à la fois les outils numériques et les techniques de dépôt. En effet, l'amélioration des filtres finaux commencent par l'amélioration des techniques de simulations et donc par l'augmentation des capacités de calcul. Le développement de procédures et algorithmes de conception plus sophistiqués [7], [8] permet en effet l'amélioration des filtres. Désormais l'utilisation de programmes de simulation commerciaux permet de trouver des solutions efficaces à des problèmes de conception physique. Au-delà de l'amélioration des méthodes et des processus de simulation, d'énormes progrès ont été réalisés sur les techniques de dépôt et de contrôle de l'épaisseur des couches. Ces techniques sont devenues tellement contrôlables et répétables que des machines de dépôt virtuelles (VDP) ont également vu le jour au cours de ces quinze dernières années [9], [10]. Ces machines virtuelles permettent la simulation de dépôt avec la prise en compte des fluctuations et des erreurs liées aux machines utilisées. Elles permettent donc de prévoir les performances du filtre après fabrication sans pour autant réellement le déposer [11]. Ajoutées à ces améliorations théoriques, il faut aussi prendre en compte les améliorations technologiques des machines elles-mêmes. Même si ces machines reposent sur les mêmes processus physiques que ceux utilisés il y a trente ans, le contrôle des procédés a énormément progressé. Il est maintenant possible d'effectuer des dépôts entièrement automatisés de plusieurs dizaines d'heures, contenant plusieurs centaines de couches et d'une épaisseur totale de plusieurs dizaines de micromètres [12]. De tels dépôts sont réalisés sur des machines fonctionnant soit par évaporation par canons à électrons [13], soit par pulvérisation cathodique magnétron [14] ou pulvérisation ionique [15]. Ces machines permettent aussi de très grandes stabilité et reproductibilité des expériences. Mais surtout, ces techniques permettent d'obtenir, avec une grande fiabilité, des filtres multicouches complexes avec des exigences très grandes [14], [16]–[18]. La technique la plus conventionnelle, que nous avons retenue dans cette thèse, est celle du dépôt sous vide par évaporation par faisceau d'électrons (assistée ou non par faisceau d'ions ou par plasma). En effet elle permet de déposer une très grande variété de matériaux avec un simplicité relative tout en permettant de réaliser des composants optiques multicouches à hautes performances.

1.1.2 Formalisme matriciel des couches minces optiques

Afin de pouvoir introduire le formalisme classique matriciel permettant le calcul des performances d'empilements de couches minces optiques, nous allons tout d'abord nous pencher sur le phénomène d'interférences. En effet, l'étude de ce phénomène permettra d'établir les premières relations et principes physiques utilisés. Dans la suite de cette partie, nous considérerons que l'illumination des couches ou multicouches se fait à incidence normale. Cela nous permettra de négliger, dans nos calculs, la polarisation de la lumière.

1.1.2.1 Phénomène d'interférences

Pour mieux comprendre ce qu'est un filtre optique interférentiel, le rappel de certains principes physiques et certaines relations est nécessaire. Considérons un empilement plan de p couches minces comme illustré dans la Figure 1. On considère les milieux et couches déposées homogènes et isotropes. Dans la Figure 1, le milieu incident a un indice de réfraction n_0 : c'est le milieu extérieur. Ce milieu sera en général l'air avec un indice $n_0 = 1$. Le milieu émergent est celui du substrat d'indice de réfraction n_s . C'est en général un matériau vitreux ou cristallin et c'est le matériau sur lequel les couches vont être déposées. Les substrats les plus utilisés dans l'équipe Couches Minces Optiques de l'Institut Fresnel sont : la silice (SiO_2) [19], [20], des verres multi-composants tels que le BK7 ou le B270 [21], [22] et le silicium.

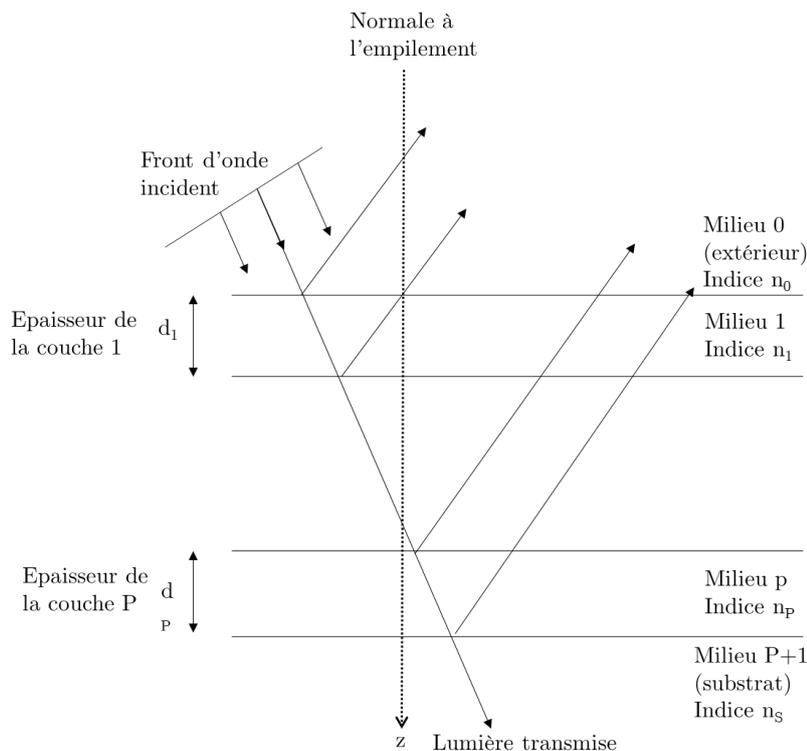


Figure 1 : Principe d'interférences dans une multicouche

Un des premiers principes à rappeler, pour les empilements comme ceux illustrés dans la Figure 1, est que l'amplitude de la lumière réfléchie à l'interface de deux milieux d'indices de réfraction différents est donné par :

$$r = \frac{1 - \rho}{1 + \rho} \quad 1.1$$

Où ρ est le ratio des indices de réfraction des deux milieux. Pour donner un exemple, la valeur de ρ dans le visible, avant dépôt, i.e. quand les deux seuls milieux sont l'air et le substrat (BK7 par exemple), est égale à $\rho = n_0/n_s = 1/1,52 \approx 0,66$.

Pour pouvoir discuter d'interférences il faut aussi prendre en compte la phase en réflexion. A l'incidence normale, celle-ci est égale à 180° si la réflexion se fait d'un milieu bas indice à un milieu haut indice et égale à 0° si la réflexion se fait d'un milieu haut indice à bas indice. Ainsi, lorsqu'un faisceau arrive à nouveau à l'interface entre deux milieux d'indice différents il en résulte de nouveaux faisceaux par réflexion, déphasés ou non, qui vont se combiner avec les faisceaux se propageant dans les couches et produire un ensemble de phénomènes d'interférences. Dans le cas où la différence de phase des faisceaux est de 180° ou 0° (ou 360°) alors les faisceaux interfèrent respectivement de manière destructive ou constructive. Pour toutes autres valeurs de phase, on obtient les différents cas intermédiaires.

1.1.2.2 Formalisme matriciel des couches minces

Après avoir défini la notion d'interférences, nous allons introduire quelques notions concernant les couches minces et les moyens de prédire la réponse spectrale d'un empilement de couches minces. De par les réflexions multiples et les phénomènes d'interférences associés, il est impossible de simplement prévoir la réponse spectrale d'un empilement de couches minces. L'utilisation de méthodes de calcul analytiques permettant la simulation des performances spectrales d'un empilement est donc nécessaire [6]. Ces méthodes de calcul sont basées sur les équations de Maxwell. L'approche développée se trouve dans la littérature [23]–[26]. La méthode de calcul qui sera utilisée par la suite repose sur un calcul matriciel [27]. En effet, celle-ci se base sur le produit de matrices 2×2 où chaque matrice représente une couche mince pour obtenir les spectres en transmission et en réflexion.

Considérons à nouveau la Figure 1, et simplifions la pour ne considérer qu'une seule couche mince (indice de réfraction n_1) entre le substrat et le milieu extérieur (air). A partir des équations de Maxwell, il est alors possible de retrouver les champs électromagnétiques tangentiels H_a et E_a ainsi que H_b et E_b aux interfaces a et b (respectivement air/couche mince, couche mince/substrat) à l'aide du produit matriciel suivant :

$$\begin{bmatrix} E_a \\ H_a \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos(\delta) & i \sin(\delta)/n_1 \\ i n_1 \sin(\delta) & \cos(\delta) \end{bmatrix} = [M_1] \begin{bmatrix} E_b \\ H_b \end{bmatrix} \quad 1.2$$

Où δ est la phase induite par la couche d'épaisseur d et d'indice n_1 . δ suit donc la relation suivante :

$$\delta = \frac{2\pi n_1 d}{\lambda} \quad 1.3$$

La relation matricielle permet de lier les champs électromagnétiques E et H entre les deux interfaces. Elle repose sur l'hypothèse que les composantes H et E sont continues au changement de milieu (dioptré) mais aussi que le substrat et l'air sont semi-infinis. La matrice M_1 est caractéristique de la couche mince. Il sera admis (notation reprise de la référence [6]) que l'admittance optique est le rapport entre le champ magnétique et le champ électrique soit :

$$Y = \frac{H_a}{E_a} \quad 1.4$$

On peut donc simplifier l'équation précédente par la normalisation par E_b . De plus, on sait que $H_b = n_s \times E_b$. Ce qui nous permet d'obtenir :

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_a/E_b \\ H_a/E_b \end{bmatrix} = [M_1] \begin{bmatrix} 1 \\ n_s \end{bmatrix} \quad 1.5$$

Ce résultat est valable pour une couche mince. Dans le cas un peu plus complexe d'un empilement de p couches, il suffit alors de multiplier les matrices caractéristiques à chaque couche. L'équation simplifiée est donc :

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \left\{ \prod_{j=1}^p [M_j] \right\} \begin{bmatrix} 1 \\ n_s \end{bmatrix} = \left\{ \prod_{j=1}^p \begin{bmatrix} \cos(\delta_j) & i \sin(\delta_j)/n_j \\ i n_j \sin(\delta_j) & \cos(\delta_j) \end{bmatrix} \right\} \begin{bmatrix} 1 \\ n_s \end{bmatrix} \quad 1.6$$

Ensuite avec les coefficients B et C , il est possible de retrouver la transmission et la réflexion d'un empilement de couches minces. En effet B , C et les facteurs de réflexion et de transmission sont liés par :

$$r = \frac{n_0 B - C}{n_0 B + C} \quad \text{et} \quad t = \frac{2n_0}{n_0 B + C} \quad 1.7$$

Les déphasages à la réflexion et à la transmission peuvent être directement obtenus en prenant les arguments de r et t .

Enfin, les intensités en transmission (T) et en réflexion (R) sont obtenues par :

$$R = r \times r^* \quad \text{et} \quad T = \frac{\text{Re}(n_s)}{n_0} t \times t^* \quad 1.8$$

En général, les applications nécessitant des filtres optiques interférentiels ont soit des exigences sur les propriétés en transmission soit sur celles en réflexion. Dans les cas les plus simples (dans les cas où les matériaux ne sont pas absorbants) la somme de la transmission et de la réflexion est égale à un. Mais dans le cas général (avec des matériaux absorbants, A), il est possible d'utiliser :

$$1 = A + R + T \quad 1.9$$

Avec la méthode de calcul matriciel il est possible d'utiliser le principe de l'admittance ($Y = C/B$) et de calculer, pour un ensemble de couches, l'équivalent d'un indice complexe pour cet empilement (ou admittance), associé à la réponse optique globale de celui-ci. En d'autres termes, il est donc possible, lors de la conception de filtres complexes avec plusieurs sous-empilements, de les faire correspondre à des fonctions optiques typiques et plus simples (subdiviser un empilement en fonctions optiques classiques).

1.1.3 Structures interférentielles classiques

A partir de cette introduction au formalisme matriciel des couches minces optiques, intéressons-nous aux fonctions optiques qui peuvent être obtenues par des empilements multicouches. Suivant la complexité de la fonction optique attendue, il est parfois possible de calculer analytiquement l'empilement à partir de formules connues. C'est par exemple le cas des filtres passe-bande qui sont en général obtenus avec des structures Fabry-Perot. Dans le cas de fonctions optiques plus complexes ou à profil spectral atypiques, il est alors nécessaire d'utiliser des méthodes de synthèse numériques telles que par exemple la méthode des aiguilles [7], [8], [28]. Dans ce cas, il est possible de trouver une solution à tout problème physiquement valide. En revanche, les formules obtenues sont en général très complexes et la notion de fabricabilité apparaît. Il est alors nécessaire d'ajouter des contraintes sur la formule de l'empilement telles que l'épaisseur minimale des couches, le nombre de matériaux... Il est important de noter dans le cas où ces contraintes sont bien prises en compte et qu'une méthode de dépôt stable associée à un contrôle optique performant sont utilisés, il est alors possible de fabriquer des filtres à profils arbitraires extrêmement complexes. La Figure 2 présente le résultat obtenu au sein de l'équipe Couches Minces Optiques de l'Institut Fresnel lors du concours de fabrication (*manufacturing problem contest*) de la conférence OIC (*Optical Interference Coatings*) 2016. Cette image est tirée de la référence [17]. Ce concours visait à fabriquer un filtre dont le profil spectral en transmission et réflexion reproduit une tête d'élan. Dans cet exemple, il est possible de mettre en évidence que par ajustement du design aux contraintes de fabrication, il est possible d'obtenir des fonctions optiques très complexes. On peut voir ici que non seulement la transmission et la réflexion devaient être contrôlées mais

également l'absorption, ce qui nécessite également une très bonne connaissance des dispersions des matériaux en couches minces optiques.

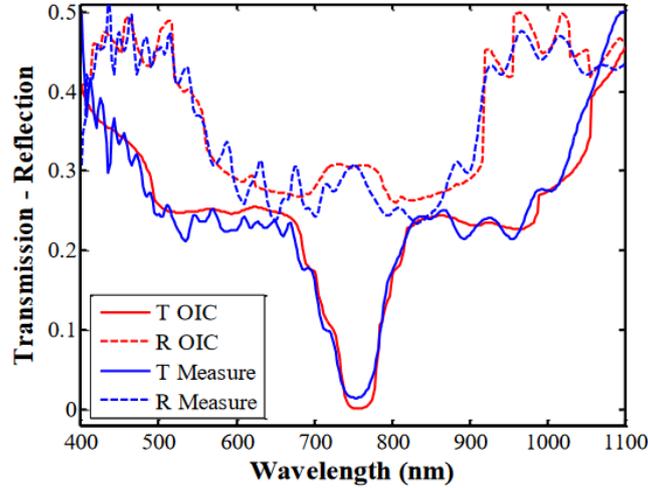


Figure 2 : Dépendance spectrale en transmission et réflexion de l'empilement défini comme une tête d'élan. En rouge la réponse théorique demandée et en bleu la courbe expérimentale obtenue

Cet exemple atypique n'a bien évidemment aucun domaine d'application mais avait pour but de montrer le niveau de la technologie actuelle. Dans la suite de ce document, nous allons nous intéresser à des fonctions optiques plus standards qui seront étudiées dans la suite de ce document.

1.1.3.1 Couche quart d'onde

Avant de définir des structures multicouches, nous allons rapidement introduire la notion de couche quart d'onde. C'est la structure la plus utilisée en couches minces optiques. Son épaisseur optique est égale au quart de la longueur d'onde de centrage λ_0 . On peut donc écrire :

$$n(\lambda_0)d = \frac{\lambda_0}{4} \quad 1.10$$

Cette couche, quand elle est déposée sur une substrat, permet de produire, à la longueur d'onde de centrage, une modification maximale de la transmission ou de la réflexion du fait des phénomènes d'interférences. Dans la suite de ce document, les couches quart d'onde à haut indice de réfraction seront notées H et celles à bas indice B. Ainsi un empilement de 4 couches alternées haut et bas indice et commençant par un matériau haut indice aura pour formule :

$$\text{Substrat} / \text{H L H L} / \text{Air} \quad 1.11$$

Il est également intéressant de noter que la combinaison de deux couches quart d'onde (2H ou 2L), correspond à une couche appelée demi-onde. Cette couche correspond à une couche absente à la longueur d'onde de centrage, c'est-à-dire qu'elle ne modifie pas le coefficient de transmission ou de réflexion à cette longueur d'onde. En revanche, n'étant demi-onde qu'à une longueur d'onde donnée, elle affectera les propriétés spectrales dans le reste du domaine spectral.

1.1.3.2 Structure antireflet

Le deuxième type de structure que nous allons voir ici est l'antireflet. Les structures antireflets se basent sur les phénomènes d'interférences afin de diminuer, voire d'annuler, la réflexion de Fresnel à un dioptre pour une longueur d'onde (ou sur une bande de longueur d'onde). Pour obtenir cet effet, l'empilement doit respecter deux conditions. Tout d'abord, comme introduit dans la section 1.1.2.1, l'empilement doit permettre de générer un déphasage à la réflexion de 180° . De plus, cet empilement doit permettre de produire deux faisceaux réfléchis (aux interfaces air/empilement et empilement/substrat) d'amplitudes égales. Dans ce cas, la combinaison d'amplitudes égales et d'un déphasage égal à 180° permet d'obtenir un phénomène d'interférences destructives totales pour le domaine de longueurs d'onde qui respecte ces conditions. Si on reprend les notations de la Figure 1, mais cette fois en considérant seulement une couche unique comprise entre l'air d'indice $n_0 = 1$ et un substrat d'indice n_S , on peut alors écrire, à partir de l'équation donnant l'amplitude de la lumière réfléchie, la condition suivante :

$$\frac{1 - n_0/n_1}{1 + n_0/n_1} = \frac{1 - n_1/n_S}{1 + n_1/n_S} \quad 1.12$$

Cette condition permet de garantir que l'amplitude réfléchie par la première interface est égale à celle de la seconde interface. La fonction antireflet est alors obtenue pour une couche quart d'onde d'indice n_1 tel que :

$$n_1 = \sqrt{n_0 n_S} \quad 1.13$$

On voit donc qu'il faut un matériau d'indice intermédiaire entre celui du milieu incident n_0 et celui du substrat n_S .

Fabriquer un antireflet de ce type (constitué seulement d'une monocouche) est cependant difficile. En effet, cela nécessite d'avoir un très vaste choix de matériaux avec une grande variété d'indices de réfraction. Une solution alternative consiste alors à utiliser des empilements de couches minces plus ou moins complexes permettant de produire une admittance complexe qui permettra de générer la fonction antireflet sur un domaine spectral

plus ou moins étendu. Des exemples de tels antireflets seront présentés dans les chapitres suivants. En particulier dans la section 3.7, nous utiliserons un type d'antireflet appelé « V-coating » qui permet, à l'aide d'un bicouche, de fabriquer un antireflet.

1.1.3.3 Miroir diélectrique quart d'onde

La structure sur laquelle nous allons nous pencher est le miroir diélectrique quart d'onde. C'est une structure essentielle utilisée en couches minces. Appelé aussi miroir de Bragg, le miroir diélectrique quart d'onde est composé de couches de matériaux alternés haut et bas indices. On peut voir que l'épaisseur physique des couches sera différente suivant le type de matériau utilisé, les couches de matériaux haut indices étant plus fines que les couches de matériaux bas indices. Contrairement à la structure antireflet, le miroir est construit afin de générer des interférences constructives à une certaine longueur d'onde : la longueur de centrage λ_0 . Cette structure produit également un effet large bande, c'est-à-dire qu'elle permet de générer un coefficient de réflexion élevé sur un large domaine spectral. Cet intervalle est appelé bande de réflexion du miroir et dépend de la longueur d'onde de centrage du miroir et du contraste d'indice des matériaux du miroir. La valeur maximale atteinte par le coefficient de réflexion dépend quant à elle du nombre de couches du miroir ainsi que du contraste d'indices des matériaux le constituant. La Figure 3 montre un miroir quart d'onde centré à $1\ \mu\text{m}$ et constitué d'un nombre impair croissant de couches alternées haut et bas indice. L'indice du matériau bas indice est constant et égal à 1,45. Celui du matériau haut indice est égal à 2,2. Nous pouvons, à partir de cette figure, mettre en évidence que la réflexion à la longueur d'onde de centrage augmente avec le nombre de couches et tend vers 1.

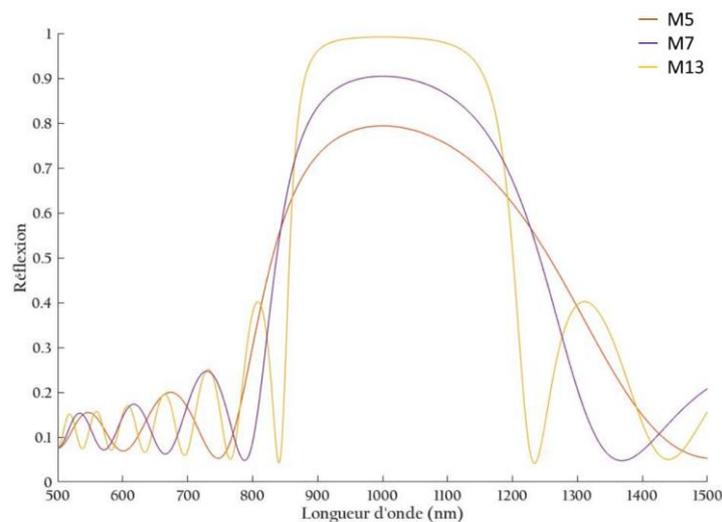


Figure 3 : Effet du nombre de couches sur les propriétés spectrales de la structure et sur les indices de matériaux utilisés. $n_S=1,52$; $n_0=1$; $\lambda_0=1000\text{nm}$; $n_H=2,2$; $n_L=1,45$

La valeur maximale du coefficient de réflexion est atteinte à la longueur d'onde de centrage du miroir. En dehors de la bande de réflexion, le composant est alors passant.

Un miroir quart d'onde est la solution optimale pour atteindre la plus grande réflexion avec le nombre de couches le plus faible. Dans la suite de ce document, nous noterons les miroirs quart d'onde : Mq avec q le nombre de couches quart d'onde contenues dans le miroir.

1.1.3.4 Filtre passe-bande étroit (Fabry-Perot)

La dernière structure que nous allons présenter ici est celle permettant d'obtenir un filtre passe-bande étroit. Diverses approches peuvent être utilisées pour obtenir cette fonction de filtrage. Il est possible d'utiliser des designs tout numériques tels que celui présenté en introduction, mais dans ce cas, la complexité de fabrication est importante. Il est également possible de fabriquer des filtres passe-bande en combinant des filtres passe-haut et passe-bas, mais cette solution est en général peu utilisée en particulier pour des filtres très étroits car elle nécessite l'emploi d'un très grand nombre de couches pour obtenir des fronts très droits. L'approche la plus classique consiste à réaliser des cavités Fabry-Perot. Cette structure se compose en général de deux miroirs diélectriques identiques séparés par une cavité. La lumière incidente sur cette cavité va alors subir un ensemble de réflexions multiples au niveau des deux miroirs et générer, par interférences multiples, un phénomène de résonance qui va se traduire par la transmission d'une fine bande spectrale pour laquelle les interférences sont produites de manière constructive.

Dans le cas de structures en couches minces optiques il est relativement aisé de produire une cavité Fabry-Perot. En effet, cette cavité peut être obtenue en fabriquant une cavité placée entre deux miroirs diélectriques quart d'onde. Compte tenu des déphasages à la réflexion des miroirs égaux à $0 [\pi]$, l'épaisseur de la cavité nécessaire pour obtenir une valeur maximale de la transmission à la longueur d'onde de centrage est donnée pour :

$$\frac{4\pi n(\lambda_0)d}{\lambda_0} = 2k\pi \quad 1.14$$

Ce qui donne

$$n(\lambda_0)d = k \frac{\lambda_0}{2} \quad 1.15$$

k étant un nombre entier, la cavité a une épaisseur optique multiple de celle d'une couche demi-onde. La formule typique d'une structure Fabry-Perot en couches minces est donc de la forme :

$$Mq / 2kL \text{ (ou } 2kH) / Mq$$

1.16

Le nombre de couches est le même pour les deux miroirs afin de garantir une transmission unitaire à la longueur d'onde de centrage. La cavité peut être constituée d'un matériau bas ou haut indice. L'avantage d'un matériau bas indice est les pertes qui sont en général plus faibles que pour un matériau haut indice et permet donc de garantir une transmission maximale à la résonance. L'utilisation d'un matériau haut indice pour la cavité présente l'avantage de minimiser la dépendance angulaire du filtre.

La Figure 4 donne la réponse spectrale obtenue pour un filtre Fabry-Perot ayant pour formule : $M5/2L/M5$. Cette structure a été conçue à une longueur d'onde de centrage (λ_0) de 1 μm . Le filtre est réjecteur dans la bande de réflexion des miroirs excepté autour de la longueur d'onde de centrage pour laquelle le filtre est passant. En augmentant le nombre de couches du miroir ou l'épaisseur de la cavité, il est ainsi possible de diminuer la largeur de la bande-passante et d'augmenter le niveau de réjection du filtre. De plus, en combinant de manière cohérente plusieurs cavités Fabry-Perot, il est également possible de produire une bande-passante avec un profil rectangulaire et une réjection encore augmentée.

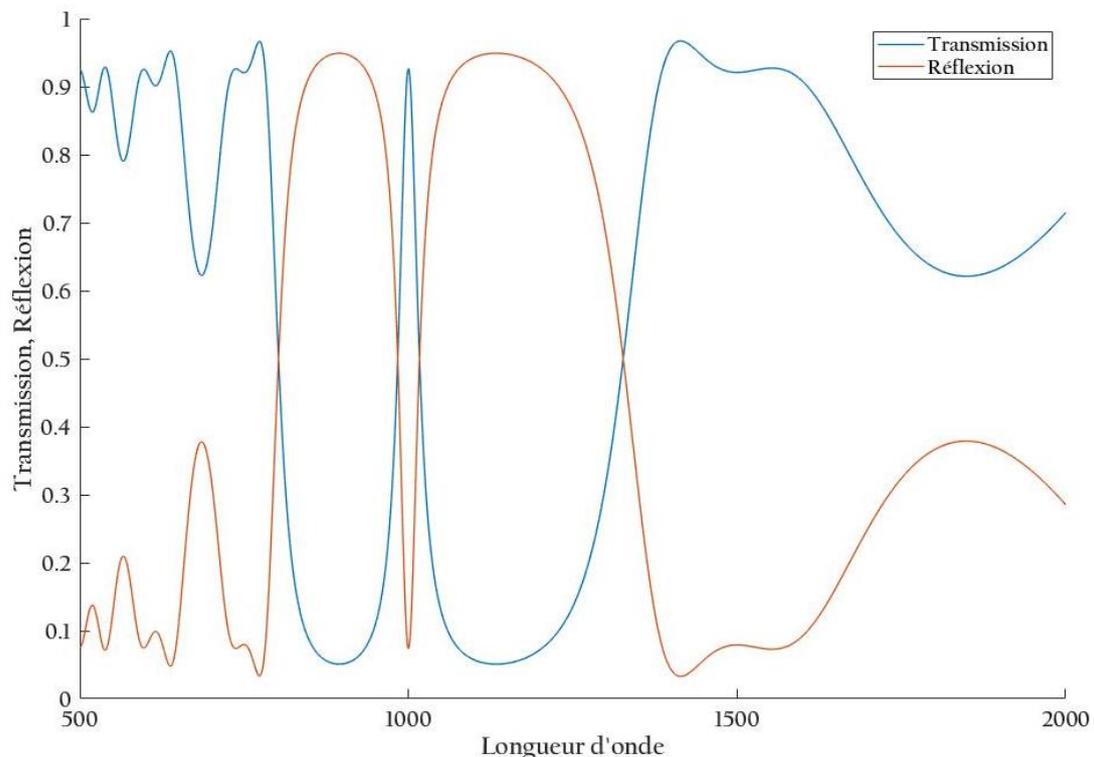


Figure 4 : Réponse spectrale typique d'un Fabry-Perot $M5/2L/M5$ avec $n_H=2,2$; $n_L=1,45$ et $n_S=1,52$

1.2 Éléments optiques diffractifs (EODs)

L'émergence de nouvelles technologies et la large gamme d'applications des lasers nécessitent de nouveaux composants permettant de modifier leurs propriétés telles que leur profil d'intensité. Les systèmes d'impression laser, le stockage optique de données ou le piégeage optique sont quelques exemples où la mise en forme du faisceau joue un rôle important [29]. L'utilisation d'éléments optiques diffractifs (EODs) aussi appelés hologrammes synthétisés par ordinateur (HSOs) est un moyen efficace de modifier le profil gaussien typique d'un faisceau laser. Les EODs sont donc des composants optiques utilisés pour la transformation d'un front d'onde incident (en général gaussien ou de forme similaire) en un front d'onde désiré. Cette modification du profil peut aller d'une simple remise en forme (carré, rond uniforme) à une mise en forme plus complexe pour l'affichage d'image ou la création de matrices de points par exemple. La méthode de fabrication traditionnelle repose sur un procédé photolithographique, donc de la micro-structuration à partir d'un substrat de verre, qui nécessite plusieurs étapes et peut prendre beaucoup de temps. Cela nécessite également une connaissance et une maîtrise des diverses étapes d'un tel procédé afin de contrôler au mieux les variations de phase transmises induites. Ce contrôle de la phase transmise est local et à des échelles micrométriques voire nanométriques. Dans des travaux récents, il a été démontré que des éléments optiques diffractifs de base peuvent aussi être enregistrés dans des couches de chalcogénures à partir d'une variation photoinduite de l'indice de réfraction [13], [30]. Cependant, en raison d'une variation limitée de l'indice de réfraction, des couches épaisses allant jusqu'à 15-25 μm étaient nécessaires pour générer le changement de phase souhaité. De plus, les structures réalisées étaient limitées à des motifs ayant des résolutions de l'ordre 30 μm . Nous avons donc cherché, dans cette thèse, à lever ces verrous technologiques.

1.2.1 Principe de fonctionnement des EODs

Les EODs permettent de convertir un front d'onde incident connu en une distribution d'intensité donnée en champ lointain (ou image). Pour cela les EODs vont modifier localement la phase du front d'onde transmis et produire l'image voulue en champ lointain (soit à l'aide d'une lentille soit à une grande distance). En effet, en champ lointain, il se produit l'équivalent d'une Transformée de Fourier (TF) du front d'onde modifié par l'EOD (l'utilisation d'une lentille convergente a un effet similaire). Ce principe est repris dans le schéma de la Figure 5.

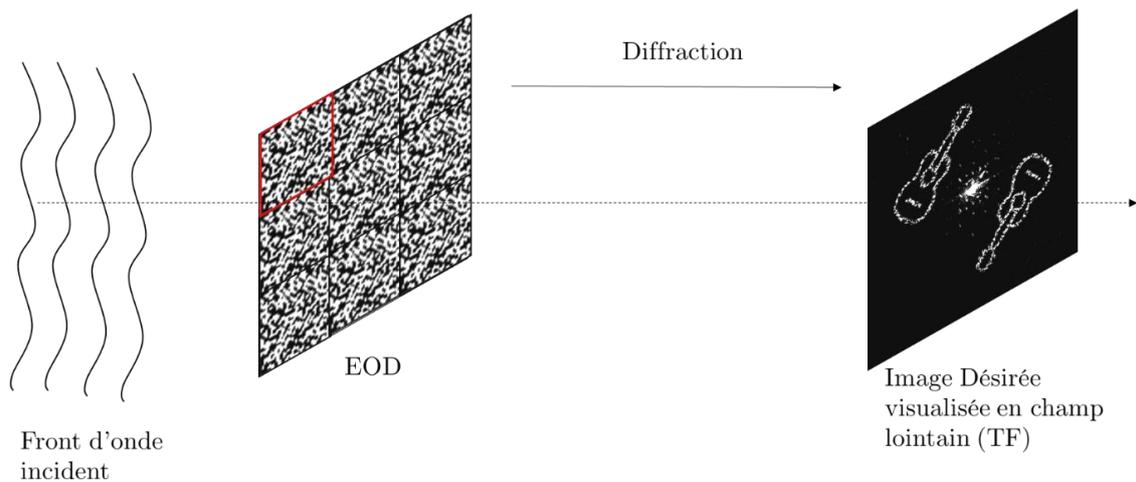


Figure 5 : Principe des Eléments Diffractif Optiques (EODs)

1.2.2 Conception du motif

Il existe plusieurs paramètres qui vont avoir un effet important sur le design du motif de l'EOD :

- la longueur d'onde qui sera utilisée pour la lecture de l'EOD,
- la taille des pixels dans un motif,
- le nombre de pixels dans un EOD,
- la distance de lecture (distance à laquelle on visualisera l'image),
- la taille d'un pixel réel sur l'image finale,
- et la distribution d'intensité du faisceau incident.

Pour trouver l'élément diffractif qui sera ensuite placé sur le chemin optique pour obtenir l'image désirée, la méthode consiste tout d'abord à définir l'image voulue. A partir de celle-ci, il existe différents algorithmes qui présentent divers avantages et inconvénients. Un des plus simples mais avec un temps de calcul très long est le « Direct Binary Search » [31]. Cet algorithme va aller modifier un à un chaque pixel compris dans l'EOD de 0 à 1 et voir si l'image obtenue est celle voulue. Plus l'EOD est grand plus le calcul le sera également. En effet, le temps de calcul de l'algorithme est proportionnel à $n \times m$ avec n le nombre de pixels sur un côté de l'EOD et m le nombre de pixels sur l'autre côté. Le second algorithme, qui est celui qui est le plus communément utilisé, est la Transformée de Fourier par Itération (IFTA) [32]–[34]. Cet algorithme est beaucoup plus rapide même si la durée de calcul est tout de même conséquente. Il se base sur le principe de fonctionnement de l'EOD. Un autre algorithme également très souvent utilisé est l'algorithme « Simulated Annealing » [35]–[37]. Celui-ci se base sur une technique de probabilité pour s'approcher du maximum global d'une

certaine fonction de mérite. Enfin, le dernier algorithme se base sur la théorie de Charles Darwin : la sélectivité naturelle par l'utilisation d'algorithmes génétiques [38], [39].

Quel que soit l'algorithme utilisé, il est en général nécessaire de fixer certaines contraintes afin de rendre le résultat robuste et compatible avec les méthodes de fabrication. Une des principales contraintes concerne la taille des motifs. En effet, on cherche en général à créer d'une part le moins de motifs et d'autre part les plus gros possibles de sorte à éliminer les pixels isolés. En effet, un pixel isolé ne permet pas d'obtenir un bord de pixel bien droit et celui-ci aura plus une forme arrondie notamment dans le cas de la photolithographie. Nous nous baserons aussi sur un faisceau incident sur l'EOD de forme gaussienne afin de simplifier le calcul.

Un autre paramètre important à prendre en compte est le nombre de pixels constituant l'EOD. En effet un sur-échantillonnage de l'EOD, i.e. une augmentation du nombre de pixels constituant le motif de l'EOD, permet de supprimer (ou au moins diminuer) certains ordres supérieurs de sorte à maximiser l'efficacité de l'ordre 1. Une technique communément utilisée consiste ainsi à définir un motif de base de taille finie et à le répliquer plusieurs fois sur l'échantillon jusqu'à obtenir la taille désirée de l'élément. Cette méthode permet de simplifier les calculs de l'algorithme puisque le nombre de pixel de départ sera celui du motif de base. L'élément obtenu par la combinaison de plusieurs motifs de base permet d'une part d'être utilisé avec n'importe quel faisceau de taille supérieure ou égale au motif de base. D'autre part, cette méthode permet d'obtenir, si plusieurs motifs de base sont illuminés par le faisceau d'incidence, une image plus lumineuse et de supprimer une partie du Speckle dû à la diffraction [40], [41]. La qualité de l'image dépend donc du nombre de motifs de base, plus ce nombre est grand, meilleure sera l'image (cf. Figure 6).

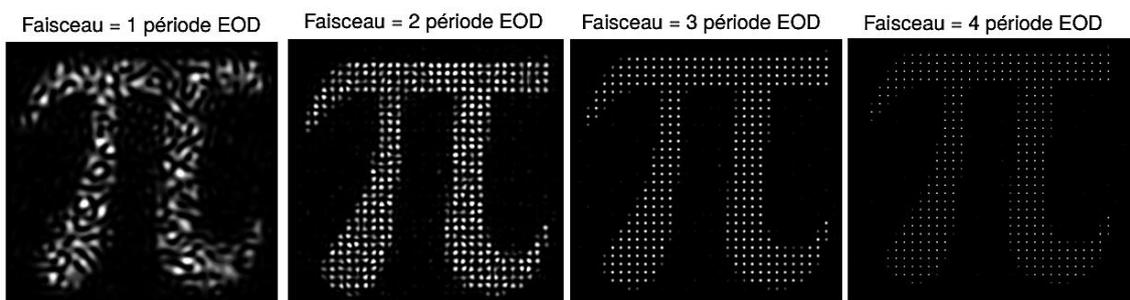


Figure 6 : Image dans le plan de sortie pour un EOD répliqué (Télécom Bretagne)

Il existe de nombreuses sociétés commercialisant ce type d'élément tels que Holoeye, Finisar ou encore Laser Components. Leur gamme de produits comprend des éléments de mise en forme de faisceau, des séparateurs de faisceaux ou encore des diffuseurs (homogénéisateurs). En général l'efficacité de diffraction obtenue est dépendante du modèle, du nombre de niveaux

de phase, de matériaux (résines, substrats) utilisés. Celle-ci se situe globalement entre 75% et 95%. Nous pourrions donc considérer, en première approximation, que pour une efficacité de diffraction de plus de 75% notre élément est de bonne qualité (soit moins de 25% restant dans l'ordre 0).

1.3 Verres de Chalcogénures

Il existe une très grande variété de matériaux pouvant être utilisés lors de la fabrication d'éléments optiques (filtres interférentiels ou éléments diffractifs). Des oxydes aux métaux, le choix de matériaux est très vaste et dépend sur l'application demandée, en particulier le type de fonction optique recherché, le domaine spectral... Cette thèse vise à montrer la faisabilité d'intégrer des couches à base de verres de chalcogénures dans des éléments optiques multicouches. L'intérêt réside principalement dans deux propriétés de base de ces matériaux : leur large domaine de transparence du visible à l'infrarouge et les variations de propriétés optiques photoinduites dans ces couches. Même si nous nous sommes restreints dans cette thèse à des démonstrations dans les domaines visibles et proches infrarouge du fait de la disponibilité des moyens de caractérisation, l'ensemble des résultats qui seront présentés sont transposables à une plus grande partie du domaine de l'infrarouge. Les verres de chalcogénures sont étudiés depuis plusieurs décennies [42]–[47] mais ce n'est que depuis une vingtaine d'années qu'ils ont pris une place très importantes dans des applications commerciales notamment dans des secteurs comme le médical [48], les télécommunications [1], [49], [50], les détecteurs [51]–[53] ou encore l'électronique. Ils peuvent d'ailleurs être dopés [54]–[56] ce qui permet d'en modifier l'utilisation. Cette partie a pour but d'introduire les spécificités de ces verres ainsi que de donner un aperçu des différentes propriétés et applications possibles avec ceux-ci.

1.3.1 Composition de base des verres de chalcogénures

Les verres de chalcogénures sont une famille de verres amorphes composés d'éléments dits chalcogènes. Ces éléments se situent dans la 6^e colonne du tableau périodique des éléments (cf. Figure 7, colonne surlignée en rouge). Cette famille d'éléments contient le soufre (S), le sélénium (Se), le tellure (Te), le polonium (Po) et l'ununhexium (Uuh). Les verres de chalcogénures sont l'association entre ce type d'éléments et d'autres éléments proches dans le tableau périodique (cf. surlignés en bleu).

Figure 7 : Tableau périodique des éléments avec en surlignés les éléments chalcogènes (surligné en rouge) et autres éléments permettant la fabrication de verres de chalcogénures (en bleu)

De par le grand nombre d'éléments pouvant être associés aux chalcogènes, il existe une très large gamme de verres de chalcogénures. Chacun de ceux-ci avec des caractéristiques optiques différentes. Dans le Tableau 1, on retrouve quelques compositions classiques de verres de chalcogénures. On peut voir que l'ensemble de ces verres présente un indice de réfraction élevé. Ces matériaux pourront donc être utilisés comme matériau haut indice dans un empilement. On peut voir ici que selon la composition, l'indice du matériau va changer (passer de 2,9 à 2,68 à $1\ \mu\text{m}$ dans le cas de l' $\text{As}_x\text{Se}_{100-x}$). Ces indices peuvent être encore plus élevés, notamment lorsque la composition intègre du germanium. En revanche, la limite basse de transparence est en général décalée vers les grandes longueurs d'onde.

Matériaux	Indice de réfraction à $1\ \mu\text{m}$	Indice de réfraction à $3\ \mu\text{m}$
$\text{Ge}_{20}\text{Se}_{80}$ [57]	2,49	2,42
$\text{As}_{20}\text{Se}_{80}$ [57]	2,68	2,58
$\text{As}_{40}\text{Se}_{60}$ [58]	2,90	2,77
$\text{Ge}_{20}\text{As}_{20}\text{Se}_{60}$ [57]	2,60	2,51
$\text{Ge}_{10}\text{As}_{23,4}\text{Se}_{66,6}$ [58]	2,67	2,60
$\text{As}_{40}\text{S}_{60}$ [59]	2,48	2,42

Tableau 1 : Tableau regroupant quelques verres de chalcogénures connus avec quelques indices de réfraction associés trouvés dans la littérature

Même s'il existe un très grand nombre de compositions possibles, il est néanmoins possible de trouver certains points communs à l'ensemble de ces verres, à savoir :

- une transparence dans l'infrarouge [44], [60],
- un indice de réfraction linéaire et non linéaire élevé (cf. Tableau 1) [61],
- une modifications en général importante des propriétés notamment optiques quand ils sont soumis à un rayonnement optique et/ou un traitement thermique [62], [63].

En effet, les verres de chalcogénures sont particulièrement connus pour leur transparence dans l'infrarouge et leur opacité dans les longueurs d'onde du visible les plus courtes, ce qui leur donnent souvent un aspect métallique ou opaque. Dans la littérature, il est possible de trouver un nombre d'études très important concernant les propriétés et caractéristiques thermiques [62], [64], optiques [65] et électriques [55], [56] de ces verres. Leur transparence sur une gamme spectrale aussi grande et leurs propriétés optiques et mécaniques en font des matériaux particulièrement intéressants pour la fabrication de filtres optiques et en particulier en couches minces optiques.

1.3.2 Verres de chalcogénures aux propriétés photosensibles

Dans cette étude, nous nous sommes en particulier intéressés aux verres de chalcogénures présentant des caractéristiques photosensibles [66]. Que ce soit pour en modifier la structure [67]–[69] ou en modifier les propriétés opto-géométriques internes [47], [70], [71], ces matériaux possèdent la capacité d'être modifiable sous illumination (continue ou non) [72]. La photosensibilité de ces verres est associée à une recombinaison des liaisons chimiques sous l'action d'une source lumineuse proche du gap optique. Les mécanismes en question se basent en général sur la création de paires électron-trou qui provoquent des changements des liaisons de valences de certains atomes et créent des défauts dans la matrice vitreuse.

Nous pouvons citer un certain nombre de compositions standards qui sont connues dans la communauté pour présenter ce type de propriétés photosensibles : As_2S_3 [66], GeAsS [71], GeSbSe [74], GeAsSe [75], [76] ou encore GaLaS [77]. La liste précédente des verres de chalcogénures avec cette remarquable capacité à être photosensible est cependant non exhaustive. En effet selon la composition, il sera possible de jouer sur différentes propriétés optiques, thermiques, mécaniques... et les propriétés de photosensibilité seront plus ou moins importantes [76]. Comme l'illustre la littérature très étoffée dans le domaine, les effets photoinduits vont de la modification d'indice de réfraction linéaire et du coefficient d'absorption, à celle de l'indice de réfraction non-linéaire ou à la modification de volume (expansion [78] ou contraction [79]). Cela se traduit au travers de différents types de

phénomènes physiques collatéraux comme le photonoircissement [80], [81], photoblanchiment [82] voire même les deux [83] ou encore la biréfringence photoinduite [84].

Il est important de noter que ces effets photoinduits peuvent être significativement améliorés dans les couches minces déposées par évaporation par rapport aux matériaux bruts. En effet les conditions de dépôt lors de la condensation d'une vapeur sur un substrat ne donnent pas les mêmes liaisons que celles présentes dans les matériaux de base produits lors de la fabrication des verres [85]. Les couches présentent en général une structure métastable, qui est à l'origine des propriétés photoinduites observées.

Alors que dans cette thèse, nous allons étudier comment ces propriétés photoinduites peuvent être utilisées à notre avantage pour la fabrication d'éléments optiques spatialement structurés, l'utilisation de tels matériaux lors de la fabrication de filtres optiques peut cependant se révéler problématique. En effet ces propriétés photosensibles peuvent devenir un inconvénient comme dans le cas de lasers haute puissance [86], [87]. C'est pourquoi plusieurs recherches vérifient et étudient la stabilité des dépôts ainsi que des effets photoinduits dans les couches minces faites à partir de ces matériaux [85], [88].

1.3.3 Exemples d'applications de verres de chalcogénures

Nous allons dans cette partie, répertorier diverses applications obtenues par l'utilisation de verres de chalcogénures. Cette liste d'applications ne sera pas donnée de façon exhaustive. En effet, le nombre de domaines et d'applications dans lesquels les verres de chalcogénures sont utilisés est grand et en augmentation. Grâce à une brève description de certaines de ces possibles applications nous verrons que les verres de chalcogénures, même s'ils sont étudiés depuis des années, ont encore un vaste potentiel.

Une des catégories de verres de chalcogénures ayant un large domaine d'application sont les matériaux à changement de phase [89], [90]. Ces matériaux sont utilisés par exemple dans les disques du type CD ou DVD et les cellules mémoires Numonyx. Connus dans l'industrie comme mémoire à changement de phase (PRAM) [91], ces mémoires ont pour but de devenir le remplacement des mémoires flash. Le principe de ce type de mémoire est que sous une action physique (généralement thermique), le verre de chalcogénures bascule localement de sa phase cristalline à sa phase amorphe. La lecture de ce passage se fait alors de manière optique ou électrique. En effet, le changement local de phase dans le matériau entraîne une modification des propriétés internes du matériau (indice, absorption, résistivité ...).

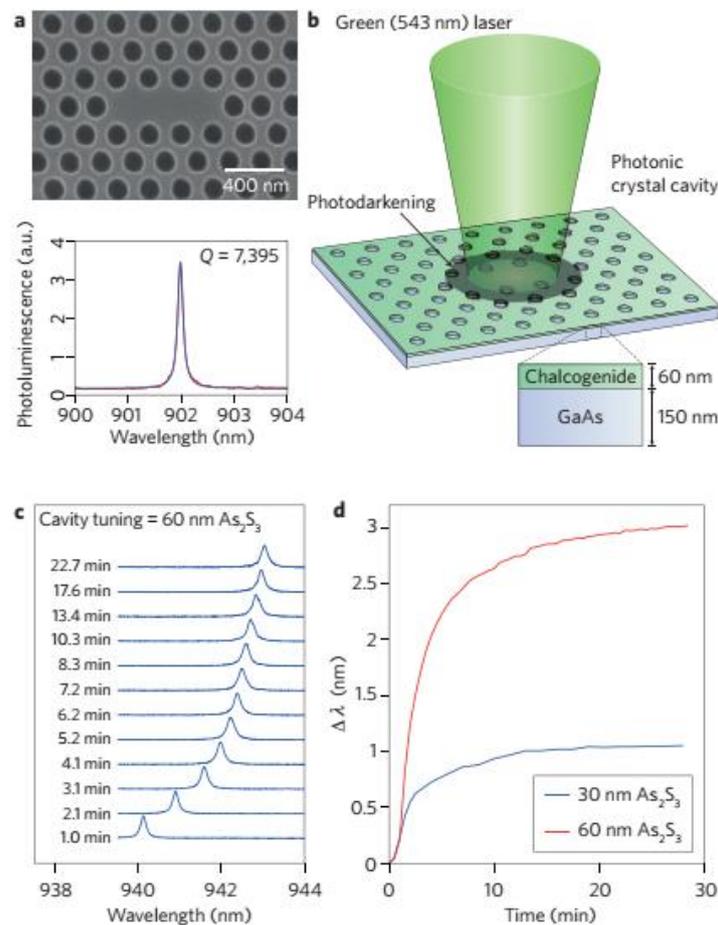


Figure 8 : Exemple d'utilisation d'une couche d' As_2S_3 pour sélectionner la fréquence de résonance d'une cavité d'un cristal photonique [92], [93]

D'autres applications de ces matériaux concernent l'accordabilité de structures optiques. Par exemple, la Figure 8 montre que la photosensibilité d'une couche de 30 à 60 nm d' As_2S_3 peut être utilisée pour modifier la fréquence de résonance d'une cavité de GaAs d'un cristal photonique de 3 nm. Cela permet se positionner sur les puits quantiques intégrés au cristal. D'autres applications de l'effet de « *photonoirsissement* » dans ces matériaux et du changement d'indice de réfraction associé comprend la fabrication de guides [94], [95], de réseaux de Bragg dans ces guides, ou de cavités à haut facteur de qualité Q (125 000) dans des structures à cristaux photoniques [96].

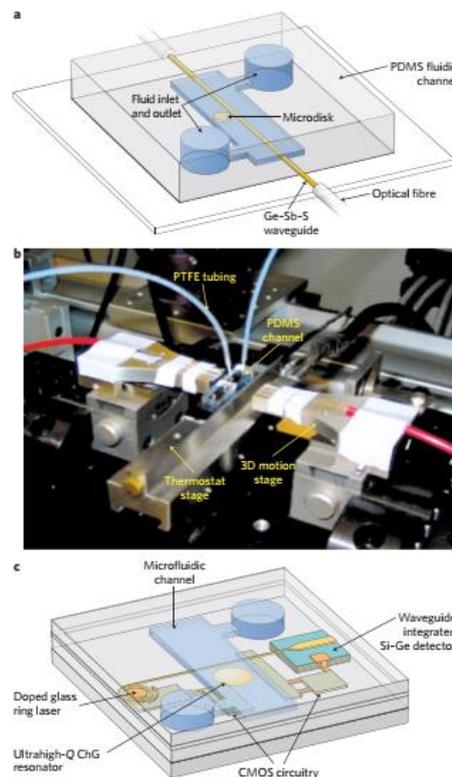


Figure 9 : Structure et test d'un détecteur microfluidique à base de chalcogénures [97]

D'autres applications des verres de chalcogénures ont récemment vu le jour comme pour la détection de produits chimiques qui s'est grandement développée ces dernières années. Les verres de chalcogénures sont utilisés comme guides d'onde plans et exploitent la spectroscopie d'onde évanescente [98] ou de Raman [99]. L'utilisation des verres de chalcogénures, dans ce type de technologie, permet une diminution de la taille des capteurs ainsi qu'une augmentation de leur sensibilité et de leur répétabilité. Cette technologie donne également la possibilité d'intégrer dans un seul bloc : la source (émetteur), les détecteurs et l'analyseur microfluidique. La Figure 9 est un schéma élargi d'un détecteur microfluidique intégré à base de verres de chalcogénures (analyseur microfluidique). Cette figure montre le système entier ainsi que la réalisation expérimentale. Pour accéder à la sensibilité la plus haute, une transparence maximale dans l'infrarouge est en générale requise ce qui fait des verres de chalcogénures les matériaux idéaux pour ce type d'applications. La fonctionnalisation de la surface du résonateur par rapport à l'analyse permet une sélectivité accrue par les liaisons préférentielles existantes avec les espèces à la surface du résonateur (par exemple dans un cas médical des anticorps peuvent être placés à la surface). Cette flexibilité de détection permet avec une même puce de détecter plusieurs espèces. L'utilisation de la solubilité des ions métalliques dans une matrice de chalcogénures vitreuse (propriété chimique et non optique) ouvre les portes à de nouveaux moyens de détection pour ces matériaux [100].

Ces dernières années, le nombre d'applications des verres de chalcogénures pour la fabrication de systèmes et de détecteurs est en perpétuelle augmentation. Cela montre que même s'ils ont commencé à être étudié dans les années 70, ces matériaux offrent de nouvelles opportunités qui peuvent permettre de débloquer certains verrous technologiques fixés par les matériaux classiques. C'est dans cette optique qu'au cours de cette thèse nous avons voulu valider l'utilisation de certains verres de chalcogénures pour la fabrication d'éléments optiques complexes spatialement structurés pour les domaines du visible et de l'infrarouge.

Chapitre 2

Dépôt et caractérisation de matériaux chalcogénures en couches minces optiques

2.1 Dépôt de couches minces optiques

2.1.1 Introduction aux dépôts

Il existe à ce jour de nombreuses techniques de dépôt de couches minces optiques. Elles reposent principalement sur les technologies du vide et se divisent en deux grandes catégories : chimiques ou physiques. Ces différentes techniques permettent de déposer de fines couches avec des épaisseurs de quelques nanomètres à quelques micromètres sur un substrat nu voire préalablement traité.

Le choix de la technique de dépôt repose sur un ensemble de critères physiques ou chimiques tels que : l'épaisseur de la couche, sa résistance mécanique ou encore le type de matériau voulu. Dans le cas de monocouches de très grande pureté chimique, certaines techniques vont permettre d'obtenir des couches avec des épaisseurs très fines et uniformes comme par exemple avec les techniques d'ALD (Atomic Layer Deposition) [101], [102]. Dans le cas où l'épaisseur requise ne présente pas de très forte précision des processus comme le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) peuvent alors être utilisées et présentent l'avantage d'atteindre des vitesses de dépôt élevées. Dans le cas de dépôt de structures multicouches, les

techniques de dépôt physique sont en général préférées car elles permettent d'obtenir des empilements complexes. Ces différentes techniques sont utilisées aussi bien dans l'industrie que dans la recherche pour un vaste domaine d'applications telles que : le dépôt de revêtements réfléchissants ou antireflets (lunetterie), d'isolants et semi-conducteurs dans les circuits intégrés (électronique), d'aluminium (emballages alimentaires). Ces techniques peuvent aussi être utilisées dans des domaines grand public tels que l'art comme le montrent certaines des œuvres de Larry Bell artiste sculpteur contemporain [103].

2.1.2 Techniques de dépôts classiques

2.1.2.1 Dépôt chimique

Lors d'un dépôt chimique, un fluide ou gaz précurseur subit une réaction chimique sur une surface laissant alors une couche solide sur celle-ci. Dans cette catégorie on compte donc les procédés de revêtement de surface, l'enduction centrifuge aussi appelée spin-coating [104], les dépôts chimiques en phase vapeur ou encore les dépôts de couche atomique (ALD). Le dépôt chimique en phase vapeur est couramment utilisé dans l'industrie des semi-conducteurs. De nombreuses technologies sont basées sur le principe de dépôt chimique en phase vapeur telles que l'épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (EPVOM)[105], la technique de croissance cristalline [106], [107], ou le dépôt par bain chimique (CBD) [108]. Les dépôts par enduction centrifuge sont très largement utilisés dans certains domaines de l'industrie et de la recherche nécessitant des couches de résine photosensible (photolithographie). Ces techniques ne sont pas souvent utilisées dans le domaine des couches minces optiques car elles ne permettent pas le dépôt d'un grand nombre de couches.

2.1.2.2 Dépôt physique

Le dépôt physique, contrairement au dépôt chimique, se base sur des procédés mécaniques, électromécaniques ou thermodynamiques pour produire une couche mince à partir d'un solide. Le dépôt physique en phase vapeur (Physical Vapor Deposition, PVD) est le type de procédé le plus couramment utilisé pour la production de couches minces optiques. De manière générale, le dépôt s'effectue dans une chambre hermétique sous vide à une pression inférieure à 10^{-5} mbar. Le nombre de technologies en PVD n'a cessé de croître et la complexité de celles-ci aussi par la même occasion. Cependant, de toutes les différentes catégories de dépôt physique en phase vapeur, la plus connue et la plus souvent utilisée est l'évaporation dite thermique. En effet c'est la technique la plus simple, la moins coûteuse et qui permet le plus de flexibilité et d'adaptation que ce soit par rapport au matériau employé ou à la taille des échantillons par exemple. Cette technique de dépôt repose sur l'évaporation d'un matériau par un apport de chaleur. Les molécules en phase gazeuse vont alors se déplacer en ligne droite et se condensent sur le premier matériau qu'elles vont rencontrer (le substrat). La

nécessité d'une chambre hermétique sous vide vient des matériaux que l'on peut vouloir déposer. En effet, dans l'air, la quantité d'énergie nécessaire à leur évaporation serait très supérieure à ce qu'il est possible de produire. C'est par exemple le cas de certains métaux. Diminuer la pression autour du matériau à évaporer va permettre de diminuer la quantité d'énergie nécessaire à cette évaporation mais aussi d'augmenter le libre parcours moyen. Cet apport de chaleur peut se faire de différentes manières : par chauffage direct du matériau (chauffe du creuset) ou encore par des canons à électrons. Dans ce second cas, le faisceau d'électrons va aller bombarder la matière jusqu'à évaporation. A cette technologie simple se sont vu rajouter des assistances pour déposer des couches plus denses et plus résistantes : assistance à ions ou à plasma.

On peut aussi obtenir le dépôt de matériaux solides grâce à un faisceau d'ions très énergétiques qui vont alors non pas évaporer mais pulvériser, la matière provenant de la cible et permettre de la déposer, sous forme de couche mince, sur le substrat.

2.1.3 Dépôt Physique par évaporation à l'Institut Fresnel

L'institut Fresnel est un acteur historique dans la réalisation (du design à la fabrication) de composants à base de couches minces optiques via des technologies de dépôt physique. Ces technologies permettent en effet la réalisation de composant pouvant comprendre un grand nombre de couches et donc de réaliser des filtres optiques interférentiels complexes.



Figure 10 : Salle blanche et machines d'évaporation de la plateforme technologique de l'Espace Photonique

Le laboratoire (en particulier l'équipe dans laquelle ont été effectués ces travaux, l'équipe RCMO) possède un espace réservé dans lequel se situent différentes machines de dépôt physique. Cet espace, connu sous le nom d'Espace Photonique (Figure 10), est une plateforme technologique composée de 5 machines de dépôt de couches minces optiques. Cet espace de travail est situé en salle blanche permettant le contrôle de la qualité de l'air, de l'humidité et de la température interne. Ceci permet le développement de filtres optiques répondant aux

critères de propreté tels que ceux requis dans le développement de composants pour le spatial. Trois de ces machines sont basées sur des techniques d'évaporation par canons à électrons et deux sur le principe de la pulvérisation.

Les machines sont les suivantes :

- Une machine de dépôt par canon à électrons sans assistance (BAK 600 de Balzers)
- Deux machines de dépôt par canon à électrons avec assistance plasma (SYRUSpro 710 de Bühler-Leybold Optics)
- Une machine de dépôt par pulvérisation ionique assistée par un canon à ions (DIBS de Teer Coatings)
- Une machine de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron assistée par plasma (HELIOS de Bühler-Leybold Optics)

Le point de départ de cette thèse consistait à déposer des couches minces optiques à base de verres de chalcogénures et de les introduire dans des composants multicouches pour produire des composants optiques spatialement structurés. Il a été démontré que ces méthodes de dépôt étaient compatibles avec la fabrication de couches minces photosensibles [21], [47].

Dans le cadre de cette thèse, nous avons donc retenu l'évaporation par canon à électrons comme technique de dépôt. Cette technique permettant une grande souplesse pour ce qui est des paramètres de dépôts en fonction du matériau, elle semblait donc être la technique la plus intéressante dans notre cas. Nous avons donc principalement travaillé avec la BAK 600 et une SYRUSpro 710. Le fonctionnement de ces deux machines va donc être présenté en détail par la suite.

2.1.3.1 BAK 600

La Balzers BAK600 est un bâti de dépôt qui fonctionne par évaporation par canon à électrons (*Electron Beam Physical Vapor Deposition*, EBPVD). A l'intérieur du bâti se trouve à gauche et à droite une cible (creuset), un canon à électrons et un cache. Un peu plus haut se situe le porte substrat et la microbalance à quartz. Ce bâti a été remis en marche après de nombreuses années sans utilisation et le procédé de dépôt a alors été contrôlé sous Labview [21].

Avant chaque dépôt, le vide est fait au sein de l'enceinte par une pompe primaire à palette qui permet d'atteindre un vide de quelques 10^{-3} mbar. Cette pression atteinte, la pompe secondaire (une pompe à diffusion) prend le relai et pousse le vide jusqu'à 5.10^{-7} mbar, pression généralement mesurée après 24 heures de pompage. Une basse pression assure, en particulier, la bonne qualité des couches déposées. Le procédé de dépôt débute alors. Tout d'abord le filament de tungstène compris dans le canon à électrons est porté à haute température, puis les électrons sont accélérés par un champ électrique et magnétique (bobines). Le positionnement, balayage du creuset, fréquence et même la taille du faisceau sont contrôlés

par ces champs. Au contact avec le matériau l'énergie cinétique des électrons se transforme en énergie thermique qui va produire une évaporation du matériau. Le nuage de matière produit se distribue selon une plume d'évaporation qui va définir la distribution locale de densité de matière. Cette matière gazeuse va se condenser sur le substrat, le porte-substrat et une microbalance à quartz. Celle-ci permet en particulier de relever les paramètres de dépôts : vitesse de dépôt et épaisseur du matériau déposé. Lorsque l'épaisseur de consigne est atteinte, le dépôt du matériau en question s'arrête.

2.1.3.2 Bühler SYRUSpro 710

Début 2018, nous avons fait l'acquisition d'une nouvelle machine de dépôt du type SYRUSpro 710 (Figure 11).



Figure 11 : Machine de dépôt avec assistance plasma SYRUSpro dans l'espace photonique (à gauche) et vue interne du bâti de la machine SYRUSpro (à droite)

Elle fonctionne comme la machine précédente sur le principe de l'évaporation par canons à électrons et on retrouve donc le même type de composants que sur la BAK 600. Parmi les principales différences on peut noter le porte-substrat qui n'est pas un plateau plan mais une calotte permettant le dépôt sur un grand nombre d'échantillons avec une uniformité de l'ordre de 1%. Cette machine ne possède qu'un seul canon à électrons et une roue à creuset avec 15 emplacements possibles. On peut aussi voir la présence d'une assistance plasma au centre de la machine.

Un faisceau d'électrons va aller chauffer le matériau placé au préalable dans un creuset. Cette machine peut cependant, contrairement à la BAK 600, être opérée avec une assistance plasma. Le fonctionnement global reste le même que précédemment. La source d'assistance plasma

vient s'ajouter au processus d'évaporation grâce à un bombardement ionique hautement énergétique au niveau du substrat. Ceci permet d'augmenter durablement la qualité des surfaces traitées du point de vue de l'adhérence, de la dureté et de la densité des couches évaporées. Le plasma est produit grâce à une cathode en borure de lanthane (LaB_6) et un ensemble de champs électriques et magnétiques qui vont ioniser le gaz mis en contact avec les électrons générés. Cependant, comme expliqué par la suite, nous n'utiliserons pas l'assistance dans le cas de multicouches contenant des matériaux photosensibles. En effet le spectre d'émission du plasma est dans le bleu. Afin d'éviter toute modification du matériau non voulue, l'assistance plasma dans cette machine ne sera pas utilisée.

Les paramètres de dépôt de la machine sont contrôlés par un logiciel développé par la société Bühler/Leybold Optics. Le contrôle de l'épaisseur des couches et des vitesses de dépôt peut être obtenu soit à l'aide de microbalances à quartz soit au travers d'un contrôle optique in-situ. De manière générale, l'épaisseur des couches des empilements a été contrôlée à l'aide d'un système de contrôle optique du type Bühler OMS 5000. Cette méthode consiste à mesurer à une longueur d'onde l'évolution de la transmission pendant le dépôt.

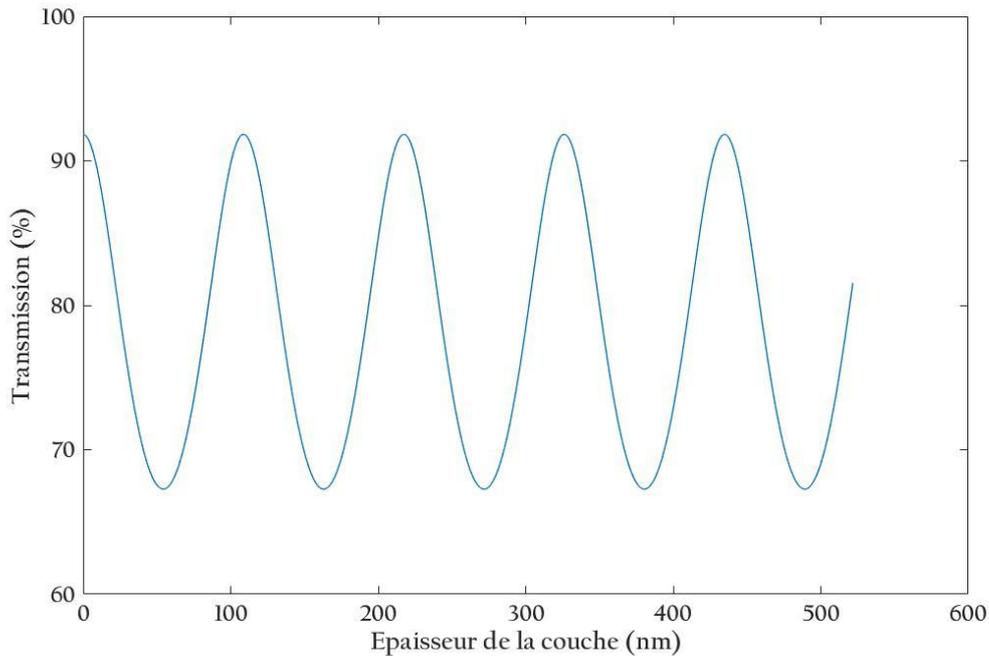


Figure 12 : Evolution de la transmission en fonction de l'épaisseur de matériau déposé $n=2,3$ et $n_s=1,5$

Nous avons illustré sur la Figure 12 l'évolution de la transmission d'une monocouche d'indice 2,3 sur un substrat d'indice 1,5 en fonction de l'épaisseur de cette couche. Du fait des phénomènes d'interférences, il se produit une modulation périodique de la transmission. On peut montrer que les minima de la transmission sont obtenus pour une épaisseur optique de la couche quart d'onde tandis que les maxima sont obtenus pour une épaisseur optique de la couche demi-onde. A partir de ce constat, on peut définir deux type de méthodes de contrôle optique :

- Un contrôle optique du type « turning point monitoring » [109] pour lequel le critère d'arrêt du dépôt de la couche repose sur une annulation de la dérivée. C'est le contrôle en général utilisé pour les structures composées uniquement de couches quart d'onde tels que des miroirs diélectriques ou de filtres Fabry-Perot. Il est à noter que cette méthode est connue pour permettre de réaliser une compensation partielle des erreurs de dépôts pour chaque couche.
- Un contrôle du « trigger point monitoring » [110], [111] pour lequel le critère d'arrêt du dépôt de la couche repose sur une valeur de la transmission prédéterminée pour chacune de couches de l'empilement. Cette méthode est utilisée pour le contrôle de structures complexes non quart d'onde. Une version plus élaborée utilisant les valeurs de extrema est en général utilisée afin de prendre en compte et compenser les erreurs de dépôts sur les couches précédentes.

Dans le cadre des développements réalisés au cours de cette thèse, l'un ou l'autre type de méthode a été utilisé en fonction de la structure de l'empilement à déposer.

Enfin, il est important de mentionner que, dans le cadre de cette thèse, cette machine a exclusivement été réservée pour le dépôt de matériaux dits exotiques tels que les chalcogénures. En effet l'utilisation d'une machine spécialement dédiée pour ce type de dépôt a permis d'éviter des problèmes de contamination très courants dans le cas de dépôts de matériaux divers au sein d'une même machine.

2.2 Outils de Caractérisation des dépôts

Le design de structures multicouches et leur contrôle pendant le dépôt nécessitent des connaissances a priori des propriétés des matériaux utilisés, en particulier leurs dispersions d'indice qui sont fonctions des paramètres de dépôt. Afin de caractériser précisément ces dispersions d'indice, nous avons réalisé des dépôts de structures simples à savoir des monocouches pour les matériaux avec un indice de réfraction élevé c'est-à-dire bien plus grand que celui du substrat ($n > 1,7$). Pour l'étude de matériaux avec des indices de réfraction proches de ceux du substrats ($n < 1,7$) nous avons réalisé des structures bicouches constituées d'une couche d'un matériau haut indice connu sur laquelle une couche du matériau bas indice à caractériser a été déposée.

2.2.1 Spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050

Après dépôt, que ce soit pour l'étude des propriétés optiques des matériaux ou des empilements déposés, nous avons utilisé un spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050 (Figure 13).



Figure 13 : Salle de métrologie de la plateforme technologique de l'Espace Photonique intégrant le spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050

Un spectrophotomètre est un appareil qui va mesurer le flux transmis ou réfléchis par un échantillon. On peut calculer la transmission ou la réflexion d'un échantillon grâce à l'équation :

$$T \text{ ou } R = \frac{I_{t/r}(\lambda) - I_{0\%}(\lambda)}{I_{100\%}(\lambda) - I_{0\%}(\lambda)} \quad 2.1$$

Où $I_{t/r}(\lambda)$ est le flux transmis ou réfléchi à une longueur d'onde par l'échantillon, $I_{100\%}(\lambda)$ et $I_{0\%}(\lambda)$ sont les flux transmis ou réfléchis maximale respectivement sans échantillon et quand le faisceau incident est bloqué (noir) mesurés à une longueur d'onde λ .

Le spectrophotomètre présent dans nos locaux est composé de deux sources lumineuses (Deutérium et Tungstène) permettant des études de l'UV au proche infrarouge. : de 200 nm à 2500 nm. Le spectrophotomètre est basé sur un dispositif dispersif de type Czerny Turner. C'est-à-dire que le faisceau polychromatique émis va ensuite passer par un miroir parabolique, un réseau de diffraction et un autre miroir parabolique afin de permettre la sélection de la longueur d'onde voulue. En effet la rotation du réseau de diffraction va produire la sélection spectrale de la lumière lors de sa traversée de la fente de sortie. Il est aussi composé de plusieurs modules permettant de réaliser des mesures en transmission, en réflexion ou les deux. En fonction de l'application et de la précision de la mesure voulue, un module est plus approprié qu'un autre. Le module en transmission permet avec ses 3 photo détecteurs de faire

des mesures en transmission avec une précision absolue de l'ordre de 10^{-3} et une précision relative de l'ordre de 10^{-4} .

2.2.2 Profilomètre Optique Zygo NewView 7300

Un profilomètre est un outil de caractérisation de surface. Il permet en effet de mesurer le profil d'une surface pour en évaluer la rugosité ou étudier des structures et aspérités.



Figure 14 : Profilomètre optique Zygo NewView 7300 de la plateforme technologique de l'Espace Photonique

Dans cette thèse nous avons utilisé un profilomètre optique Zygo NewView 7300 (Figure 14) pour effectuer des mesures de la topographie de la surface avec une très grande précision. C'est un profilomètre optique matriciel. En effet, une caméra CCD va permettre de réaliser l'image intégrale de toute la surface en une seule mesure. Ensuite une série de mesure sera prise afin d'obtenir les informations sur la hauteur des éléments mesurables sur l'échantillon. Cette méthode permet d'obtenir une vitesse d'acquisition beaucoup plus grande que celle des profilomètres à balayage (optique ou mécanique).

Le principe de fonctionnement d'un tel profilomètre est basé sur différents principes physiques : la microscopie confocale et l'interférométrie en lumière blanche par exemple. Tout d'abord on place l'échantillon sur une table à coussin d'air mobile selon 5 degrés de libertés (X, Y, Z et deux angles).

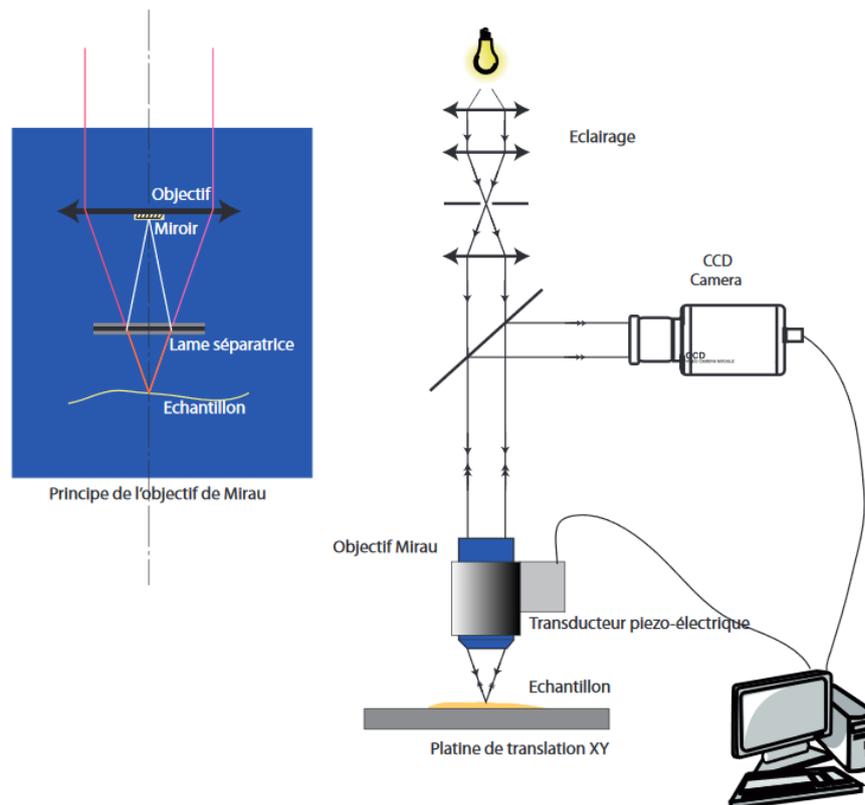


Figure 15 : Principe du profilomètre optique matriciel [112]

Le principe est schématisé dans la Figure 15. Un faisceau de lumière blanche qui est mis en forme et est focalisé sur un objectif de Mirau. L'objectif de Mirau contient une lame à faces parallèles qui permettra de séparer le faisceau initial en deux. Un des deux faisceaux sert de faisceau de référence. Les positions de la lame séparatrices et du miroir sur lequel est réfléchi le faisceau de référence permettent de modifier les figures d'interférences observables sur la caméra CCD. Lors de la mesure, le miroir est légèrement déplacé en dehors des points de focalisation afin d'obtenir des informations complémentaires sur l'échantillon. Un logiciel traite ensuite toutes les images correspondant aux différents interféromètres et calcule la hauteur en chaque point de l'image. Le relief de l'objet se traduit par un contraste interférentiel lié aux différences de trajet entre deux points qui n'ont pas la même hauteur.

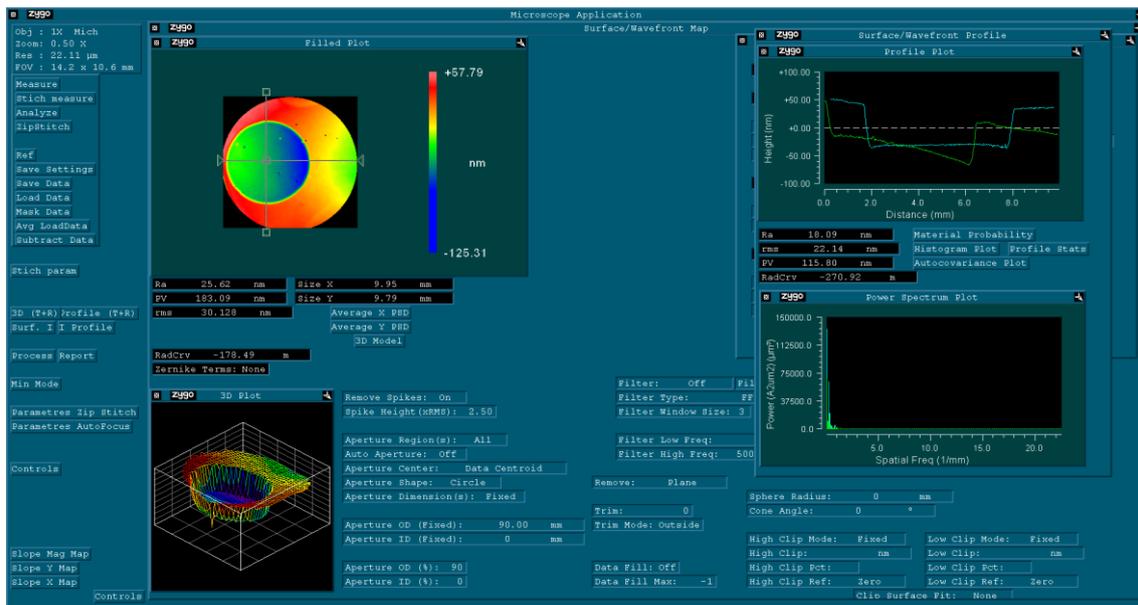


Figure 16 : Interface d'utilisation du profilomètre optique Zygo NewView utilisé pour la mesure d'un échantillon d' As_2S_3

Dans la Figure 16 on peut retrouver l'interface du logiciel qui permet le contrôle et l'utilisation du profilomètre optique présent dans l'Espace Photonique de l'Institut Fresnel. Dans celle-ci on peut retrouver diverses informations : les profils 2D, 3D ou encore le profil en X et Y afin de connaître selon une droite les valeurs des différentes hauteurs. On peut aussi modifier le système optique interne en changeant le grandissement de l'image. Ici, les images montrées sont celles obtenues pour un échantillon d' As_2S_3 exposé (zone bleue et verte).

L'intérêt principal de ce type de profilométrie est de s'affranchir des endommagements possibles des échantillons. Lors d'utilisation de profilomètre mécanique, la pointe en diamant exerce une certaine pression sur l'échantillon qui pourraient endommager ou du moins modifier la surface de celui-ci. Les profilomètres optiques ne posent pas ce problème et permettent d'obtenir tout de même des résolutions verticales de l'ordre de 2 nm et des résolutions latérales de l'ordre de micromètre.

2.2.3 Microscopes

2.2.3.1 Microscope optique

Pour la réalisation de caractérisation géométriques simples, nous avons utilisé un microscope optique Nikon STATIF ECLIPSE Ci-S avec des grandissements entre $\times 2$ et $\times 100$. Nous avons en particulier utilisé cet outil pour vérifier l'état des couches après dépôt ainsi que la présence de défauts. Nous avons également utilisé cet instrument pour une étude qualitative de l'inscription de certaines structures dans les couches fabriquées.

2.2.3.2 Microscope à Contraste Interférentiel (DIC)

Le microscope à contraste interférentiel est un microscope qui exploite les interférences de deux faisceaux d'une onde lumineuse traversant un échantillon. Il existe plusieurs techniques de microscopie à contraste interférentiel que l'on peut classer en deux grands groupes : celles où un des deux faisceaux ne traverse pas l'échantillon (ce sera notre référence) et celles où les deux faisceaux traversent l'objet comme dans les références [113], [114].

Dans notre cas, nous allons étudier principalement le second groupe car c'est celui avec lequel nous avons travaillé.

Parmi ce groupe, on peut distinguer les microscopes à large dédoublement ou les microscopes à contraste interférentiel différentiel (utilisé dans le cadre de ces travaux) [115].

Le contraste interférentiel est le plus répandu en particulier celui selon Nomarski [113]. Le DIC a un principe différent de celui du microscope à contraste de phase mais produit le même type d'image et a le même domaine d'utilisation. Mais contrairement au microscope à contraste de phase qui crée un halo autour des structures observées le microscope DIC n'en fait pas.

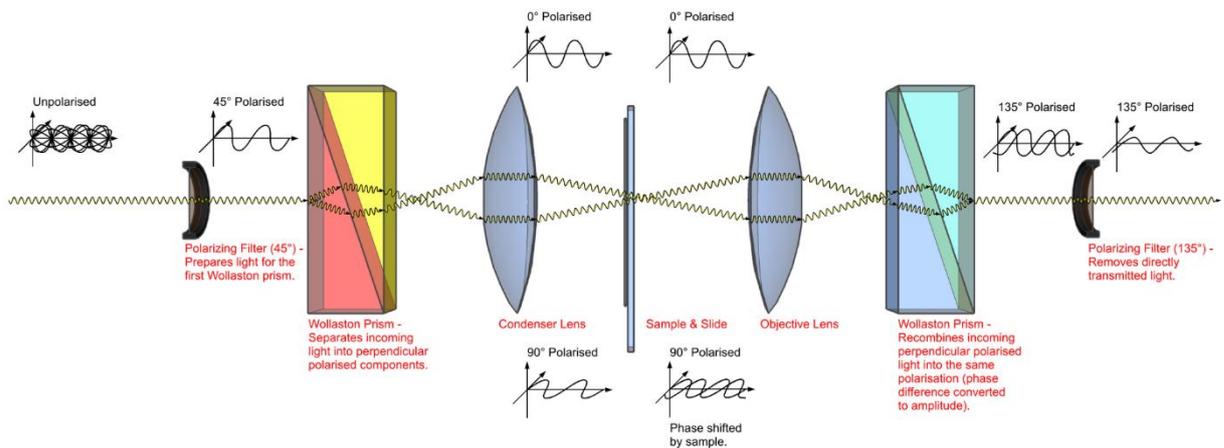


Figure 17 : Schéma de principe du microscope à contraste interférentiel de Nomarski [116]

Le schéma du principe de fonctionnement est montré dans la Figure 17. Le faisceau de lumière non polarisée est tout d'abord polarisée puis passe dans un prisme de Wollaston qui va séparer le faisceau en deux composantes de polarisations orthogonales. Un système optique va permettre de faire interférer les deux faisceaux polarisés. Cela produit un contraste très marqué à l'endroit où les rayons sont déphasés. Puis les deux faisceaux vont ensuite être recombinaés par un nouveau prisme de Wollaston et ensuite analysés par un polariseur. Ce système existe en transmission comme sur la Figure 17 mais aussi en réflexion.

Certains des outils décrits précédemment ont été aussi bien utilisés pour l'étude et la caractérisation des modifications photoinduites des matériaux (photosensibilité cf. Chapitre

3) que pour la caractérisation des propriétés opto-géométriques des divers éléments optiques qui seront décrits par la suite dans cette thèse.

2.3 Paramètres caractéristiques de couches minces

Comme introduit précédemment, lors du dépôt de couches minces, certains paramètres opto-géométriques sont essentiels à connaître : l'indice de réfraction et son épaisseur. Ces deux paramètres sont en général rassemblés sous le terme d'épaisseur optique défini comme le produit entre l'indice de réfraction et l'épaisseur.

Concernant l'indice de réfraction, c'est une quantité définie par un nombre complexe N sans unité :

$$N = n + ik \tag{2.2}$$

Où n est l'indice de réfraction du matériau et k son coefficient d'extinction. La partie réelle de l'indice de réfraction N , n est défini comme le rapport entre la vitesse v de la lumière dans le milieu et la vitesse c dans le vide :

$$n = c/v \tag{2.3}$$

La partie complexe de l'indice de réfraction N , k est quant à elle directement reliée au coefficient d'absorption α du milieu par la relation :

$$k = \alpha\lambda/4\pi \tag{2.4}$$

Avec λ la longueur d'onde.

Ces paramètres permettent en outre de décrire les phénomènes optiques d'interaction avec la matière tels que l'absorption A , la transmission T et la réflexion R ainsi que les phases transmises et réfléchies. Ces paramètres sont généralement définis sous forme de dispersion, c'est-à-dire par leur dépendance à la longueur d'onde.

2.4 Détermination d'indice et d'épaisseur des matériaux utilisés

Pour les travaux qui seront présentés par la suite, nous avons tout d'abord étudié les propriétés des matériaux déposés en couches minces optiques. Pour ce faire, un programme de calcul permettant la détermination des paramètres opto-géométriques a été développé. Ce programme a ensuite permis de trouver les indices et coefficients d'absorption des divers matériaux utilisés.

2.4.1 Programme de calcul

Afin de déterminer les caractéristiques optiques des matériaux qui ont été déposés pendant cette thèse, un programme de calcul basé sur le logiciel Matlab a été mis en place. Celui-ci permet de simuler la dépendance spectrale de la transmission, la réflexion, l'absorption et la

phase en transmission d'une couche ou d'un empilement de couches. Il permet également, par l'utilisation d'algorithmes d'optimisation, de déterminer les courbes de dispersion spectrale d'indices de réfraction ainsi que du coefficient d'extinction des matériaux déposés à partir des mesures de transmission et réflexion spectrales. Cette partie du programme est construit sur le principe de rétro-ingénierie [19], [117] utilisé dans les logiciels commerciaux tels qu'OptiLayer [118] ou encore FilmStar Design [119].

Après dépôt, on mesure, grâce au spectrophotomètre, les réponses spectrales en transmission et/ou en réflexion de la couche ou du bi-couche déposé. Puis, en se basant sur la réduction d'erreur d'une fonction de mérite et l'ajustement des courbes simulées et expérimentales, on peut obtenir les dispersions spectrales de l'indice de réfraction et du coefficient d'extinction. Ces dispersion spectrales sont basées sur des modèles empiriques de type Cauchy ou Sellmeier pour l'indice de réfraction et exponentielles décroissantes pour la coefficient d'extinction ou des modèles physiques du type Tauc-Lorentz qui relie les deux quantités au travers de la relation de Kramers-Krönig [120].

Dans les travaux présentés, divers matériaux ont été utilisés à savoir, des matériaux standards pour la communauté des couches minces optiques tels que des matériaux oxydes : le dioxyde de silicium (SiO_2), ou encore le pentoxyde de niobium (Nb_2O_5), des matériaux fluorés ou soufrés : sulfure de zinc (ZnS) ou le fluorure d'yttrium (YF_3) mais aussi d'autres matériaux plus exotiques tels que des verres de chalcogénures.

Les dispersion d'indices des matériaux standards étant parfaitement connues, nous ne les aborderons pas dans cette thèse mais ces valeurs sont regroupées dans l'Annexe :

Constantes optiques des matériaux utilisés pour les empilements multicouches. En revanche, afin de pouvoir synthétiser des structures à partir de couches de verres de chalcogénures, nous avons réalisé une détermination de leurs dispersions d'indice de réfraction et du coefficient d'extinction.

2.4.2 Couches minces d' As_2S_3

Les dépôts d' As_2S_3 ont été réalisés sur les deux machines de dépôt : la BAK 600 et la SYRUSpro 710. La première machine a été utilisée au début de la thèse (1^{ère} année), puis les dépôts ont ensuite tous été réalisés sur la machine SYRUSpro 710 (2^{ème} et 3^{ème} année), après sa réception. Afin de pouvoir réutiliser les résultats obtenus sur les indices de réfraction calculés, plusieurs tests ont été réalisés afin d'évaluer l'impact de la vitesse de dépôt, la stabilité des couches dans le temps ainsi que la stabilité de l'indice de réfraction en fonction de l'épaisseur.

Tous les multicouches présentés dans la suite de cette thèse ont été fabriqués avec la SYRUSpro 710. Pour cela, nous avons optimisé la vitesse de dépôt ainsi que le courant

appliqué sur le filament et les paramètres PID de la machine pour obtenir des vitesses de dépôt stables (Figure 13) et des propriétés répétables d'un dépôt à l'autre.

La vitesse de dépôt a été contrôlée par un système de microbalance à quartz tandis que l'épaisseur des couches a été mesurée en temps réel à l'aide d'un contrôle optique (OMS 5000 de Bühler). Le matériau utilisé pour le dépôt est un verre amorphe à base d' As_2S_3 . La vitesse de dépôt a été fixée à 0,7 nm/s (présentée en bleu) avec une pression résiduelle dans la chambre de 10^{-6} mbar. Cette valeur de vitesse de dépôt assez élevée provient du fait que ce matériau s'évapore pour des courants de filaments très bas à la limite de ceux contrôlables par la machine (de l'ordre de 2 mA). On peut voir que la vitesse réelle oscille autour de cette vitesse nominale mais est globalement égale à la valeur attendue. De plus, on peut montrer que ces fluctuations n'induisent pas d'inhomogénéités d'indice mesurables (c'est-à-dire d'évolution de l'indice selon l'épaisseur), même sur des couches très épaisses. Afin d'optimiser les paramètres de dépôts, nous avons essayé de remplacer les liners de molybdène (Mo) utilisés couramment dans les machines d'évaporation par des liners de cuivre (Cu) afin de permettre une meilleure dissipation de la chaleur au niveau du creuset qui est activement refroidi par eau. Cependant, l'emploi de ce type de liner a révélé une incompatibilité entre le cuivre et l' As_2S_3 qui s'est traduit par une décomposition du matériau lors du dépôt, ce qui est très indésirable compte tenu de la nature des composés utilisés.

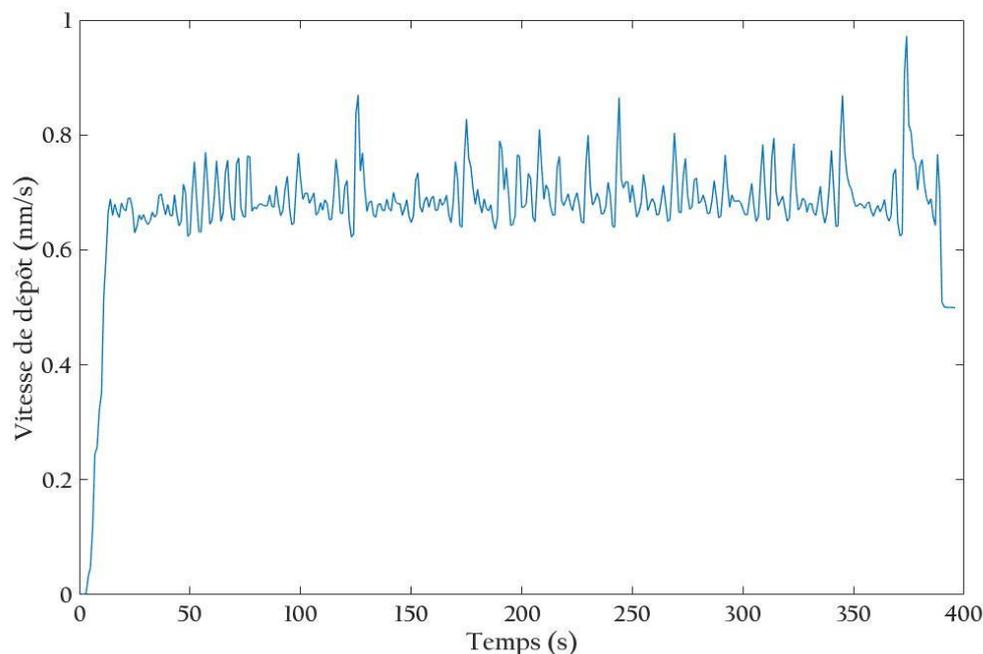


Figure 18 : Fluctuations typiques de la vitesse de dépôts d'une couche d' As_2S_3 avec la machine SYRUSpro

Après dépôt, les propriétés des couches ont été étudiées spectralement grâce au spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050. La Figure 19 donne la dépendance spectrale de la transmission mesurée sur une couche d' As_2S_3 de 990 nm, ce qui correspond à une couche demi-onde ($3\lambda/2$) à 1550 nm.

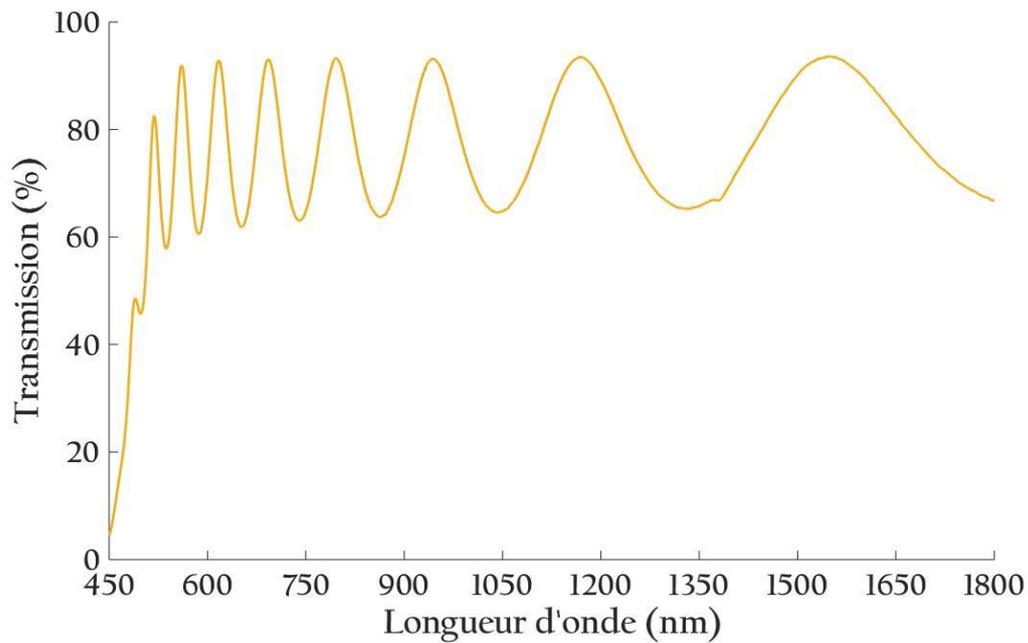


Figure 19 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche d' As_2S_3 de 990 nm d'épaisseur déposée par évaporation par canons à électrons

Dans la littérature [59], l' As_2S_3 a un indice de réfraction de l'ordre de 2,597 à 644 nm. Dans notre cas, nous avons utilisé nos algorithmes d'optimisation pour déterminer ces dispersions d'indice de réfraction et du coefficient d'extinction (Figure 20).

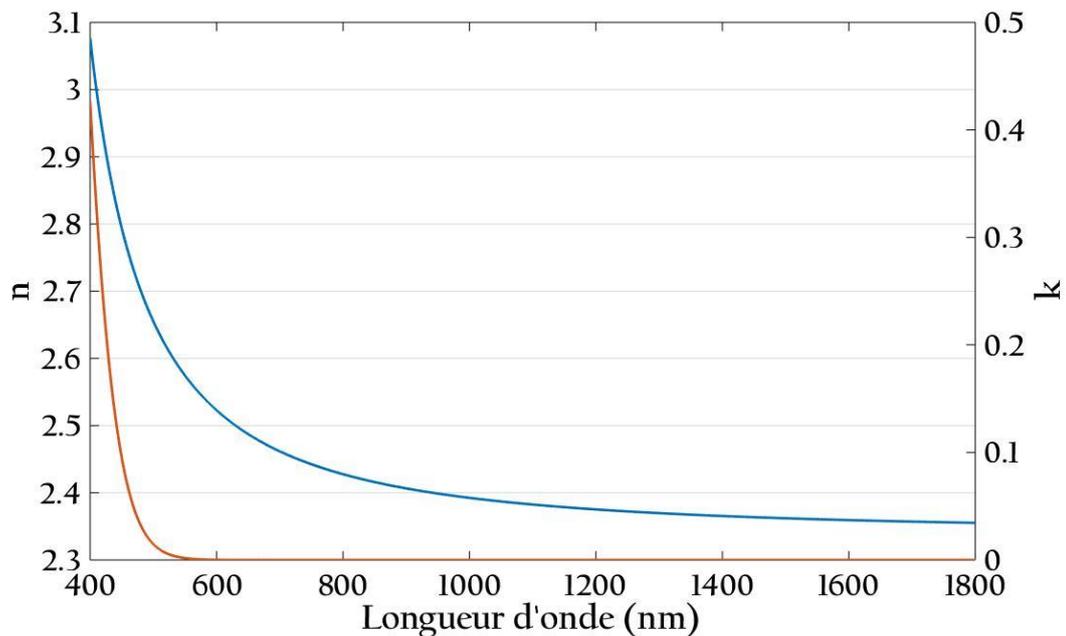


Figure 20 : Dépendance spectrale de l'indice de réfraction (en bleu) et du coefficient d'extinction (en rouge) pour une couche non exposée calculés par rétro-ingénierie

La dispersion de l'indice de réfraction n des couches d' As_2S_3 est basée sur une équation de Sellmeier [121] et celle du coefficient d'extinction sur une décroissance exponentielle.

$$n^2(\lambda) = 1 + \frac{A_1 * \lambda^2}{\lambda^2 - B_1^2} + \frac{A_2 * \lambda^2}{\lambda^2 - B_2^2} + \frac{A_3 * \lambda^2}{\lambda^2 - B_3^2} \quad 2.5$$

$$\kappa(\lambda) = C * \exp\left(D * \lambda + \frac{E}{\lambda}\right) + F \quad 2.6$$

Le Tableau 7 et le Tableau 8 (en Annexe) donnent les valeurs que nous avons déterminées pour chacun des coefficients. La Figure 21 donne la dépendance spectrale pour l'échantillon après dépôt et la simulation de la dépendance spectrale d'un échantillon d' As_2S_3 grâce aux paramètres n et k obtenus par rétro-ingénierie. Il existe une erreur qui est cependant très faible. L'accord simulation et expérience est très bonne.

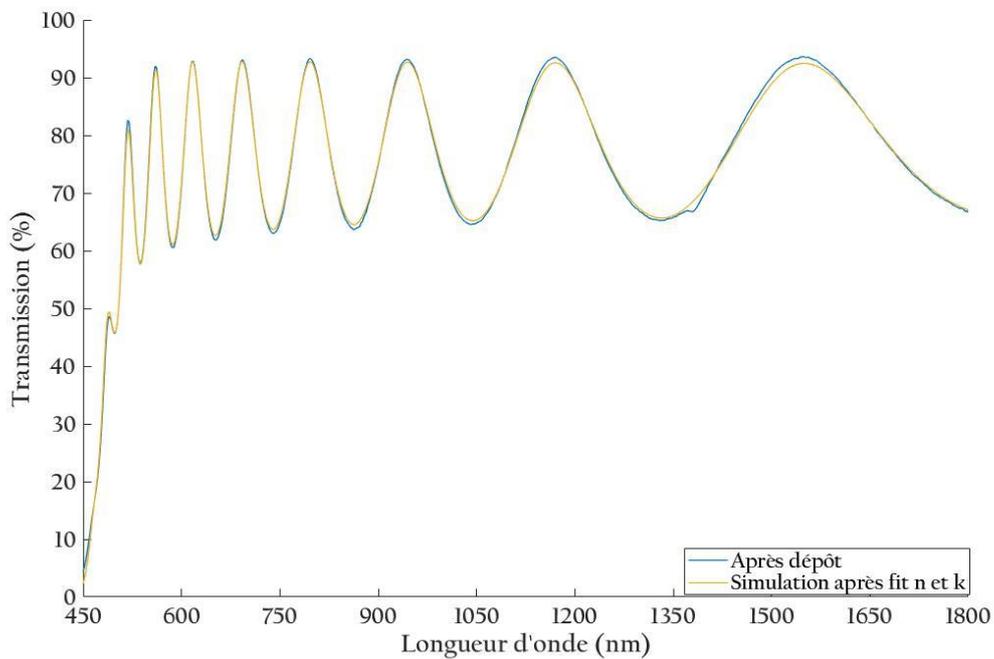


Figure 21 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche d' As_2S_3 de 990 nm après dépôt (en bleu) et simulée à partir des paramètres n et k obtenus par rétro-ingénierie (en jaune)

On observe un indice de réfraction de l'ordre de 2,492 à 644nm qui est 4% inférieur à celui du matériau massif [122]. Cette valeur plus faible peut s'expliquer par une plus faible densité des couches par rapport au matériau massif ainsi que par une structure différente. Cette différence, qui peut paraître surprenante, est en fait un des paramètres clés de ce matériau. Comme on le montrera par la suite de ce document, c'est du fait de cette structure hors équilibre, que les couches d' As_2S_3 présentent des propriétés de photosensibilités. Ainsi, une exposition laser dans le bande d'absorption du matériau, i.e. < 550 nm, permettra d'induire une variation d'indice de grande amplitude de sorte à obtenir au final, un indice proche de celui du matériau massif.

2.4.3 Autres matériaux exotiques :

Durant la thèse, d'autres matériaux moins communs ont été étudiés et déposés. Comme dans le cas de l' As_2S_3 , plusieurs épaisseurs de couche ont été déposées afin d'optimiser les différents paramètres de dépôt. Tous ces matériaux font partie de la famille des verres de chalcogénures. Le but de ce travail était donc de démontrer que l'évaporation par canon à électrons est une technique efficace et versatile pour le dépôt de couches minces de qualité optique de verres de chalcogénures. Certains de ces matériaux ont ensuite été utilisés dans le cadre de coopérations avec d'autres équipes de l'Institut Fresnel ou d'autres laboratoires français.

2.4.3.1 Couches minces de $\text{Ge}_{25}\text{As}_{30}\text{S}_{45}$

Dans l'objectif de déterminer le matériau qui sera utilisé pour la fabrication d'éléments optiques, nous avons testé d'autres matériaux pour lesquels des propriétés photosensibles ont déjà été démontrées. C'est le cas du $\text{Ge}_{25}\text{As}_{30}\text{S}_{45}$, un verre de chalcogénures qui possède des propriétés de biréfringence photoinduites [71], [88]. Nous avons donc approvisionné des substrats massifs à base de $\text{Ge}_{25}\text{As}_{30}\text{S}_{45}$ que nous avons évaporé dans la machine SYRUSpro 710. Les paramètres de dépôt ont ainsi été optimisés afin de produire des couches de qualité optique. L'étude de l'indice de réfraction n et du coefficient d'absorption k a de nouveau été réalisée à l'aide de mesures spectrophotométriques de la transmission et de la réflexion. La Figure 22 regroupe la courbe de la dépendance spectrale en transmission d'une couche de $\text{Ge}_{25}\text{As}_{30}\text{S}_{45}$ de 310 nm d'épaisseur (gauche) et les courbes de dispersion d'indice de réfraction et du coefficient d'extinction associées (droite).

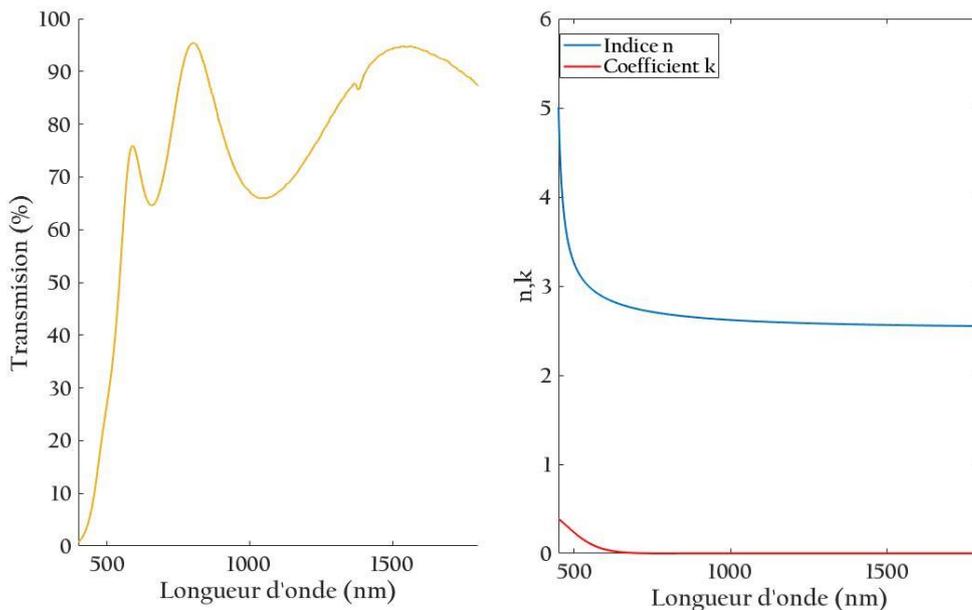


Figure 22 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche de $\text{Ge}_{25}\text{As}_{30}\text{S}_{45}$, de 310 nm (à gauche) et courbes des dispersions d'indice de réfraction et du coefficient d'extinction associées (à droite)

Sur les deux graphiques de dépendances spectrales, il est possible de déterminer, tout comme pour l'As₂S₃, la partie du spectre du visible pour laquelle le matériau absorbe. La limite entre la zone de transparence et d'absorption du matériau se situe aux alentours de 630 nm. Nous avons alors exposé notre matériau à un laser à 532 nm afin de déterminer les variations d'indice photoinduites liées à la photosensibilité. Nous avons ainsi montré qu'il était possible de produire des variations d'indice du même ordre de grandeur que dans des couches d'As₂S₃. Nous n'avons cependant pas pu mettre en évidence la présence d'anisotropie photoinduite dans ce matériau. Pour des raisons de simplicité d'approvisionnement, nous avons donc opté pour l'utilisation de couches d'As₂S₃ pour la réalisation d'éléments optiques.

2.4.3.2 Couches minces de GeSe et de GeSbTe

Dans le cadre d'une collaboration avec l'Institut des Nanotechnologies de Lyon (Sébastien Cuffe) nous avons développé des couches minces de verres de chalcogénures à base de Germanium : le GeSe et le GeSbTe. Ces deux matériaux présentent des propriétés uniques de changement de phase quand ils sont traités thermiquement [123]. Nous avons ainsi fourni un ensemble de couches de ces matériaux d'épaisseurs égales à 55 nm et déposées sur divers substrats qui ont par la suite été utilisées pour la réalisation de composants actifs.

En effet, les progrès récents en nanostructuration de matériaux ont permis des avancées majeures dans le domaine du contrôle de la lumière à l'échelle nanométrique. Par exemple il est dorénavant possible de focaliser la lumière à l'aide de lentilles plates composées de résonateurs nanométriques (métasurfaces). Cependant, les tailles nanométriques rendent très difficile la modification dynamique des propriétés de ces dispositifs nanophotoniques. Ces composants sont donc pour la plupart des composants statiques, aux propriétés fixées après l'étape de fabrication. C'est la raison pour laquelle de nombreux groupes recherchent activement des moyens de modulation dynamique des propriétés photoniques des matériaux à l'échelle micro-nano.

Les matériaux à changement de phase tels que le GeSbTe représentent un des moyens les plus prometteurs pour moduler les propriétés optiques de dispositifs intégrés. Ce type de matériau présente de très larges différences de propriétés optiques entre son état amorphe et son état cristallin. Cela est dû à un type de liaisons très spécifiques appelées « resonant bonding » qui est présent dans sa phase cristalline et absent dans la phase amorphe [124]. Ce grand contraste optique est en outre utilisé dans les DVD réinscriptibles.

Pour modéliser et concevoir des dispositifs nanophotoniques accordables basés sur les propriétés optiques du GeSbTe, il est nécessaire de caractériser précisément sa dispersion optique dans ses différentes phases. Au préalable, nous avons vérifié la température de

changement de phase du GeSbTe en couche mince en utilisant un diffractomètre des rayons X et une cellule contrôlée en température (Figure 23).

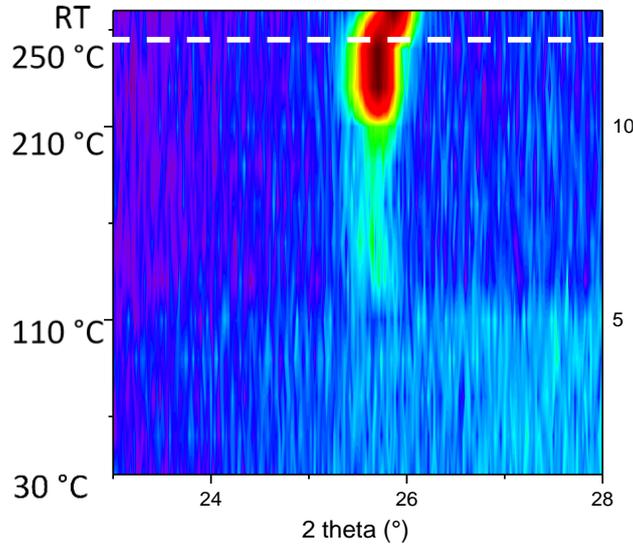


Figure 23 : Diffraction des rayons X d'une couche mince de GeSbTe : Scans $\theta/2\theta$ en fonction de la température

On peut voir un début de cristallisation à 130°C, suivi d'une intensification de la quantité cristallisée à 210°C. Nous avons ensuite utilisé un ellipsomètre spectroscopique couplé à une cellule en température permettant d'induire le changement de phase du GeSbTe de manière thermique.

Par le biais de fits des mesures ellipsométriques et grâce à un modèle d'oscillateur Tauc-Lorentz, nous avons pu extraire la dispersion optique du GeSbTe dans ses différentes phases (amorphe et cristalline) (Figure 24).

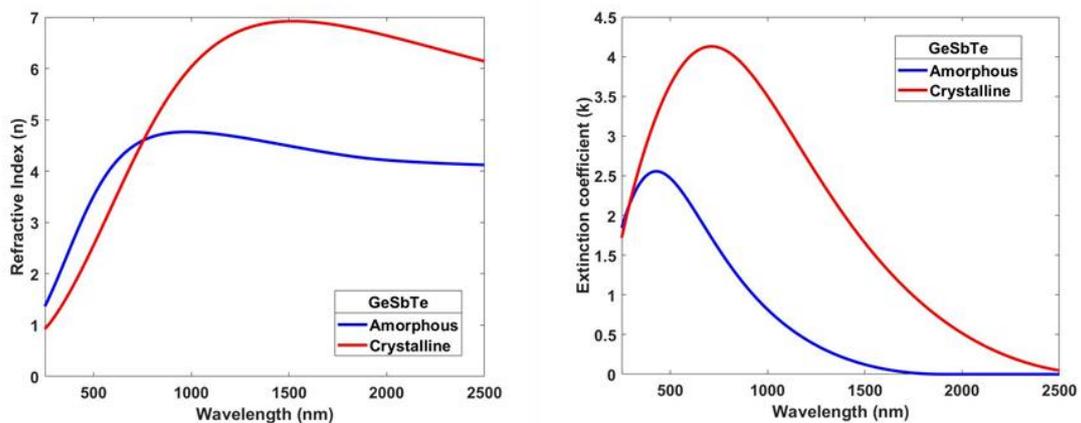


Figure 24 : Indice de réfraction et coefficient d'extinction du GeSbTe en couche mince dans son état amorphe (bleu) et cristallin (rouge). Dispersion optiques obtenues à partir de fits de mesures ellipsométriques

On vérifie ainsi une très large modulation de l'indice optique du GeSbTe, notamment dans le proche infrarouge (longueur d'onde $> 1000\text{nm}$), pour lequel on a une variation d'indice supérieure à 2.

Ces échantillons et mesures associées vont servir de base pour le design de composants nanophotoniques intégrés accordables dans le proche infrarouge.

2.4.3.1 Couches minces de Sb_2Te_3

Dans le cadre d'une coopération avec l'équipe ILM (interaction laser matière) de l'Institut Fresnel et en particulier une thèse qui sera soutenue en novembre 2019 par Charles Moisset, nous avons été amenés à travailler sur le dépôt de couches minces de tellurure d'antimoine (Sb_2Te_3). Ce matériau est un matériau qui est très étudié depuis plusieurs années [125]–[127]. Il fait partie de la catégorie des isolants topologiques, c'est-à-dire des matériaux à propriétés de volume et de surface non conventionnelles. En particulier, le Sb_2Te_3 présente des propriétés non-linéaires très importantes (notamment de l'absorption saturable) et ce même pour des épaisseurs de couches très fines. Cette propriété en fait un candidat intéressant comme masque pour la réalisation d'inscription en super-résolution, c'est-à-dire pour l'inscription laser de motifs de tailles très inférieures à la limite de diffraction ($\lambda/10$ ou inférieur). Pendant ces travaux nous avons été amené à déposer des couches de Sb_2Te_3 de diverses épaisseurs avec une vitesse de dépôt de l'ordre de $0,35 \pm 0,05 \text{ nm/s}$. Un ensemble de couches de Sb_2Te_3 très fines d'environ 23 nm ont notamment été fournies sur une période étendue (~ 2 ans) Aucune variation significative des paramètres opto-géométrique n'a pu être mise en évidence ce qui confirme la répétabilité du procédé de fabrication.

Ces couches ont par la suite été utilisées pour effectuer des tests sur la cristallisation, l'endommagement laser, etc. Une partie de ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans le journal *Optical Materials* [128].

La mesure en transmission et en réflexion des propriétés spectrales de la couche de 23 nm de Sb_2Te_3 a permis de calculer les dépendances spectrales des indices de réfraction et du coefficient d'extinction du matériau (Figure 25).

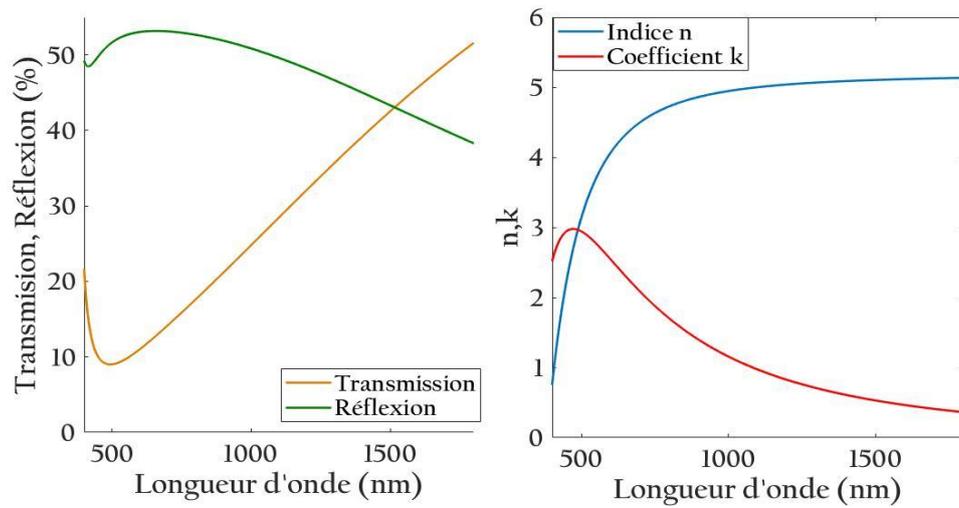


Figure 25 : Dépendance spectrale en transmission et en réflexion d'une couche de Sb_2Te_3 (à gauche) et courbes de dispersion de n et k pour la même couche (à droite)

On peut voir que le matériau présente une forte dispersion spectrale et un indice très élevé à $1 \mu m$. On peut montrer que ces propriétés de dispersion ne varient que très peu en fonction de l'épaisseur de la couche.

Chapitre 3

Etude de la cinétique de la photosensibilité de l'As₂S₃

3.1 Introduction

Pour l'ensemble des travaux qui seront présentés dans la suite de ce manuscrit nous allons nous concentrer sur l'utilisation d'un type de verres de chalcogénures : l'As₂S₃. L'As₂S₃ est également appelé AMTIR-6 (Amorphous Material Transmitting IR Radiation). Il est connu pour sa grande transparence dans l'infrarouge proche et lointain et a la caractéristique d'être photosensible, c'est-à-dire que certaines de ses propriétés opto-géométriques peuvent être modifiées par exposition à un rayonnement actinique. Il existe beaucoup d'articles et de papiers dans la littérature décrivant l'utilisation de ce matériau. Cette caractéristique a donc déjà été précédemment démontrée dans le régime linéaire [129], [130] et non linéaire (absorption à deux photons) [95]. Les études effectuées au début des années 80 concernant les changements de l'indice de réfraction des couches d'As₂S₃ [47] ont montré l'importance de ces matériaux dans un grand nombre d'applications. Depuis lors, le champ d'applications des verres de chalcogénures n'a cessé d'augmenter, du stockage de l'information [131] aux réseaux de Bragg sur fibre optique [130]. Il y a quarante ans, quelques recherches ont été effectuées sur la cinétique de la photosensibilité de l'As₂S₃. Ces études ont démontré que différentes cinétiques peuvent être observées et reliées à la longueur d'onde d'illumination [46]. Deux différences principales ont été constatées : l'utilisation de longueurs d'onde inférieures au gap optiques [132] ($\lambda < 515$ nm) et de longueurs d'onde supérieures à cette longueur d'onde [78]. En analysant les variations de la longueur d'onde du gap optique dans des échantillons

déposés sous vides avec différentes techniques, il a ainsi été possible de déterminer que les techniques de dépôt sous vide créaient des transformations irréversibles. En 1978, Tanaka et Ohtsuka ont publié un article [133] étudiant l'épaisseur et la variation de l'indice de réfraction de couches minces d'As₂S₃. Ils ont constaté que pour une longueur d'onde d'illumination de 436 nm et des couches d'As₂S₃ de 200-400 nm d'épaisseur déposés par évaporation par faisceau d'électrons, des changements irréversibles de l'indice de réfraction de 0,133 et d'épaisseur d'environ 0,8% (photo-contraction) peuvent être induits. Ce changement est attribué à la polymérisation photoinduites des films d'As₂S₃.

En revanche, pour des longueurs d'onde d'exposition supérieures au gap ($\lambda > 515$ nm), il a été démontré qu'une photo-expansion des films pouvait être induite [45]. Bien que dans cette étude une lampe au tungstène qui présente un spectre d'émission large bande était utilisée, des recherches ultérieures ont démontré que cet effet était produit par la partie haute du spectre, i.e. correspondant aux longueurs d'onde supérieures à 515 nm. L'ensemble de ces résultats sont résumés dans les références [46], [70], [78], [79]. En particulier, à partir d'une exposition à un laser HeNe à 633 nm [46], une augmentation de l'épaisseur de 6% a été démontrée. Une autre propriété importante de ces effets de photo-expansion est leur réversibilité lorsque ces couches sont recuites à une température proche de celle de transition vitreuse $T = 470$ K. Bien que le mécanisme détaillé ne soit pas vraiment connu, il est accepté que l'excitation des électrons à paire unique dans les atomes chalcogènes joue un rôle essentiel. Dans la plupart des papiers relatifs aux films minces As₂S₃, ces films sont recuits avant d'être utilisés pour stabiliser le processus de dépôt par évaporation sous vide.

3.2 Choix de la source d'exposition

Pour l'excitation de la photosensibilité des couches d'As₂S₃, nous avons décidé de prendre une source d'exposition dont la longueur d'onde est comprise dans la zone de faible absorption du matériau. C'est en effet celle qui devrait permettre d'atteindre les plus grandes variations d'indice [132], [133]. De plus, ce travail nécessitera d'exposer des couches peu épaisses (quelques centaines de nanomètres) et aussi très épaisses ($> 5 \mu\text{m}$). La longueur d'onde d'exposition est donc une contrainte majeure puisqu'il sera important de maximiser l'absorption pour obtenir des variations d'indice les plus rapides tout en garantissant une exposition homogène dans le volume de la couche, en particulier pour les couches épaisses. Nous avons au préalable exposé par différentes LED certains échantillons afin de valider la photosensibilité aux longueurs d'onde qui sont proposées ici comme source d'exposition pour la suite des travaux.

Afin de concevoir les différents problèmes liés à l'exposition de couches de diverses épaisseurs nous avons tout d'abord étudié la distribution d'intensité du champ électrique dans la couche. Il faut en effet être sûr que quel que soit l'épaisseur choisie nous ayons un flux lumineux qui ne soit pas totalement absorbé par la couche avant exposition mais aussi durant celle-ci.

En négligeant dans un premier temps les phénomènes d'interférences qui se produisant dans une couche mince, la propagation d'un rayonnement électromagnétique à travers d'un milieu semi-transparent suit une loi exponentielle de diminution de l'intensité. Cette loi est aussi connue sous le nom de loi de Beer-Lambert[134]. Celle-ci peut être écrite sous la forme :

$$I(\lambda, d) = I_0(\lambda)e^{-\alpha d} \quad 3.1$$

Avec I l'intensité à une longueur d'onde donnée, I₀ l'intensité du flux incident, λ la longueur d'onde d'étude, α le coefficient d'absorption et d l'épaisseur. Comme donné dans 2.3, on sait que le coefficient d'absorption α est proportionnel au coefficient d'extinction (imaginaire de N).

On comprend bien que plus k est grand, plus α sera grand donc plus l'intensité I sera petite. De même, plus le matériau sera épais plus l'intensité transmise va diminuer. Le cas extrême étant l'absorption totale du flux incident. Dans notre cas nous avons décidé d'étudier cet effet d'atténuation du flux pour deux longueurs d'onde : 470 nm et 532 nm et ce avant exposition et durant l'exposition. Il est important de prendre en compte à la fois les phénomène d'absorption au début de l'exposition, mais également au cours de celle-ci, i.e. de prendre en compte les effets de *photonoirçissement* [80], [81] ou *photoblanchiment* [82] qui peuvent être associés aux variations d'indice photoinduites.

La Figure 26 donne les résultats de ces atténuations pour les deux longueurs d'onde considérées dans cette étude. On voit ainsi que pour une exposition à 470 nm et une épaisseur de 5 μm, moins de 5% de la lumière est transmise alors qu'à 532 nm 89% de la lumière incidente est transmise avant exposition. De plus, au cours de l'exposition, les paramètres optiques de la couche sont modifiés et en particulier son coefficient d'extinction. Cela se traduit par une augmentation du coefficient d'absorption (*photonoirçissement*) ce qui résulte en une atténuation encore plus grande du faisceau incident au cours de l'exposition. On a alors pour une source à 470 nm une transmission proche 0% et de 69% dans le cas de l'exposition à 532 nm.

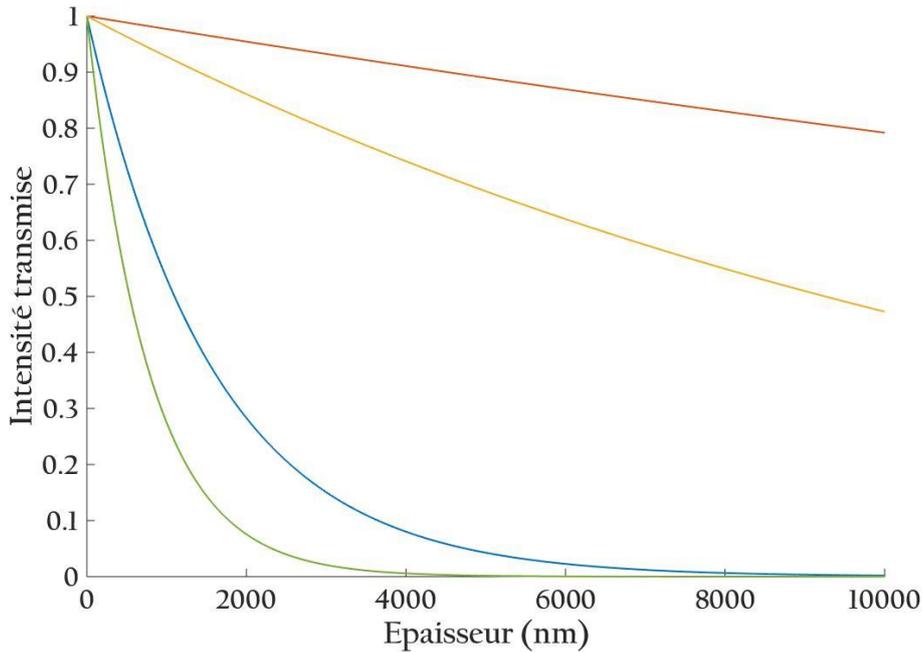


Figure 26 : Effet d'atténuation de l'intensité transmise en fonction de l'épaisseur d'une couche d' As_2S_3 pour deux longueurs d'onde différentes (470 nm et 532 nm) avant (rouge et bleu respectivement) et à saturation de la variation d'indice photoinduites (jaune et verte respectivement)

En conclusion, lors de l'exposition de couches épaisses nous utiliserons donc une source à 532 nm tandis que dans le cas d'une couche inférieure à 1 μm , les deux sources pourront être a priori utilisées.

3.3 Variation de la transmission en fonction de l'exposition

Dans la partie 2.4.2, nous avons décrit les différents paramètres choisis pour le dépôt de couches qui ont été utilisées pendant cette thèse. Afin de valider la cinétique de la photosensibilité du matériau, plusieurs épaisseurs de couches de chalcogénures ont été déposées. Après dépôt, les matériaux ont été protégés en raison de la nature photosensible des couches. Les échantillons ont donc été mis à l'abri de toute exposition à la lumière ambiante en les conservant dans des boîtes sombres. Pour la caractérisation et l'étude de la cinétique de la photosensibilité, les couches n'ont pas été recuites avant illumination.

Pour caractériser les propriétés photosensibles des couches d' As_2S_3 , nous avons déposé des couches de 330, 660 et 990 nm d'épaisseur (respectivement $\lambda/2$, λ et $3\lambda/2$ à 1550 nm). Les mesures spectrales ont ensuite été effectuées à l'aide du spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050. Les spectres ont été mesurés pour étudier la dépendance spectrale de la transmission avant et après exposition à une LED de 20 mW à 470 nm. La Figure 27 présente les dépendances spectrales de la transmission des différentes couches déposées. On peut voir que les oscillations de la transmission dues aux effets d'interférence présentent, dans la zone

de transparence, des valeurs de maxima et minima identiques pour chaque couche. Ce résultat montre que les couches sont homogènes, c'est-à-dire que l'indice de réfraction est identique sur toute l'épaisseur des couches confirmant un bon contrôle des vitesses de dépôt.

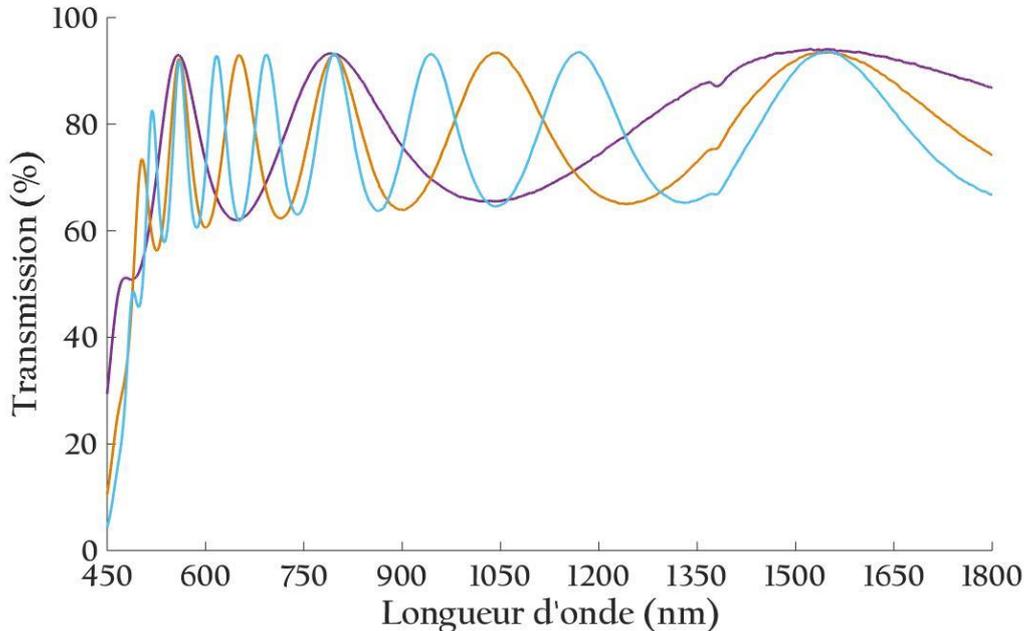


Figure 27 : Courbes de transmission spectrale des couches d'As₂S₃ déposées de différentes épaisseurs égale à 330, 660 et 990 nm (respectivement en violet, orange et bleu)

Pour la suite de l'étude de la cinétique de la photosensibilité seuls les résultats obtenus à partir d'une couche mince d'As₂S₃ de 990 nm d'épaisseur seront présentés. Cependant la cinétique de la variation de l'indice de réfraction a été mesurée pour l'ensemble des échantillons et nous avons montré que les variations d'indice mesurées ne sont pas liées à l'épaisseur ceux-ci.

Afin de quantifier les modifications photoinduites, nous avons exposé les échantillons avec différentes doses d'énergies. Compte tenu de l'épaisseur modérée des couches utilisée, nous avons dans un premier temps exposé celles-ci avec une LED de 20 mW à 470 nm.

La Figure 28 présente les différentes courbes de transmission pour un échantillon non éclairé, un échantillon éclairé avec une densité d'énergie de 110 J/cm² et un autre avec 5,3 kJ/cm². On peut voir que pour une dose d'exposition inférieure à 110 J/cm², le spectre de transmission est décalé de 3,5% vers les longueurs d'onde plus longues et l'amplitude de la modulation d'intensité est également augmentée de 6,4%. Pour une dose d'exposition plus grande (5,3 kJ/cm²), la courbe de transmission est alors décalée vers les courtes longueurs d'onde. En revanche, ce changement induit des pertes puisque la transmission maximale a diminué de 6,7%.

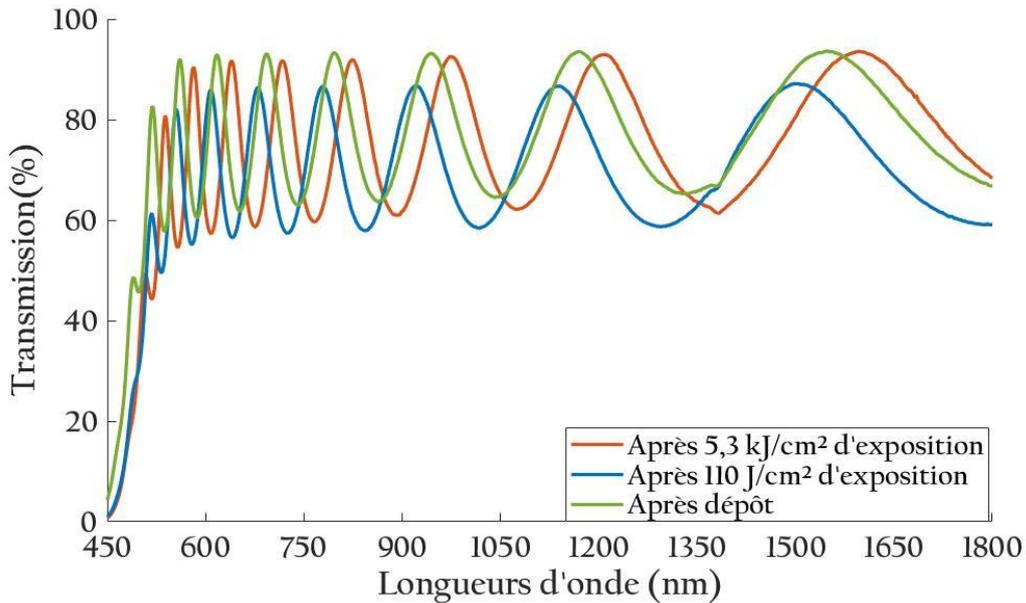


Figure 28 : Evolution de la dépendance spectrale de la transmission d'une couche mince d' As_2S_3 de 990 nm en fonction de la quantité d'énergie d'exposition

Nous avons donc déterminé que pour une exposition à 470 nm nous pouvions séparer deux régimes de modifications : le premier associé à une augmentation de l'épaisseur optique de la couche et qui décale donc le spectre de transmission vers les longueurs d'onde les plus grandes (pour une exposition $< 110 \text{ J/cm}^2$) et le second, associé à une diminution de l'épaisseur optique de la couche et qui produit un décalage des spectres de transmission vers les longueurs d'onde plus courtes (exposition $> 110 \text{ J/cm}^2$). La seconde modification, obtenue par une exposition à une forte doses d'énergie, apporte des pertes assez importantes dans le maximum de transmission.

3.4 Variation des paramètres opto-géométriques (n, k et d en fonction de l'exposition)

Dans la partie 2.4.1, nous avons décrit les techniques de rétro-ingénierie qui nous permettent, à partir des spectres en transmission et/ou en réflexion, d'obtenir les valeurs des différents paramètres opto-géométriques de couches : n, k et d.

Nous avons donc appliqué cette méthode aux spectres de la Figure 28 ainsi qu'à des spectres mesurés pour des doses d'exposition intermédiaires.

La Figure 29 montre l'évolution de la dispersion d'indice de réfraction pour différentes doses d'exposition tandis que la Figure 30 montre l'évolution de la dispersion du coefficient d'extinction pour différentes doses d'exposition.

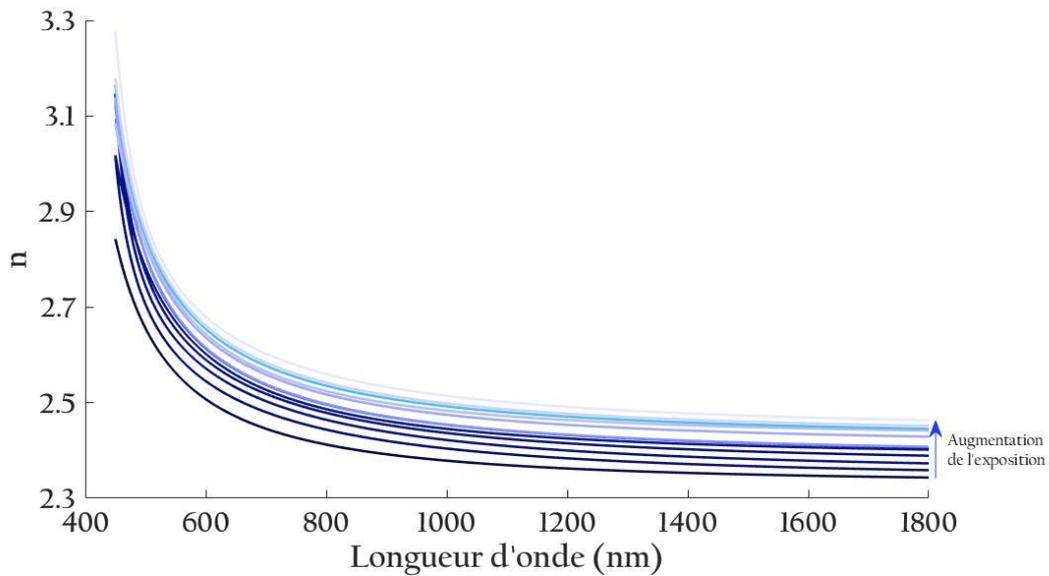


Figure 29 : Dépendance spectrale de la dispersion d'indice de réfraction d'une couche d' As_2S_3 pour différentes doses d'exposition

On peut voir tout d'abord qu'à part dans les régions proches du gap optique, la variation de l'indice de réfraction est constante sur un large domaine spectral. De plus, le gap optique diminue de 2,70 eV à 2,53 eV, ce qui se traduit par une augmentation du coefficient d'extinction aux courtes longueurs d'onde (photonoirçissement).

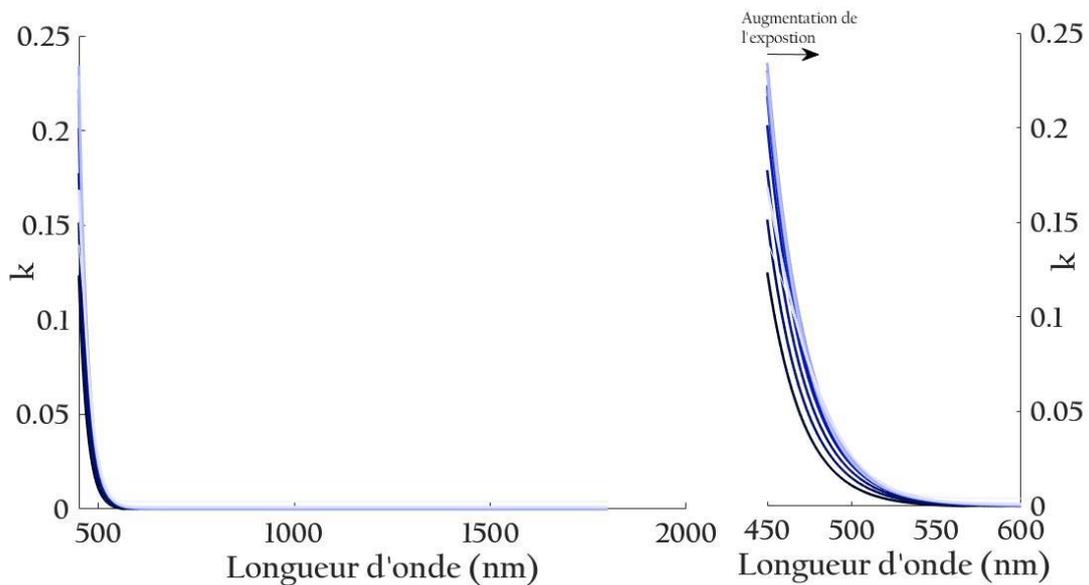


Figure 30 : Dépendance spectrale de la dispersion du coefficient d'extinction d'une couche d' As_2S_3 pour différentes doses d'exposition

Dans la partie 3.3, nous avons mis en évidence l'existence de deux régimes de photosensibilité. Le premier régime correspond à une augmentation de l'épaisseur optique et le second à une diminution de cette épaisseur. On voit donc que si l'on envoie une onde se propager à travers cette couche, en négligeant dans un premier temps les phénomènes d'interférences, cette

variation d'épaisseur optique va induire un déphasage $\Delta\Phi$ (différence entre la phase transmise après exposition et celle avant exposition) [6] qui peut s'écrire sous la forme :

$$\Delta\Phi = \frac{2\pi\Delta(nd)}{\lambda} \quad 3.2$$

Avec λ la longueur d'onde utilisée, n l'indice de réfraction de la couche et d l'épaisseur mécanique.

Tout d'abord, étudions le déphasage induit pour une exposition inférieure à 110 J/cm^2 . A partir des données de la Figure 29, on peut en déduire la variation de l'indice de réfraction à 633 nm en fonction des doses d'exposition (Figure 31).

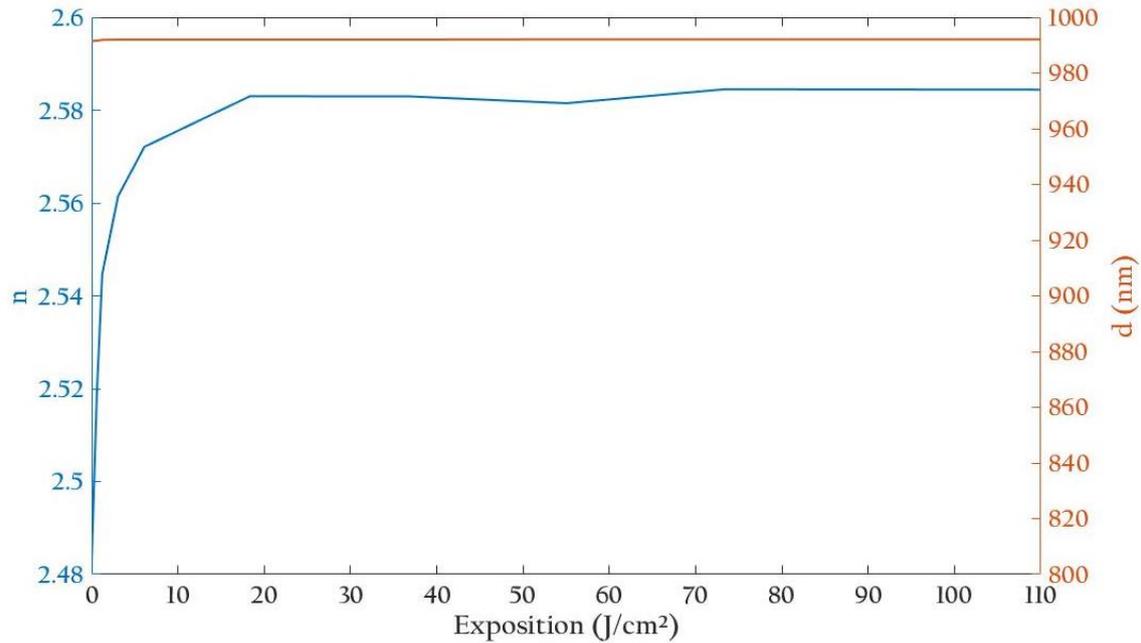


Figure 31 : Evolution de la variation d'indice de réfraction à 633 nm et d'épaisseur pour une couche d' As_2S_3 de 990 nm exposée avec une source à 470 nm à différentes doses entre 0 et 110 J/cm^2

On peut ainsi montrer que dans le premier régime, l'augmentation de l'épaisseur optique est uniquement due à une augmentation de l'indice de réfraction de la couche tandis que l'épaisseur d reste constante. Cette augmentation de l'épaisseur se produit au cours des premiers J/cm^2 de l'exposition et sature partir de 20 J/cm^2 et ce jusqu'à des doses supérieures à 100 J/cm^2 . On peut ainsi enregistrer à 633 nm une variation d'indice de $2,48$ à $2,58$ soit une augmentation de l'indice de $0,1$.

En revanche, si l'on prolonge l'exposition de la couche à 470 nm , on peut montrer que quand l'énergie reçue par la couches excède 110 J/cm^2 , il apparait un nouveau régime qui sature pour des expositions supérieures à $5,3 \text{ kJ/cm}^2$. De par l'étude des spectres en transmission des échantillons nous avons déterminé que le décalage allait vers les longueurs d'onde plus courtes. Cela correspond à une diminution de l'épaisseur optique et donc à un déphasage négatif. L'utilisation du programme de rétro-ingénierie nous fournit alors l'évolution de

l'indice et de l'épaisseur en fonction de la quantité d'exposition. La Figure 32 donne les résultats obtenus.

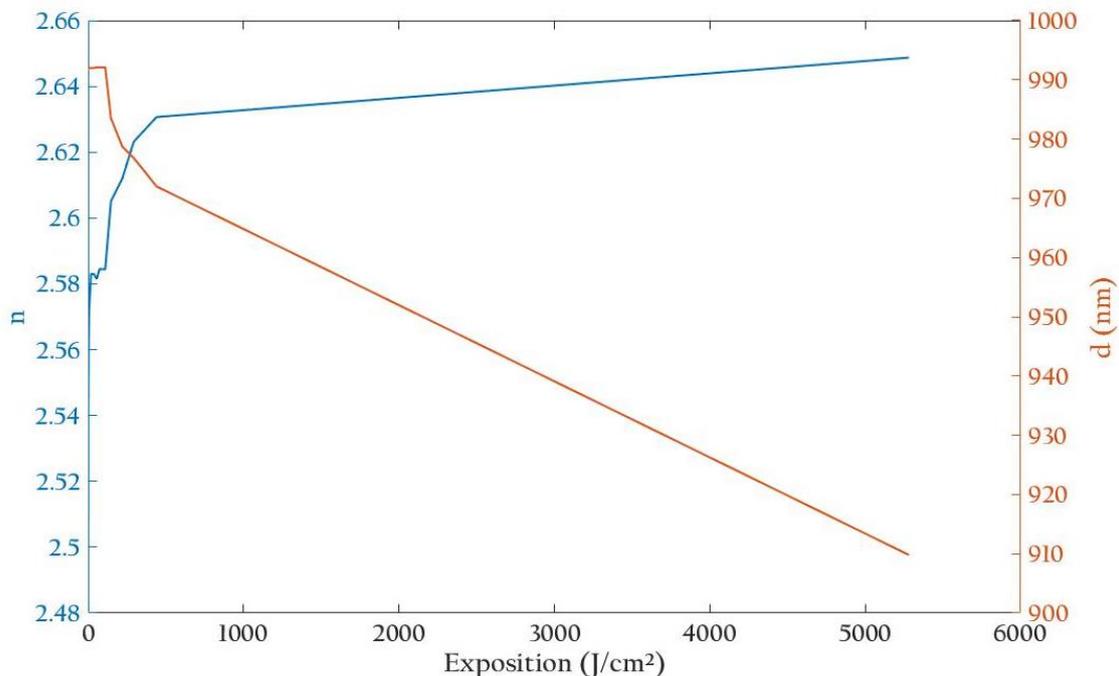


Figure 32 : Evolution de la variation relative d'indice de réfraction à 633 nm et d'épaisseur pour une couche d' As_2S_3 de 990 nm exposée avec une source à 470nm à différentes énergies entre 0 et 5000 J/cm^2

Dans cette figure, on retrouve donc le premier régime de photosensibilité (pour une exposition inférieure à 110 J/cm^2) et le second régime. Ce second régime se traduit par une nouvelle augmentation de l'indice de réfraction jusqu'à une valeur de 2,65 (soit une variation globale de 0.17 comparée à la couche non exposée) mais également par une diminution importante de l'épaisseur de 990 nm à 909,8 nm.

Pour valider les valeurs des modifications de l'épaisseur calculée par rétro-ingénierie nous avons utilisé un autre système de caractérisation : un profilomètre optique ZYGO NewView 7300. En effet la grande variation d'épaisseur du matériau calculée semble être une contraction due à l'exposition. Les mesures effectuées à l'aide du profilomètre sont données dans la Figure 33.

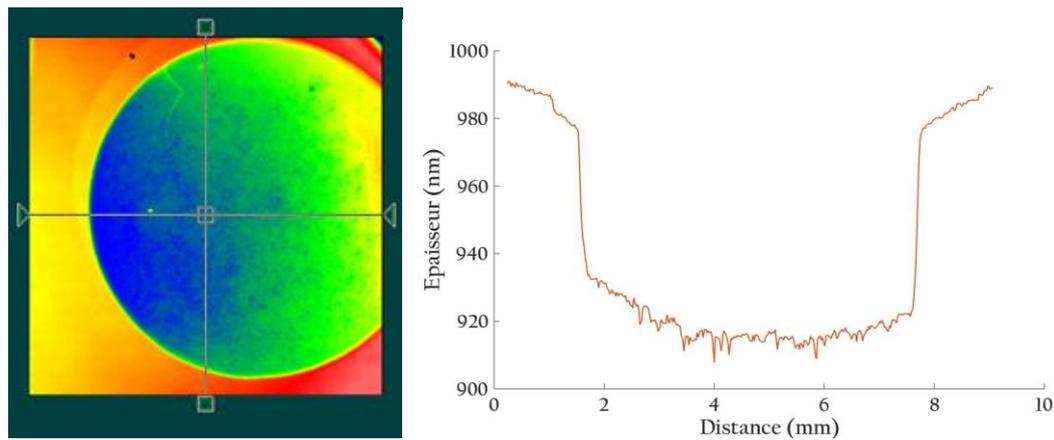


Figure 33 : Mesure de la variation d'épaisseur d'une couche d' As_2S_3 exposée à une énergie de $5,3 \text{ kJ/cm}^2$. À gauche l'image provenant du profilomètre Zygo NewView et à droite une extraction du profil selon l'axe vertical de la mire

On retrouve bien, sur cette mesure, la valeur donnée par le logiciel de calcul. On arrive à une différence d'épaisseur d'environ 80 nm entre les bords et la partie centrale de l'exposition. L'image de droite permet de visualiser très clairement la zone qui a été exposée de celle non exposée.

Afin de confirmer le déphasage estimé dans la section 3.3, nous avons calculé la variation relative de l'indice et de l'épaisseur en fonction de la dose d'énergie associée à l'exposition. Ces variations sont données dans la Figure 34.

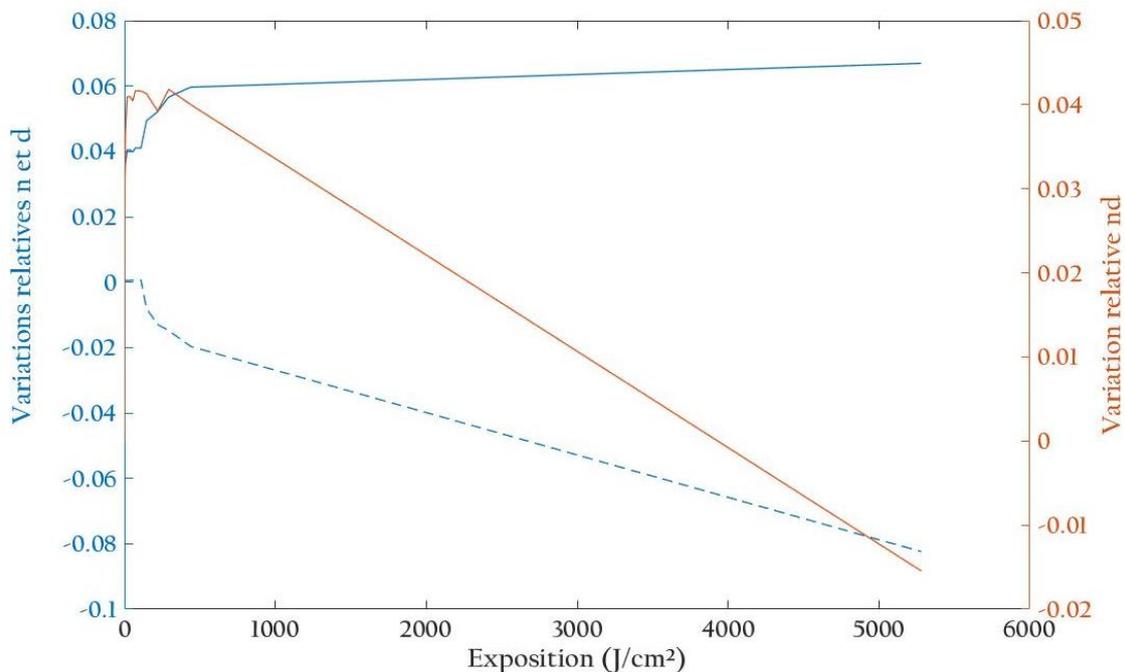


Figure 34 : Variation relative de l'indice de réfraction (bleu plein), de l'épaisseur (bleu pointillé) et de l'épaisseur optique (rouge) d'une couche d' As_2S_3 en fonction des doses d'exposition à 470 nm

La Figure 34 met en lien direct la variation relative d'indice de réfraction avec celle de l'épaisseur. Celle-ci permet aussi de voir la variation globale de l'épaisseur optique. La variation de l'épaisseur optique est positive lors de la première modification et négative dans la seconde. Nous pouvons donc plus facilement étudier les décalages vus précédemment (décalage vers les courtes ou longues longueurs d'onde).

On retrouve aussi les deux régimes de photosensibilité. Le premier correspond à un déphasage positif lié à une augmentation de l'indice de réfraction d'une quantité égale à +4,1% sans variation de l'épaisseur.

Le deuxième régime correspond à un décalage vers les longueurs d'onde plus courtes (déphasage négatif) associée à une variation relative maximale pour l'indice de réfraction égale à +6,7% combinée à une diminution de -8,2% de l'épaisseur de la couche. La variation de l'épaisseur optique résultante est égale à -1,5% ce qui se traduit par un déphasage négatif.

Il est important de noter que, dans la littérature, une distinction importante est faite entre les expositions faites avec des sources dont la longueur d'onde se situe au-dessus du gap optique et celles en dessous. Afin de pouvoir exposer de manière uniforme une couche dont l'épaisseur peut excéder 5 μm , nous avons aussi étudié la cinétique de variation d'indice avec une source émettant à 532 nm, c'est-à-dire dans une région spectrale de plus faible absorption. Dans notre étude, nous avons trouvé la même forme de cinétique et d'amplitude de variation dans la première phase que pour une exposition avec une source à 470 nm (cf. Figure 35). L'évolution de l'épaisseur et de l'indice de la seconde phase de l'exposition n'a cependant pas pu être mise en évidence dans le cas de la source à 532 nm. En effet même pour une exposition longue, la variation d'indice reste à saturation dans le cas d'une exposition à 532 nm.

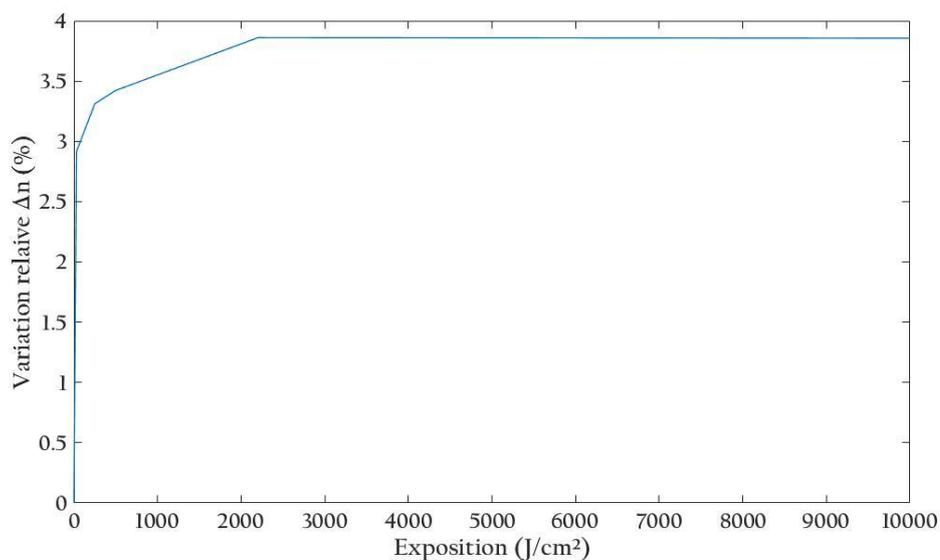


Figure 35 : Evolution de la variation d'indice de réfraction à 633nm pour une couche d' As_2S_3 en fonction de la dose d'exposition à 532 nm.

Sur la Figure 35, il est possible de remarquer que la quantité d'exposition nécessaire à l'obtention du début de la stabilité est cette fois d'environ 2,1 kJ/cm² ce qui correspond à une valeur 19 fois plus grande que dans le cas d'une exposition à 470 nm. En effet notre couche étant moins absorbante à 532 nm, il faut donc une plus grande dose d'exposition pour atteindre la même modification.

Cependant la forme et l'amplitude de la cinétique restent proches de celles obtenues pour des expositions à 470 nm. Nous retrouvons une variation relative de l'indice de l'ordre de 4%

3.5 Etude du recuit comme moyen d'accès à l'hystérésis

Dans la littérature, les couches minces d'As₂S₃ sont recuites thermiquement après dépôt [46] et ce quelle que soit leur utilisation [54], [135]. Le recuit est généralement effectué à une température proche de la température de transition du verre. Pour l'As₂S₃ cette température est de 470K soit 197°C.

Nous avons vu dans la partie 3.3 que dans le cas d'exposition des couches d'As₂S₃ à de très fortes densités d'énergie, il se produit une diminution de l'épaisseur optique des couches ainsi qu'une augmentation des pertes optiques qui se traduisent par une diminution de la transmission en particulier au niveau des maxima. Ces pertes qui augmentent avec la densité de puissance sont liées à de la diffusion liées à l'apparition de particules visibles par microscopie (image de droite de la Figure 33).

Nous avons donc étudié l'influence d'un recuit thermique sur les couches exposées à de très fortes densités d'énergie. La procédure a consisté à traiter thermiquement à 200°C pendant 2 heures divers échantillons avant ou après exposition et pour différentes doses d'expositions.

Lors de cette étude, nous avons étudié les deux régimes de photosensibilité. Pour ce qui est du premier régime de photosensibilité (i.e. dans le cas où la densité d'énergie à 470 nm reçue par l'échantillon est inférieure à 110 J/cm²), les spectres de transmission mesurés après différents traitements sont présentés sur la Figure 36. On peut clairement voir que le traitement thermique à 200°C produit une variation de l'indice de réfraction identique à celle obtenue à saturation dans le cas du premier régime de photosensibilité.

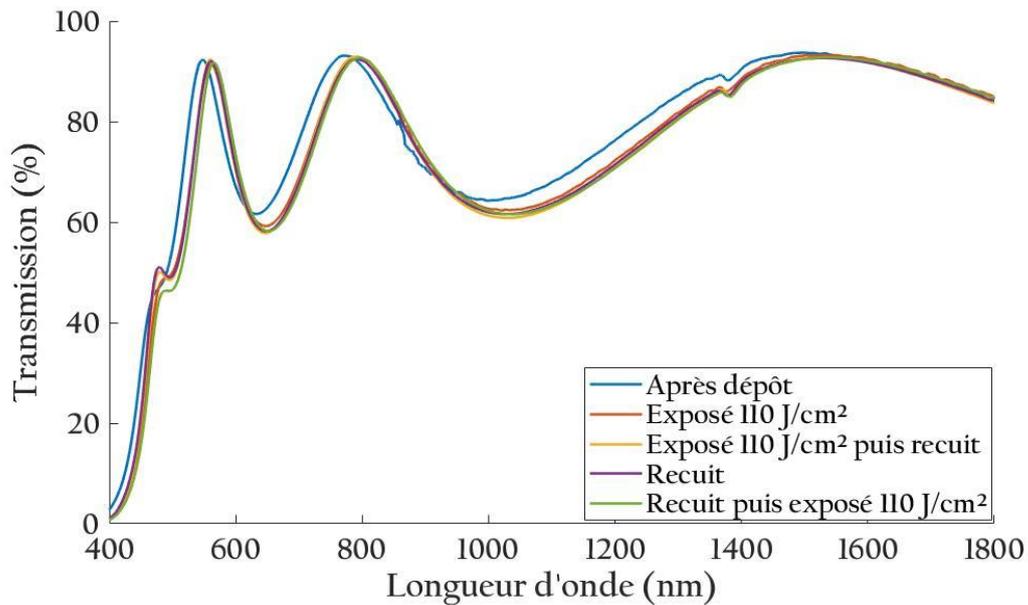


Figure 36 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche d' As_2S_3 avant et après recuit et/ou avant ou après exposition à 470 nm avec une énergie 110 J/cm²

Nous avons ensuite étudié l'influence d'un traitement thermique sur les propriétés spectrales des couches d' As_2S_3 dans le cas du second régime de photosensibilité. La Figure 37 présente les spectres de transmission mesurés après différents traitements thermiques et exposition laser à de fortes densités d'énergie. On peut voir que le second régime de photosensibilité est toujours présent même après un recuit thermique. En revanche, il est intéressant de noter que si le recuit est effectué après exposition des couches d' As_2S_3 , les variations d'indice photoinduites sont maintenues, mais la valeur de la transmission aux maxima est augmentée et similaire à celle d'un substrat nu. En d'autres termes, nous venons de montrer qu'il est possible d'éliminer les pertes associées au deuxième régime de photosensibilité avec un recuit thermique.

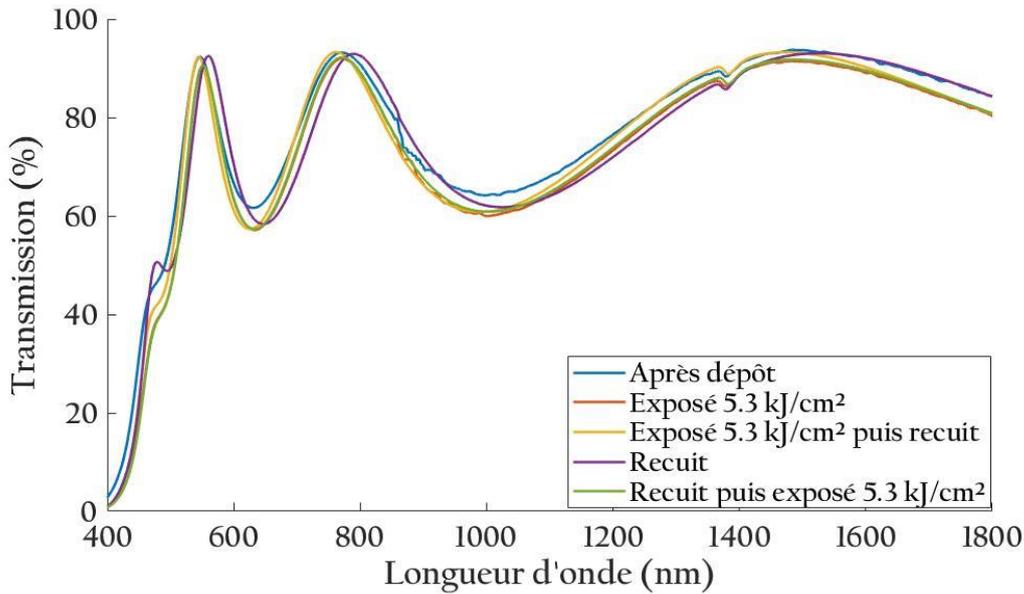


Figure 37 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche d' As_2S_3 avant et après recuit et/ou avant ou après exposition à 470 nm avec une énergie 5,3 kJ/cm²

Cette étude montre qu'il est donc possible soit de travailler dans un régime de photosensibilité produisant une augmentation de l'épaisseur optique d'une couche d' As_2S_3 soit dans un régime produisant une diminution et ce sans apparition de pertes optiques.

3.6 Stabilité des couches d' As_2S_3

3.6.1 Adhérence après dépôt

Un paramètre important concernant le dépôt de couches d' As_2S_3 sur des substrats de silice concerne l'adhérence de ces couches. En effet, il est connu que suivant les matériaux utilisés, cette adhérence peut être très différente et l'utilisation de couches d'accroches peut être nécessaire. C'est par exemple le cas de matériaux métalliques comme l'or ou l'argent qui nécessitent le dépôt d'une sous-couche d'accroche en chrome, par exemple, ou de ZnS qui nécessitent le dépôt de sous-couches d'accroche de type MgO. Lors des premiers dépôts de couches d' As_2S_3 , des tests d'adhérence au scotch ont montré une adhérence limitée de ces couches. De plus, nous avons observé que ce problème était amplifié lorsque la couche présentait une épaisseur supérieure à 1 μm , le couche se décollant sur la surface du fait des contraintes mécaniques provoquant l'apparition de paillettes (cf. Figure 38).

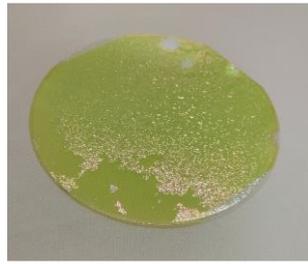


Figure 38 : Couche d' As_2S_3 de $3 \mu m$ d'épaisseur déposée directement sur un substrat de $25 mm$ de diamètre sans couche d'accroche. Illustration des problèmes de contraintes et d'adhérence des couches se traduisant par une délamination

Un test simple de tenue a été utilisé afin de valider l'adhérence des couches pour les couches moins épaisses. Nous avons utilisé pour cela un scotch avec une adhésion de l'ordre de $200 g/cm$. Les résultats obtenus pour une couche As_2S_3 de $990 nm$ d'épaisseur directement déposée sur un substrat de B270 sont montrés dans l'image de gauche de la Figure 39. On voit la zone où le scotch a été appliqué et la couche retirée.

Nous avons donc développé un couche d'accroche d'un matériau différent pour améliorer cette adhérence. Notre choix s'est porté sur le dépôt d'une fine couche d'oxyde de magnésium (MgO) d'environ $2 nm$ avant le dépôt des couches d' As_2S_3 . Ce choix est motivé par le fait que c'est le matériau généralement utilisé pour améliorer l'accroche d'un autre matériau à base de soufre : le ZnS . Nous avons donc réalisé un bicouche de $2 nm$ de MgO suivi de $990 nm$ d' As_2S_3 et avons à nouveau réalisé un test au scotch de l'adhérence (Figure 39 de droite). On voit que dans ce cas, le matériau résiste au Scotch et la couche est toujours présente confirmant la validité de la méthode développée.



Figure 39 : Test au scotch d'une monocouche d' As_2S_3 de $990 nm$ d'épaisseur déposée sur un substrat de B270. A gauche sans couche d'accroche, à droite avec une couche d'accroche de $2 nm$ de MgO

3.6.2 Stabilité temporelle

Afin de pouvoir utiliser ce matériau en monocouche et multicouche, il est nécessaire d'étudier la stabilité des couches déposées avant et après exposition. En effet le matériau va être modifié durant l'exposition et la stabilité de la modification doit être validée pour assurer une utilisation pérenne de tels matériaux.

3.6.2.1 Stabilité avant exposition

La première étape est d'étudier la stabilité dans le temps d'une couche d' As_2S_3 non exposée à un rayonnement actinique. Nous avons donc protégé les couches dans un lieu fermé et à l'abri de toutes expositions.

La Figure 40 présente la courbe de transmission spectrale d'une couche d' As_2S_3 de 990 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de silice juste après dépôt et avant toutes exposition. Nous avons ensuite remesuré cette même réponse spectrale un jour après fabrication, une semaine après et enfin un mois plus tard. On peut voir que la transmission est modifiée de manière négligeable, les fluctuations étant comparables aux précisions de mesure. Ces résultats montrent que les couches d' As_2S_3 déposées sont stables dans le temps.

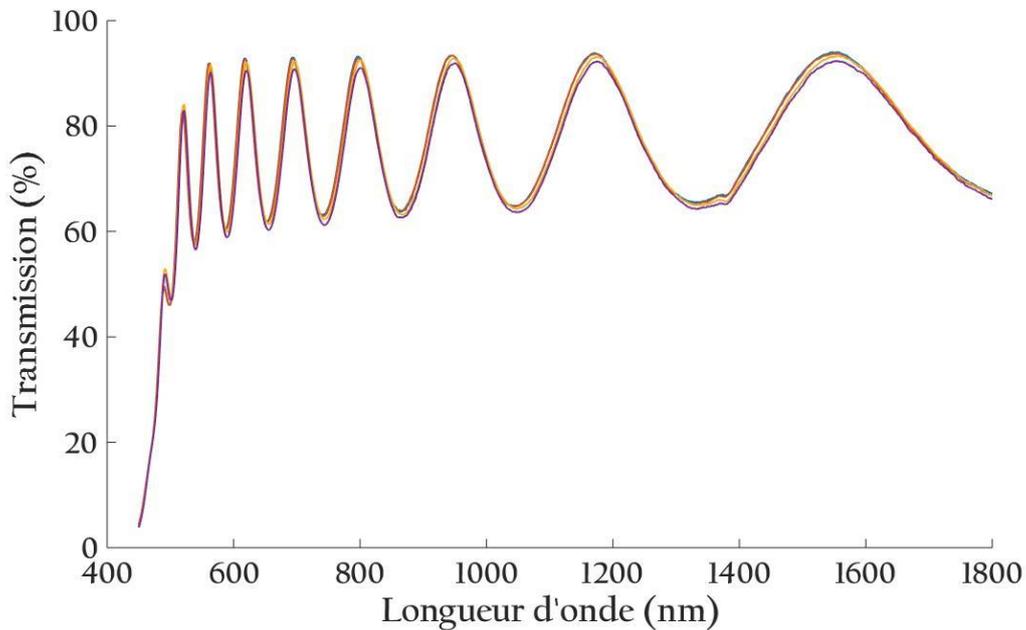


Figure 40 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche de 990 nm d' As_2S_3 : en bleu après dépôt, en rouge après une journée de stockage, en jaune après une semaine de stockage et en violet celle après un mois de stockage

3.6.2.2 Stabilité après exposition

La stabilité temporelle des couches après dépôt et exposition est un autre paramètre important à prendre en compte. Nous avons donc effectué une mesure de la dépendance spectrale de la transmission après modification pour les deux régimes de modification (la première pour une exposition de 110 J/cm^2 et la seconde pour une exposition de $5,3 \text{ kJ/cm}^2$) juste après exposition et un mois après (Figure 41).

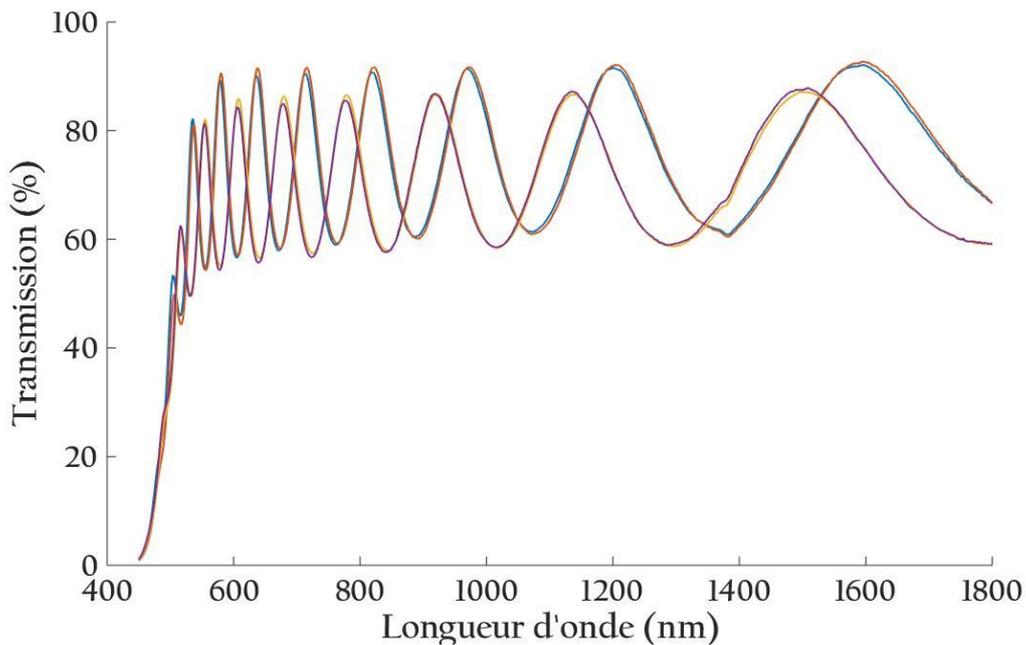


Figure 41 : Dépendance spectrale de la transmission d'une couche de 990 nm d'As₂S₃ exposée à 470 nm à saturation pour les deux régimes, c'est-à-dire pour des doses égales : à 110 J/cm² : en bleu après exposition et en rouge après une mois de stockage – et à 5,3 kJ/cm² : en jaune après exposition et en violet celle après un mois de stockage

On peut remarquer que pour les deux régimes de modifications, les spectres de transmission sont stables dans le temps.

En conclusion, nous avons donc montré que les couches d'As₂S₃ déposées sont stables dans le temps et que les modifications photoinduites sont elles aussi stables. Ces couches pourront donc être utilisées pour le développement de composants optiques de volume.

3.7 Composants binaires et sauts de phase

Jusqu'à maintenant, nous nous sommes exclusivement intéressés aux variations photoinduites des spectres de transmission mesurés sur des monocouches d'As₂S₃. La dernière étape de cette étude a consisté à déterminer de manière directe la capacité de générer des déphasages importants à l'aide des phénomènes photoinduits présentés ci-dessus. Pour ce faire, deux types de composants binaires ont été créés : le premier permet de produire un déphasage de 0 à $\pi/6$ à l'aide du premier régime de photosensibilité tandis que l'autre composant permet de produire un déphasage de 0 à $-\pi/6$ à l'aide du second régime de photosensibilité. Ces structures ont été fabriquées pour accéder à un saut de phase à 633 nm. Cette valeur de variation déterminée correspond aux variations photoinduites accessibles dans des couches

d' As_2S_3 de $1 \mu m$ d'épaisseur utilisée pour cette étude de la photosensibilité. L'obtention de valeurs supérieures nécessiterait le développement de couches plus épaisses (cf. Chapitre 5)

3.7.1 Montage de caractérisation du déphasage (Mach-Zehnder)

Afin de valider la réalisation de composants binaires, un système de mesure de phase composé d'un interféromètre Mach-Zehnder [136] (Figure 42) illuminé avec un laser HeNe à 633 nm (longueur d'onde de fabrication des sauts de phase) a été développé. A l'aide de ce système, il est ainsi possible de convertir un décalage des franges d'interférences entre une zone exposée et une zone non exposée en un changement de phase.

Afin d'avoir un accès direct au déphasage pendant l'exposition, une caméra CCD a été placée dans le plan d'interférences et une système d'exposition à 470 nm (ou 532 nm) a été ajouté afin de produire la modification de phase voulue. Ce faisceau est masqué pour moitié afin de produire 2 zones distinctes : exposée et non exposée. De plus, afin de minimiser les effets de diffraction par l'interface zone exposée / zone non exposée, une lentille a été ajoutée afin d'imager l'échantillon (et donc le saut de phase) directement sur la caméra CCD. Ce montage modifié est montré dans la Figure 42.

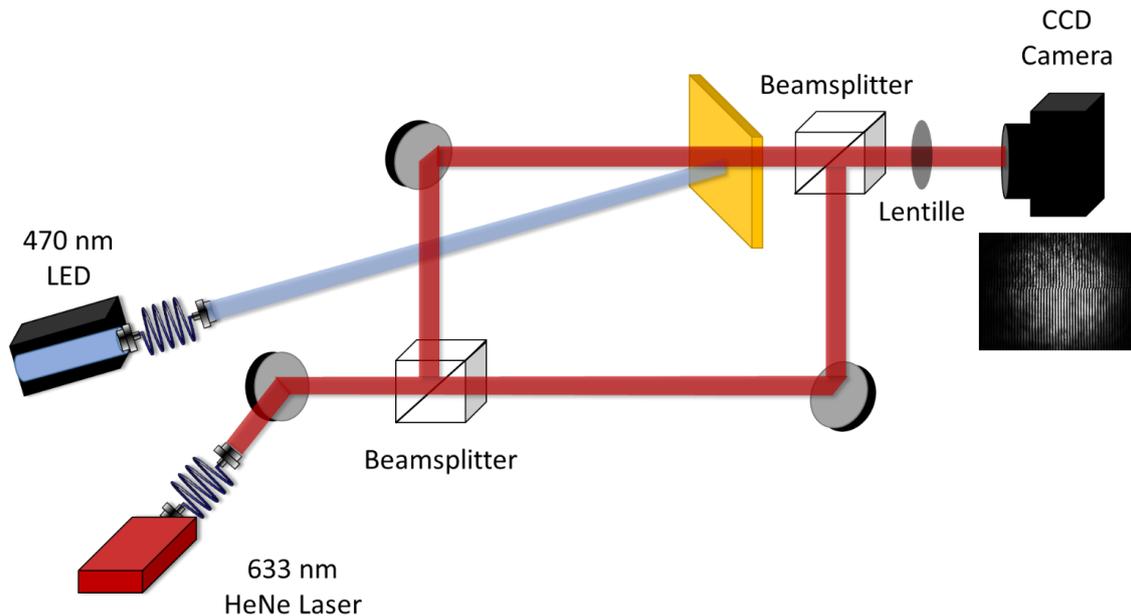


Figure 42 : Montage Mach-Zehnder modifié pour la mesure du saut de phase à 633 nm produit lors de l'exposition d'une couche d' As_2S_3 avec faisceau d'exposition à 470 nm

Les franges et l'échantillon sont donc directement visibles sur la caméra. Ce montage a permis la réalisation et visualisation des interférogrammes de divers composants à saut de phase binaires.

3.7.2 Composants binaires à saut de phase : $0 \rightarrow \pi/6$ et $0 \rightarrow -\pi/6$

Afin de réaliser des composants binaires à saut de phase : $0 \rightarrow \pi/6$ et $0 \rightarrow -\pi/6$, nous avons utilisé des échantillons de monocouche d'As₂S₃ de 990 nm identiques à ceux de la Figure 28. Ces échantillons ont alors été exposés pour différentes doses d'énergie afin d'obtenir le déphasage voulu.

La Figure 43 présente les interférogrammes mesurés sur chaque échantillon. Dans les deux cas, on obtient un décalage des franges entre la partie supérieure de l'image et la partie inférieure. La zone de transition est illustrée par une ligne rouge sur chacun des interférogrammes. Dans le cas de la Figure de gauche ce décalage est vers la droite et correspond, avec le réglage effectué, à un déphasage positif. Une analyse par transformée de Fourier [137] du décalage des franges permet de quantifier ce déphasage. L'interférogramme de la Figure de gauche obtenu après une courte exposition (régime 1) correspond à un déphasage de $\pi/6$.

L'image de droite donne le résultat pour l'autre régime de photosensibilité. Le décalage est dans ce cas vers la gauche ce qui correspond à un déphasage négatif. En utilisant la même approche que précédemment, on peut déterminer que ce déphasage est de $-\pi/6$.

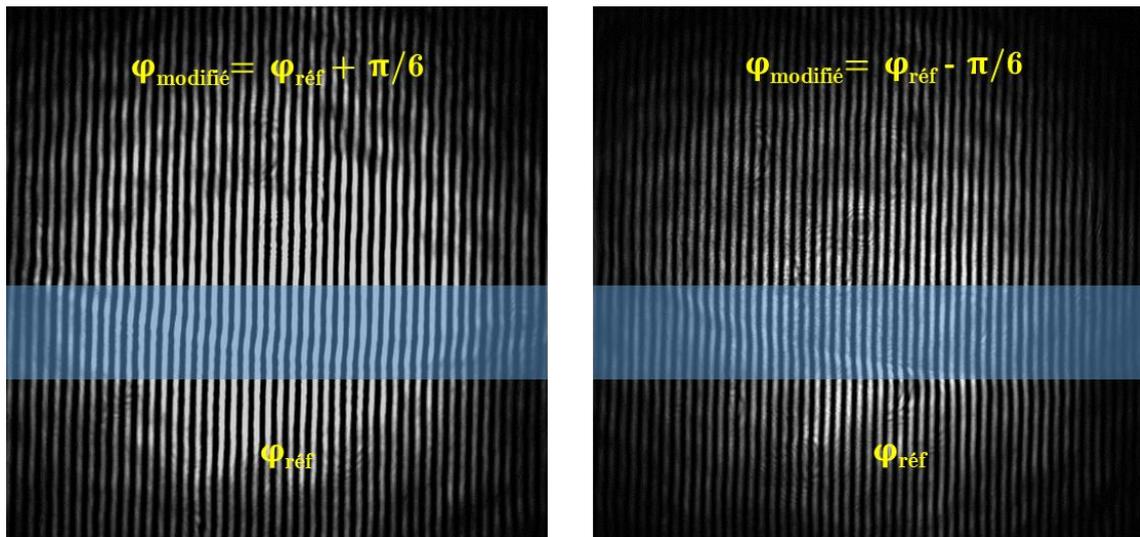


Figure 43 : Interférogrammes mesurés à 633 nm sur une couche d'As₂S₃ de 990 nm d'épaisseur exposée pour moitié à des énergies permettant de générer soit un déphasage positif de 0 à $\pi/6$ (gauche) soit un déphasage négatif de 0 à $-\pi/6$ (droite)

3.7.3 Modélisation de composants de phase binaires multicouches

Dans la suite de cette étude, nous nous sommes concentrés sur le premier régime de photosensibilité. Pour pouvoir utiliser ce principe de saut de phase pour la réalisation de composants optiques, il est nécessaire d'atteindre des déphasages d'au moins π et idéalement 2π . Cela nécessite alors d'augmenter l'épaisseur de la couche d'As₂S₃ afin d'obtenir des déphasages plus importants. Dans le cas précédent nous avons obtenu des déphasages de manière assez simple en utilisant les deux régimes de variation d'indice et sans atteindre les

effets de saturation. Pour une couche de 990 nm nous avons donc pu atteindre au moins un décalage de $\pm\pi/6$. Afin de produire des hologrammes générés par ordinateur (EODs/HSOs) binaires, il est nécessaire de générer des sauts de phase de π entre les zones exposées et non exposées [13].

En utilisant l'équation 3.2, on voit que pour obtenir au minimum ce saut de phase par variation d'indice, une épaisseur minimale de 3,2 μm est requise. Afin de rester dans le régime linéaire de photosensibilité ($\Delta n < 0,07$ à 633 nm) et de pouvoir, si nécessaire produire des déphasages de 2π à saturation, nous avons déposé une couche plus épaisse d' As_2S_3 égale à 6,3 μm . De plus, lors de l'exposition de ces couches, en plus du déphasage, la nature intrinsèque de ces couches va également produire une variation de l'intensité transmise par ces couches. Ces oscillations en réflexion et en transmission vont ajouter à l'élément de phase voulu (saut de phase) un effet d'amplitude (entre les maxima et minima on a une différence de transmission de l'ordre de 35%) comme montré dans la Figure 44.

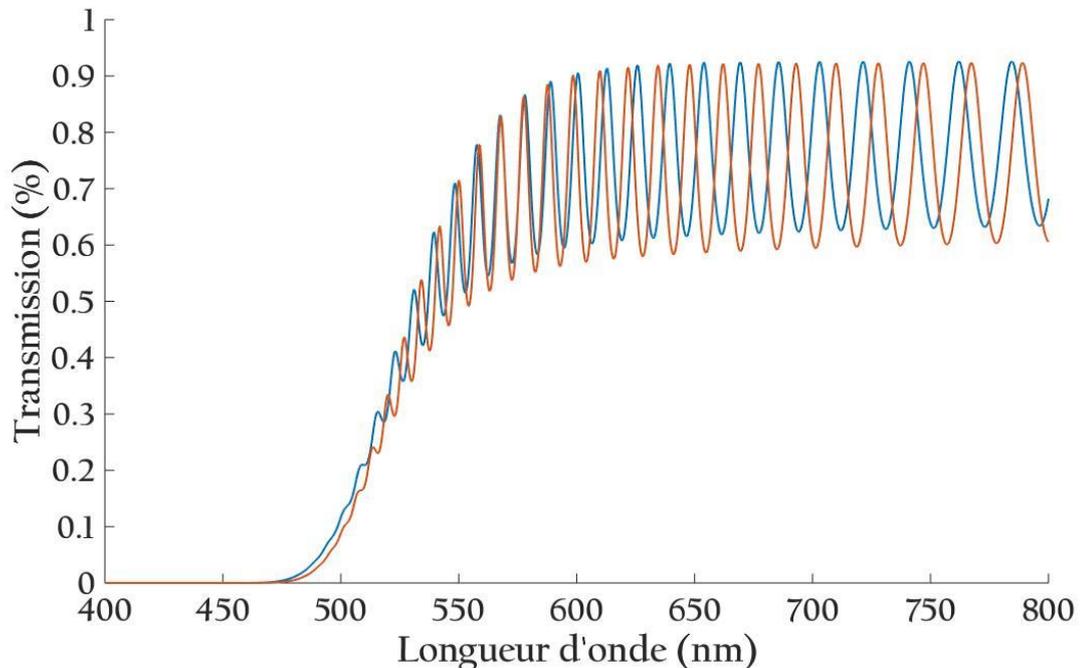


Figure 44 : Simulation de la dépendance spectrale en transmission d'une couche d' As_2S_3 de 5 μm d'épaisseur : en bleu la transmission initiale après dépôt et en rouge la transmission après variation de l'indice

On peut voir qu'après avoir atteint la variation maximale d'indice (courbe en rouge) dans le cas du premier régime de photosensibilité (qui décale le spectre de transmission vers les longueurs d'onde plus longues (cf. 3.3) l'échantillon modifié est en opposition de phase à 650 nm.

L'opposition de phase entre les courbes de réflexion et de transmission des échantillons exposés et non exposés montre bien qu'un déphasage de π a été atteint mais va également contribuer à l'efficacité des éléments optiques fabriqués.

Afin de produire, après exposition d'une couche d'As₂S₃, une variation de phase pure et sans variation d'amplitude nous avons ajouté des structures antireflets de part et d'autre de la couche. En effet, en éliminant les réflexions aux interfaces de la monocouche on peut supprimer les effets d'interférences autour de la longueur d'onde qui nous intéresse ainsi que les pertes par réflexion de Fresnel à chaque interface. Le design que nous avons utilisé pour la structure multicouche est du type :

$$\text{Substrat / AR1 / ChG / AR2 / air} \quad 3.3$$

Les deux antireflets (AR1 et AR2) sont de type « V-coating » c'est-à-dire qu'ils présentent un minimum de réflexion à la longueur d'onde pour laquelle ils sont créés avec une lente augmentation de la réflexion hors de la zone concernée. Le premier (AR1) permet de supprimer les réflexions entre la couche d'As₂S₃ et le substrat. Le second (AR2) permet de supprimer les réflexions entre l'air et la couche d'As₂S₃. Ces deux antireflets sont composés de deux couches : une première couche de ZnS (d'indice n_H et d'épaisseur t_H) et une seconde de YF₃ (d'indice n_L et d'épaisseur t_L). Le design de chaque antireflet est donné par :

$$n_s / (n_H, d_H), (n_B, d_B) / n_0 \quad 3.4$$

Dans le cas du premier antireflet (AR1), n_s est l'indice du substrat et n_0 celui de la couche de chalcogénures. Dans l'AR2, n_s est l'indice de l'As₂S₃ et n_0 celui de l'air. Les épaisseurs des couches de chaque antireflet sont calculées par annulation du facteur de réflexion à longueur d'onde de centrage de l'antireflet grâce aux formules suivantes [6] :

$$\tan^2(\delta_1) = \frac{(n_s - n_0)(n_H^2 - n_0 n_S) n_B^2}{(n_B^2 n_S - n_0 n_H^2)(n_0 n_S - n_B^2)} \quad 3.5$$

$$\delta_1 = 2\pi n_B d_B / \lambda_0 \quad 3.6$$

$$\tan^2(\delta_2) = \frac{(n_s - n_0)(n_H^2 - n_0 n_S) n_B^2}{(n_B^2 n_S - n_0 n_H^2)(n_0 n_S - n_B^2)} \quad 3.7$$

$$\delta_2 = 2\pi n_H d_H / \lambda_0 \quad 3.8$$

Avec λ_0 la longueur d'onde de centrage de l'antireflet.

Ces équations fournissent donc quatre couples de solutions pour chaque antireflet. La structure choisie est celle permettant d'atteindre les facteurs de réflexion les plus bas tout en étant compatibles avec nos moyens de fabrication.

	Indice n	Couple 1	Couple 2	Couple 3	Couple 4
ZnS	2,33	48,83	48,83	86,83	86,83
YF ₃	1,5	101,67	109,33	101,67	109,33
R à 633 nm (%)		2,11 x10 ⁻³²	0,0022	0,0022	6,2 x10 ⁻³³

Tableau 2 : Couples d'épaisseurs pour un antireflet air/As₂S₃

	Indice n	Couple 1	Couple 2	Couple 3	Couple 4
ZnS	2,33	25,16	25,16	110,51	110,51
YF_3	1,5	32,26	178,74	32,26	178,74
R à 633 nm (%)		$8,4 \times 10^{-34}$	0,1561	0,1561	$8,4 \times 10^{-34}$

Tableau 3 : Couples d'épaisseur pour un antireflet As_2S_3 /Substrat

Pour nos simulations, nous avons pris les indices de réfraction de matériaux à 633 nm, soit, pour la couche d' As_2S_3 , un indice de 2,481, pour l'air un indice de 1 et pour le substrat en silice un indice de 1,484. Certaines structures génèrent des coefficients de réflexion proches. Cependant, l'utilisation de couches moins épaisses dans une structure antireflet à deux couches comme celles étudiées ici va permettre d'obtenir un antireflet plus large bande ce qui sera bénéfique vis-à-vis des possibles erreurs de fabrication.

A partir des différentes solutions des Tableau 2 et Tableau 3, nous avons donc sélectionné pour l'AR1 le couple 1 et pour l'AR2 le couple 4. Dans le deuxième cas, nous avons en effet voulu garder un effet assez large bande à l'antireflet. Le spectre en transmission théorique a été calculé pour un centrage à 633 nm et une monocouche d' As_2S_3 d'épaisseur de 5 μm avant et après le maximum de variation d'indice. Les résultats de cette simulation avec antireflet sont présentés dans la Figure 45.

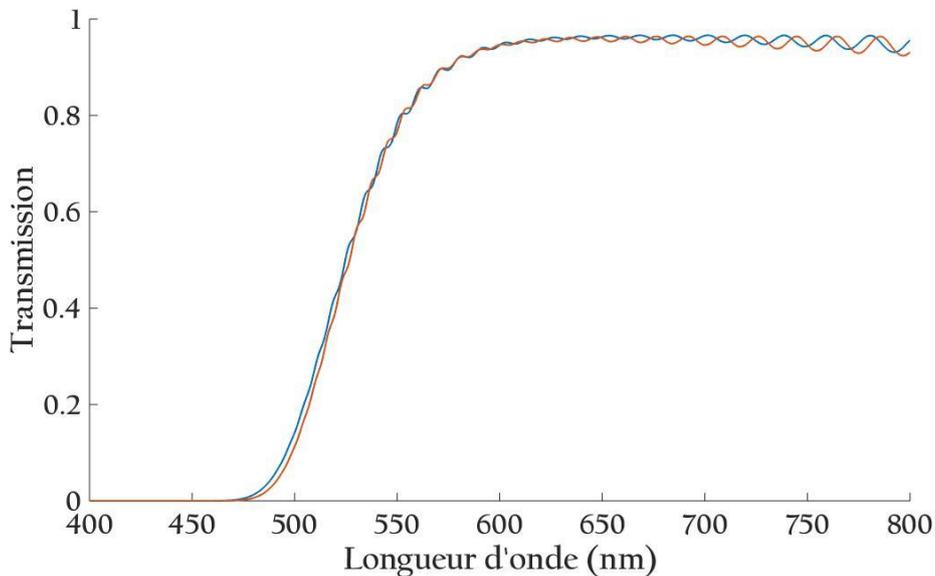


Figure 45 : Simulation de la dépendance spectrale en transmission d'une couche d' As_2S_3 de 5 μm d'épaisseur entourée de deux structures antireflet : en bleu la transmission initiale après dépôt et en rouge la transmission après variation de l'indice

On voit sur la Figure 45 que les antireflets vont, en plus de la suppression des réflexions (et donc des interférences) entre les différentes interfaces à 633 nm, aussi permettre d'avoir une transmission entre 570 nm et 800 nm supérieure à 85%. On remarque que dès que l'effet de

l'antireflet va diminuer, l'amplitude des oscillations va augmenter. C'est ce que l'on peut voir à partir de 700 nm.

On voit aussi qu'en utilisant ces antireflets, on va aussi supprimer les oscillations qui sont présentes entre 450 nm et 600 nm. La diminution des interférences dans cette bande permet d'assurer une exposition à 532 nm plus uniforme et plus efficace de la couche photosensible.

Ce design d'empilement multicouche va nous permettre de fabriquer des éléments de phase pure.

3.7.4 Démonstration expérimentale de déphasages $0 \rightarrow 2\pi$

Pour cette étude, nous avons déposé des couches de $6,3 \mu\text{m}$ d'épaisseur entourées de deux structures antireflets. Nous avons ensuite étudié les déphasages qu'il était possible de produire avec ces couches. Pour ce faire, nous avons réutilisé le montage expérimental de la Figure 42 mais avec une source d'exposition différente. L'utilisation d'une LED de 20 mW à 470 nm n'est pas optimale pour l'exposition de couches épaisses comme indiqué dans la section 3.2. En effet, (Figure 26) on sait qu'une exposition à 470 nm pour une couche épaisse ne permettra pas d'exposer la totalité de l'épaisseur de la couche de manière uniforme. La source d'exposition est dans ce cas un laser LaserQuantum de 1,5 W à 532 nm. La couche a été exposée avec un faisceau caché pour moitié comme pour l'étude précédente et le déphasage a été mesuré.

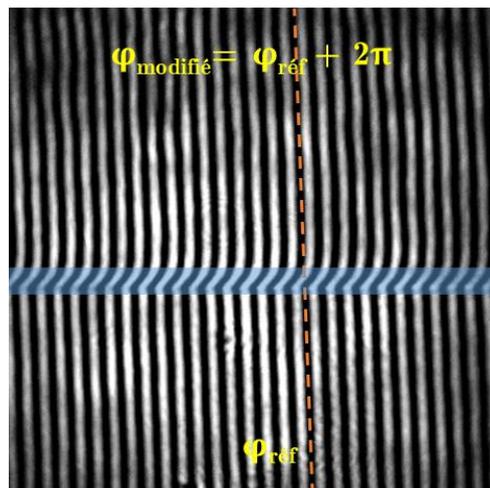


Figure 46 : Interférogramme d'un saut de phase $0 \rightarrow 2\pi$ obtenu dans une couche d' As_2S_3 de $6,3 \mu\text{m}$ d'épaisseur entourée de deux structures antireflet et exposé avec un dosage supérieur à $2,1 \text{ kJ/cm}^2$ à 532 nm

La Figure 46 montre le déphasage obtenu après une exposition et saturation du régime 1 de photosensibilité. Sur cet interférogramme, la supérieure de l'image est associée à la zone non

exposée et celle supérieure à la partie exposée. A l'interface entre les deux, on distingue le changement de phase. Ce déphasage des franges est positif et on voit que les franges se décalent d'un interfrange ce qui correspond à un déphasage de 2π entre les deux zones.

Grâce à un tel déphasage, il apparait donc même possible de produire des éléments multiniveaux présentant une plus grande efficacité [13], [30].

Nous allons donc maintenant nous concentrer sur l'utilisation et l'intégration de ce matériau photosensible dans des composants optiques tels que des filtres multicouches [138] ou des éléments diffractifs optiques.

3.8 Photo-dissolution de l'argent dans des couches d'As₂S₃

Au-delà des effets photo-induits de type changement de d'indice de réfraction, et donc changement de phase, il est possible, en combinant une couche d'As₂S₃ et une fine couche d'argent, de localement contrôler l'intensité transmise à l'aide du phénomène de photo-dissolution. Cet effet est une réaction photochimique qui se traduit par l'intégration d'une couche métallique dans une sous-couche de chalcogénures amorphe, à la suite d'une réaction d'exposition à un rayonnement adapté. Même si cet effet avait été observé bien avant cette date, les recherches sur ce sujet ont réellement débuté en 1971, année où elle avait été proposée pour la première fois comme méthode de photo-microfabrication [139]. Il a ainsi été prouvé que plusieurs combinaisons de métaux et de chalcogénures entraînaient des phénomènes de photo-dissolution, avec des efficacités et des effets dépendant des matériaux impliqués. Cependant, il a été démontré que l'argent produisait les taux plus élevés de photo-dissolution [140]. Dans le Tableau 4, différentes possibilités de combinaison de métaux et de chalcogénures sont présentées ainsi que leur capacité à produire une photo-dissolution [43]

	Cu	Ag	Zn	Cd	Ga	In	Bi	Te	Cr	Ni
As ₂ S ₃	M	G	-	M	M	-	M	M	-	M
As ₂ Se ₃	M	M	-	M	-	M	M	-	-	M
As ₂ Te ₃	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Sb ₂ S ₃	-	-	-	M	-	-	-	-	-	-
Sb ₂ Se ₃	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

Tableau 4 : Combinaisons explorées entre un métal et un verre de chalcogénures. G signifie bonne photo-dissolution, M signifie que l'effet existe mais avec une faible efficacité et - indique qu'aucune photo-dissolution n'a lieu

Dans ce travail, l'As₂S₃ a été choisi comme chalcogénures pour l'étude de la photo-dissolution et le développement d'éléments optique. Ce choix repose sur deux raisons principales. Tout d'abord c'est le premier chalcogénure découvert à produire de la photo-dissolution et il existe une littérature très étoffée sur le domaine. D'autre part, il a été prouvé que les composés comprenant du soufre permettaient une photo-dissolution plus rapide de l'argent [141], [142]. Les mécanismes de photo-dissolution de l'argent dans les couches d'As₂S₃ restent à élucider et à confirmer. Même si certains modèles ont été proposés dans la littérature, la plupart s'accordent sur la cinétique suivie par le processus. Par conséquent, la photo-dissolution est généralement divisée en trois étapes [67], [141], [143]:

- une étape d'induction sans dissolution de l'argent qui prépare le chalcogénures et active chimiquement l'argent,
- une étape de photo-dissolution appropriée où l'argent migre vers l'As₂S₃
- une étape finale où le processus est ralenti et se termine.

Le mécanisme de photo-dissolution s'explique généralement par la formation d'une couche chargée positivement constituée d'ions argent Ag⁺ et d'une couche d'As-S chargée négativement des deux côtés de l'interface illuminée [144]. Le faisceau laser détache l'argent qui pénètre alors dans la couche de chalcogénures sous forme d'ions argent. L'accumulation de charges positives crée ensuite un gradient de charges faisant dériver les ions argent vers l'intérieur du film d'As₂S₃. Cependant, de nombreux autres mécanismes alternatifs ont été proposés et l'origine exacte de cet effet reste à être confirmé [141], [144]–[146].

Le profil de concentration en Ag photo-dissous est un sujet d'intérêt. En utilisant différentes techniques pour évaluer la composition du matériau, il a été démontré que le matériau original pouvait être divisé en deux régions : une zone constituée d'As₂S₃ dopé à l'argent avec une concentration constante en argent et une seconde zone où l'As₂S₃ reste inchangé [9]. La concentration atomique dans la zone photo-dopée peut atteindre des valeurs notables comprises jusqu'à 40% [147].

Dans ce travail, nous sommes partis de configurations connues dans la littérature pour produire cet effet. L'idée n'était pas d'étudier ce phénomène mais plutôt de l'utiliser lors de la fabrication d'éléments diffractifs optiques. Un empilement constitué d'une couche d'argent et d'une couche d'As₂S₃ a été fabriqué à l'aide de la machine SYRUSpro 710. L'épaisseur de la couche d'As₂S₃ a été fixée à 400 nm tandis que celle de la couche d'argent était égale à 40 ou 80 nm (Figure 47). Nous avons cependant axé nos études sur les couches de 80 nm car elles permettent d'obtenir une meilleure opacité des couches avant photo-dissolution. Les vitesses de dépôt ont été maintenues constantes pendant le dépôt et fixées à 0,7 nm/s pour la couche d'As₂S₃ et 0,5 nm/s pour la couche d'argent. Afin de protéger la structure, une fine couche de protection de 10 nm de silice a enfin été déposée à une vitesse de 0,5 nm/s.

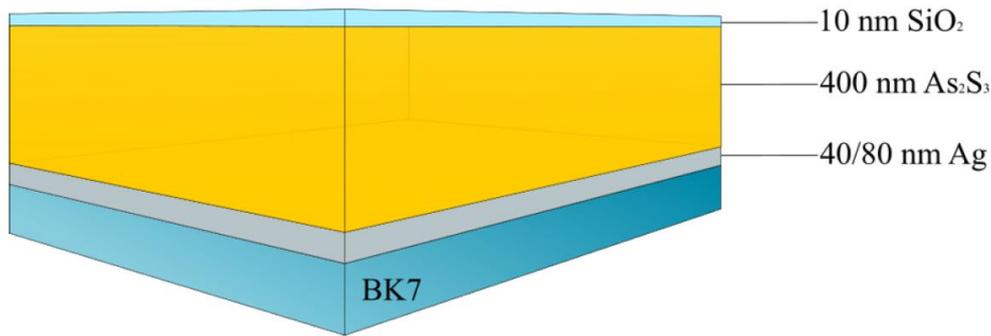


Figure 47 : Exemple de la structure qui a été fabriquée pour l'étude de la photo-dissolution de l'argent dans des couches d' As_2S_3

L'échantillon a ensuite été exposé avec une source lumineuse du côté de la couche de chalcogénures afin de maximiser la densité de puissance à l'interface entre la couche mince d'argent et celle d' As_2S_3 .

Pour l'étude cinétique, nous avons utilisé un système optique simple constitué d'une source de lumière, d'un diaphragme et d'un porte-échantillon fixant la position afin de maintenir la distance à la source à une valeur constante. Une LED bleue de longueur d'onde émettant à 470 nm et d'une puissance de sortie de 20 mW a été utilisée comme source de lumière. Cette longueur d'onde garantit une absorption plus élevée dans la couche d' As_2S_3 de sorte à obtenir des effets photoinduits rapides. Différents échantillons ont été exposés avec des intervalles de temps spécifiques. Ensuite, des mesures de transmission ont été effectuées après chaque étape de l'exposition. De plus, un échantillon a été partiellement exposé sur une surface d'environ 1 mm sur 1 cm, puis maintenu dans l'obscurité pour vérifier la stabilité du matériau photo-dopé dans le temps, et ainsi vérifier qu'il ne se produit pas de processus supplémentaires de dissolution et de diffusion dans le temps. Après plus de 6 mois, aucune modification n'a pu être reportée.

Les spectres de transmission ont été obtenus en utilisant le spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050 en mesurant entre 450 nm et 850 nm avec une résolution spectrale de 5 nm. La procédure a consisté à exposer les échantillons par pas d'une minute pendant une période totale de 18 minutes, c'est-à-dire jusqu'à atteindre la photo-dissolution apparente complète. Ensuite, deux étapes supplémentaires de 2 et 9 minutes ont été ajoutées afin de s'assurer de la photo-dissolution complète. L'évolution des spectres de transmission en fonction du temps d'exposition à 470 nm est illustrée à la Figure 48.

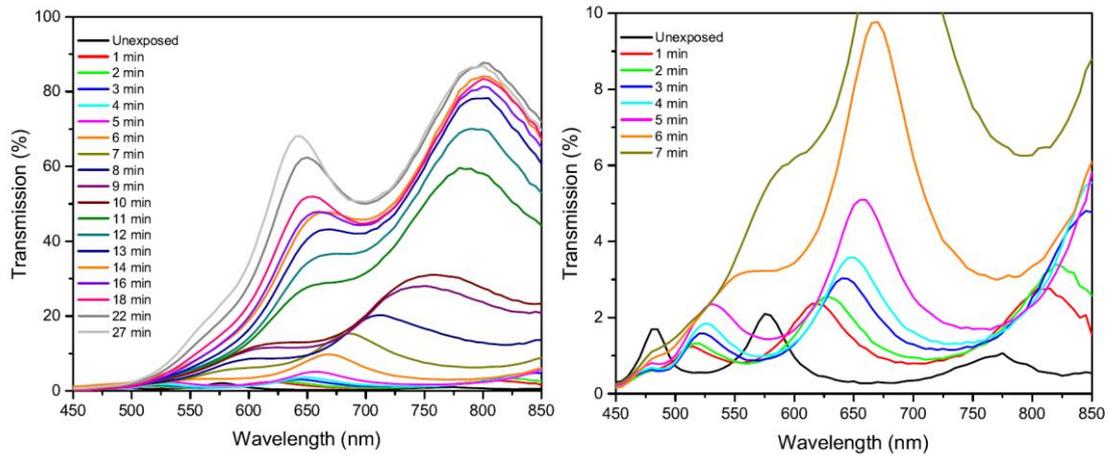


Figure 48 : Evolution des spectres de transmission d'un bicouche $As_2S_3 + Ag$ lors d'une exposition à une LED à 470 nm

L'effet principal est une augmentation de la transparence de l'échantillon au fur et à mesure que le temps d'exposition augmente, mais d'autres effets se produisent, tels qu'un décalage vers le rouge du spectre. On voit ainsi que la transmission à 650 nm passe d'une valeur inférieure à 1% à une valeur supérieure à 70%. Bien qu'il semble qu'aucun effet ne se soit produit sur les moments initiaux, une analyse plus précise pendant les 7 premières minutes montre que l'augmentation de la transparence et le décalage vers le rouge se produisent dès le début de l'exposition (Figure 48 de droite).

De plus, plusieurs études [43], [141], [142] ont rapporté un déplacement du spectre de transmission vers de plus grandes longueurs d'ondes lorsque le trisulfure d'arsenic est dopé à l'argent. La Figure 48 présente le même effet sur les échantillons totalement dopés. La similitude des courbes est évidente, démontrant que le chalcogénure a été photo-dopé avec tout l'argent disponible.

Nous avons ensuite analysé les courbes de transmission. Par modélisation de la courbe de transmission avant et après exposition complète, il est possible d'extraire l'épaisseur de chacune des couches (Figure 49). Avant exposition, on peut montrer que l'épaisseur de la couche d' As_2S_3 est effectivement de 355 nm, tandis que celle de la couche d'argent est égale à 74 nm. Après photo-dissolution complète, l'épaisseur totale de l'empilement a été à nouveau déterminée et est égale à 428 nm. On peut voir qu'il ne s'est pas produit de changement significatif de l'épaisseur de l'empilement car avant exposition l'épaisseur totale était d'environ 430 nm et après exposition elle est de 428 nm.

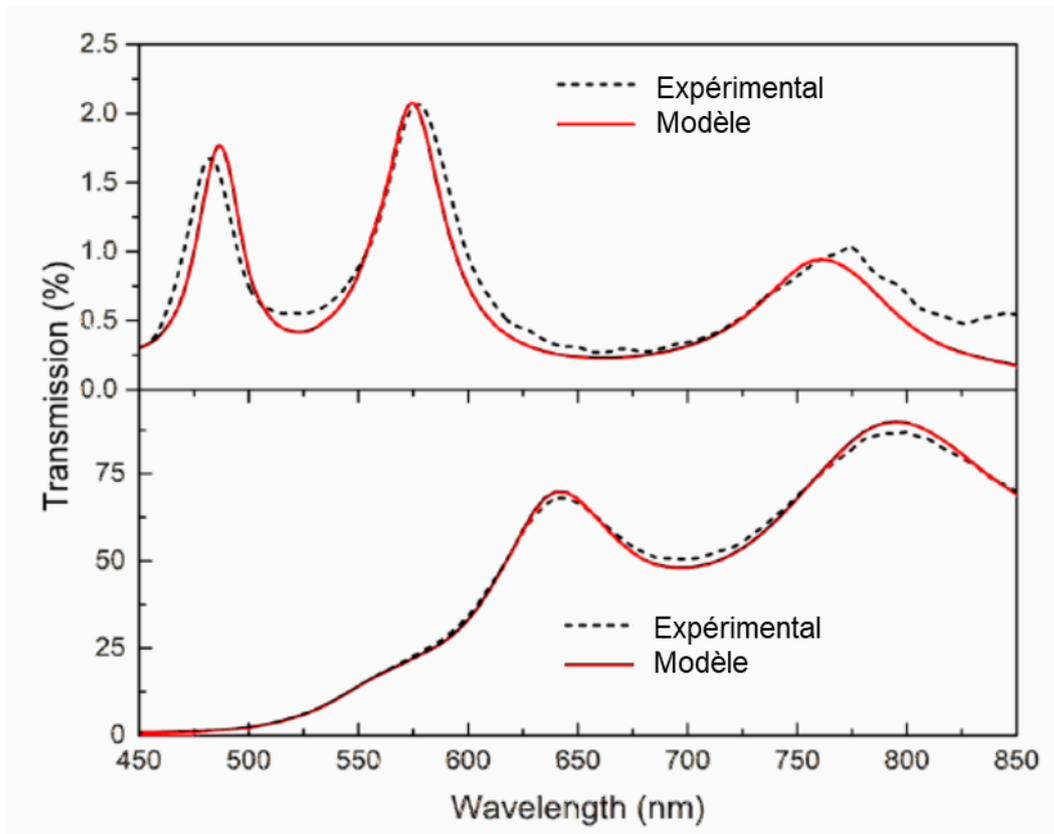


Figure 49 : Spectres de transmission calculés (courbe rouge) et expérimentaux (courbe noire) d'un bicouche $As_2S_3 + Ag$ avant exposition (haut) et après exposition à 470 nm (bas).

On voit donc qu'à l'aide de ce phénomène, il sera possible de réaliser une structuration des couches d' As_2S_3 et d'argent afin de produire des zones présentant diverses transmissions.

Chapitre 4

Filtres optiques interférentiels multicouches

4.1 Introduction

Depuis une vingtaine d'années, les méthodes de fabrication et la complexité des filtres optiques à base de couches minces optiques ont connu des progrès importants. Les couches peuvent maintenant être contrôlées avec une précision de l'ordre du nanomètre, même pour des empilements allant jusqu'à plusieurs centaines de couches. Cependant, les spécifications de ces filtres deviennent de plus en plus exigeantes, notamment concernant leur uniformité, ce qui nécessite un meilleur contrôle des processus pendant le dépôt. Les performances spectrales d'un filtre sont directement liées à l'épaisseur optique de chaque couche et les performances sont fixées lors de la réalisation du filtre. De plus, en raison des variations de l'épaisseur déposée sur la surface du substrat, les performances des filtres par conséquent varient. Ce problème est particulièrement important dans le cas des filtres à bande passante étroites (cf. 1.1.3.4). En effet, on peut montrer [148] que la variation relative de la longueur d'onde centrale (λ) d'un filtre passe-bande est directement liée à la variation relative de l'épaisseur (nd) de sa cavité :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \kappa \frac{\Delta(nd)}{nd} \quad 4.1$$

Où κ est un facteur prenant en compte la dérivée de dispersion de phase à la réflexion des miroirs que nous avons considérée, dans un premier temps comme égale à un dans cette thèse. A ce jour, les meilleures techniques de dépôt permettent d'assurer une variation de l'ordre de

quelques 0,1% de l'épaisseur sur une surface de diamètre 100 mm [14]. Ce défaut d'uniformité entraîne une variation de la longueur d'onde centrale de quelques nanomètres pour un filtre centré à 1 μm . Mais la plupart des techniques de dépôt standard telles que l'évaporation aboutissent généralement à des défauts d'uniformité de l'ordre de 1% sur une surface de diamètre 100 mm. De ce fait, il n'est en effet pas facile, voire impossible de fabriquer des filtres de grandes surfaces suffisamment uniformes avec une bande-passante inférieure à 10 nm.

Au vu des caractéristiques des matériaux présentés précédemment, nous allons, dans cette partie, montrer que l'utilisation de matériaux photosensibles peut nous permettre de surmonter cette limitation. En effet les propriétés de photosensibilité des couches à base d' As_2S_3 permettront une correction a posteriori de leur épaisseur optique locale.

Le concept d'une telle approche a été introduit il y a quelques années dans l'équipe Couches Minces Optiques de l'Institut Fresnel [149] et une première preuve de concept a été publiée il y a environ 10 ans [150]. Cette approche repose sur la fabrication de filtres passe-bande à base de matériaux photosensibles qui permettent, après fabrication du filtre, de corriger localement la longueur d'onde centrale du filtre en utilisant un changement d'indice de réfraction. Toutefois, dans la réf [150], seul un filtre passe-bande simple cavité uniforme de petite section de $5 \times 5 \text{ mm}^2$ a été démontré. De plus, aucune étude systématique de l'extension de cette méthode à des filtres plus complexes n'a été démontrée à ce jour.

Nous présentons dans ce chapitre une analyse approfondie de la fabrication de filtres à bande passante étroite uniformes. Compte tenu de la gamme de transparence des matériaux utilisés et des équipements disponibles, les composants réalisés sont des filtres passe-bandes centrés à 800 nm. Dans ce Chapitre, nous présentons d'abord le design et la fabrication de filtres Fabry-Perot simple cavité à base de couches minces d' As_2S_3 . Ensuite nous verrons en quoi les propriétés de photosensibilité des couches d' As_2S_3 peuvent nous permettre de proposer une méthode de correction locale automatique d'un filtre passe-bande. Nous démontrerons ici la possibilité de réaliser un filtre carré très uniforme de $60 \times 60 \text{ mm}^2$ avec une bande passante de 5 nm et des fluctuations de $\pm 0,05\%$ de la longueur d'onde de centrage. Enfin nous verrons comment cette approche peut être étendue à la correction de filtres passe-bande multi-cavités.

4.2 Filtre Fabry-Perot à base de couches d' As_2S_3

4.2.1 Design de la structure

Dans la partie 1.1.3.4, nous avons introduit le principe ainsi que les caractéristiques d'un filtre passe-bande basé sur une structure de type Fabry-Perot. Le filtre Fabry-Perot que nous allons réaliser dans cette partie sera donc basé sur une cavité fabriquée à base de matériau photosensible (As_2S_3) entourée par deux miroirs quart d'onde à base de matériaux standards. Nous avons calculé la formule de l'empilement permettant d'obtenir un filtre avec une largeur

à mi-hauteur (FWHM) qui soit assez fine (≤ 4 nm) et centré à longueur d'onde de 800 nm. Les paramètres choisis permettront à la fois de mettre en évidence la qualité des filtres réalisés (un filtre étroit étant beaucoup plus sensible aux pertes et inhomogénéités d'indice de réfraction) mais également de clairement visualiser le défaut d'uniformité et sa correction.

Pour le design de ce premier filtre à base d' As_2S_3 , nous avons décidé d'utiliser comme matériaux haut et bas indice pour les miroirs des matériaux communs à savoir le Nb_2O_5 et le SiO_2 .

Le filtre considéré ici est constitué d'une simple cavité Fabry-Perot selon la formule donnée ci-dessous :

$$\text{M8} / 4 \text{ ChG} / \text{M8}$$

4.2

où les miroirs M8 sont composés de couches quart d'onde haut indice H de Nb_2O_5 , de couches quart d'onde bas indice L de SiO_2 et la cavité ChG est une couche d' As_2S_3 quart d'onde. Toutes ces couches sont quart d'onde à 800 nm. Un tel filtre génère une bande passante étroite avec une largeur à mi-hauteur (FWHM) de 4 nm. La Figure 50 présente la dépendance spectrale de la transmission du filtre considéré ici entre 450 nm et 1100 nm.

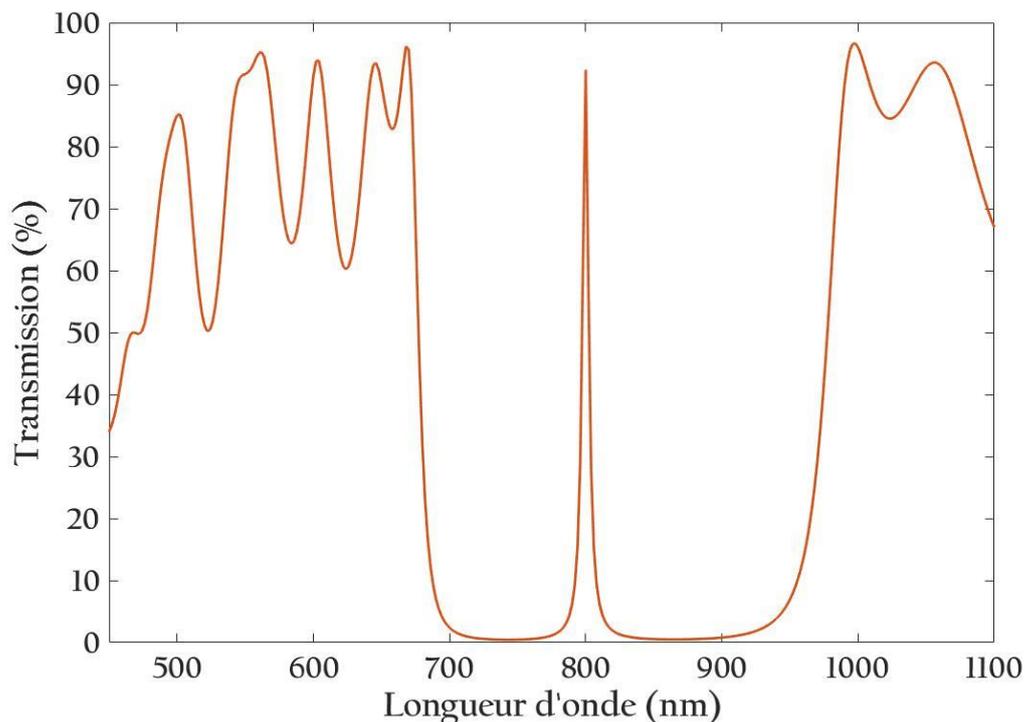


Figure 50 : Dépendance spectrale de la transmission d'un filtre Fabry-Perot à une cavité ayant la formule $\text{M8} / 4 \text{ ChG} / \text{M8}$

4.2.2 Fabrication d'un prototype

La fabrication de l'empilement précédent (cf. Figure 50) a donc été effectuée par dépôt par faisceau d'électrons dans une machine Bühler SYRUSpro710. Pour ce qui est des dépôts des

miroirs, ils ont été obtenus par évaporation par faisceau d'électron assistée par plasma. L'ensemble du dépôt a été contrôlé à l'aide d'un système de contrôle optique (OMS 5000 de Bühler) et la vitesse de dépôt a été contrôlée par un système de microbalance à quartz. Un prototype de ce filtre a été fabriqué au sein de la plateforme technologique de l'Espace Photonique sur un substrat de verre de 4 pouces (soit 100 mm) de diamètre. Le dépôt sur une surface aussi grande va nous permettre d'étudier et caractériser l'uniformité du dépôt et de démontrer que la correction de l'épaisseur optique locale de la cavité par variation de son indice de réfraction local permet de réaliser des filtres à bande-passe étroite uniformes de grande surface. En effet, il est bien connu que l'épaisseur des couches déposées varie en fonction de la surface du filtre, ce qui entraîne une variation des performances spectrales. Un tel effet devient perceptible et non négligeable avec des filtres de grande surface.

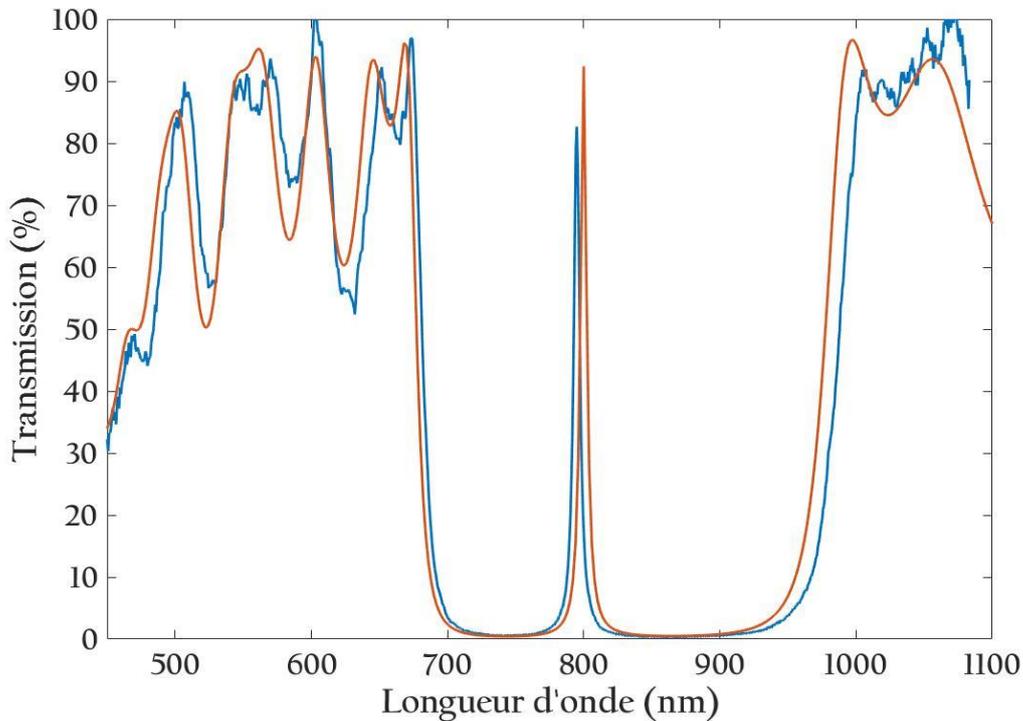


Figure 51 : Dépendance spectrale de la transmission d'un filtre Fabry-Perot MS / 4 ChG / MS. En rouge la transmission théorique et en bleue la transmission expérimentale

Après le dépôt, le filtre a été caractérisé avec un spectrophotomètre Perkin Elmer Lambda 1050 entre 450 et 1100 nm. La Figure 51 montre la dépendance spectrale mesurée (courbe bleue) et théorique (courbe rouge) de la transmission du filtre. On peut voir que la courbe de transmission expérimentale globale est très similaire à celle qui a été théoriquement calculée. Cependant, on peut voir que la longueur d'onde centrale est décalée vers les courtes longueurs d'onde après dépôt et que les miroirs sont décalés vers les grandes longueurs d'onde. Cette observation montre que même si les erreurs de fabrication sont faibles, il existe des erreurs des épaisseurs au niveau de chacune des couches des miroirs et en particulier de la cavité. De

plus, comme le contrôle optique a été effectué sur un verre témoin différent, cette erreur peut également être dû à la non-uniformité inhérente au dépôt et à la machine (cf. 2.1.3).

4.2.3 Choix de la taille du faisceau d'exposition et de mesure

Afin de pouvoir contrôler et modifier localement la longueur d'onde de centrage du filtre fabriqué, nous avons dans un premier temps évalué la taille du faisceau qui sera utilisé pour effectuer cette correction. Pour ce faire, nous avons considéré les performances que nous souhaitons obtenir pour le filtre final ainsi que le défaut d'uniformité associé à la technique de dépôt.

Un premier test de dépôt de filtre a permis de démontrer que la longueur d'onde de centrage du filtre se décale de 43 nm sur une surface de 80 mm de diamètre ce qui correspond un décalage de 0,54 nm/mm ou 0,06%/mm.

Nous avons donc simulé l'influence de la taille du faisceau de mesure sur la réponse spectrale mesurée. Pour ce faire, nous avons calculé l'intégrale de la transmission d'un filtre en prenant en compte le décalage mentionné ci-dessus en fonction de la taille du faisceau de lecture. La Figure 3 présente les performances du filtre pour un faisceau de 1 mm, 2 mm, 5 mm et 10 mm.

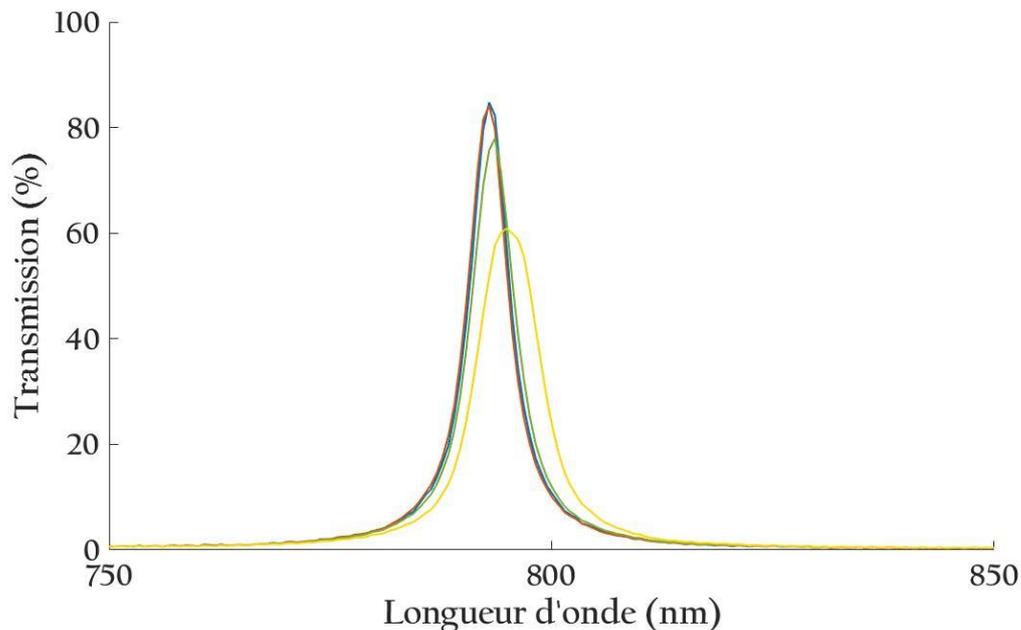


Figure 52 : Influence de la taille du faisceau de mesure sur la réponse spectrale en transmission d'un filtre Fabry-Perot MS / 4 ChG / MS : en bleu la transmission mesurée avec un spot de 1 mm de diamètre, en rouge celle mesurée avec un spot de 2 mm de diamètre, en vert avec un spot de 5 mm de diamètre et en jaune de 10 mm de diamètre

Dans le cas où le faisceau présente un diamètre inférieur ou égal à 2 mm, la réponse spectrale du filtre est peu affectée. On voit donc que si l'on souhaite utiliser ce filtre avec un faisceau de très large section, il sera nécessaire de le corriger avec un spot de petite taille. Nous avons

donc opté pour la correction avec un spot de 1,5 mm de côté, ce qui devrait permettre de résulter en une uniformité de l'ordre de 0,05%.

4.2.4 Système expérimental automatisé d'exposition et de mesure locale de la réponse spectrale du filtre

Afin de caractériser la réponse spectrale locale du filtre et ainsi caractériser son uniformité, nous avons développé un dispositif expérimental dédié (Figure 53).

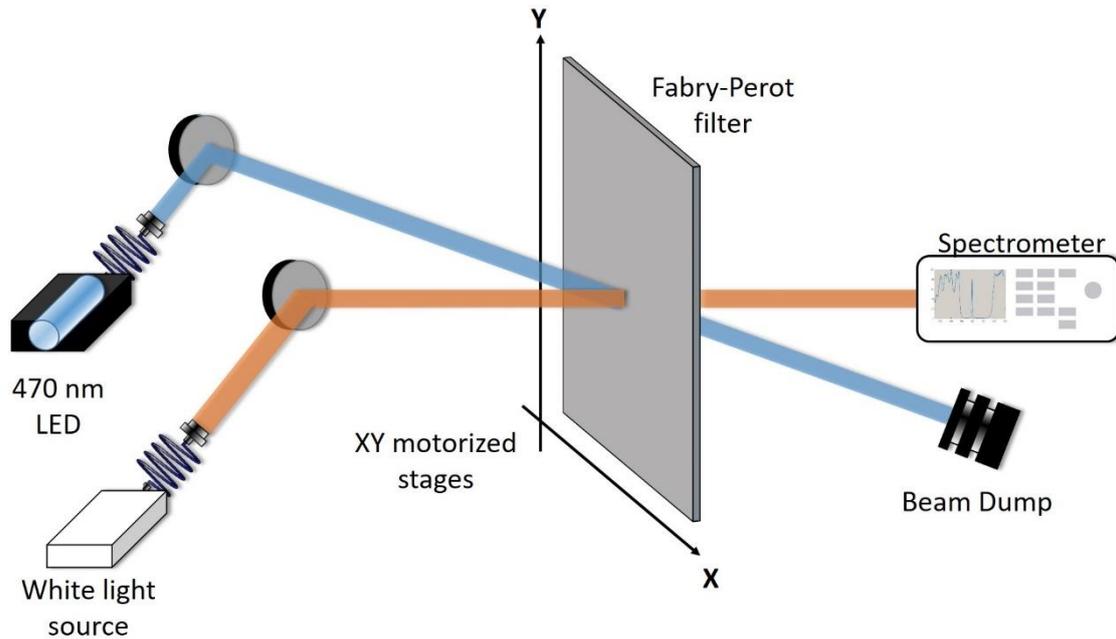


Figure 53 : Schéma du dispositif expérimental pompe/sonde utilisé pour caractériser les performances spectrales locales en transmission du filtre et corriger la longueur d'onde centrale locale du filtre.

Il est composé d'une source de lumière blanche collimatée. Le faisceau de lumière blanche passe à travers un trou carré d'environ 1,5 mm de côté puis est filtré à travers un filtre qui permet de supprimer les courtes longueurs d'ondes qui pourraient modifier l'indice de réfraction de la couche d' As_2S_3 par photosensibilité. Le faisceau transmis est ensuite collecté dans une seconde fibre, envoyé à un spectromètre VIS-NIR de Wasatch Photonics et analysé dans la gamme spectrale [550-1100] nm avec une résolution spectrale de 0,6 nm. Nous avons ajouté au système spectrophotométrique (système de sonde) un système d'exposition (système de pompe) composé d'une LED bleue de 20 mW émettant à 470 nm. Le faisceau permettant l'exposition est lui aussi carré et d'une surface comparable à celle utilisée pour la caractérisation. Il se superpose exactement avec la surface du faisceau de caractérisation sur le filtre. L'échantillon est placé sur deux platines en translation motorisées afin de scanner la transmission locale du filtre sur toute sa surface. Ce montage est automatisé grâce à un programme Labview qui va changer la position du filtre une fois que le filtre aura été modifié

de la quantité convenue. Ces mesures et expositions sont faites en continu jusqu'à modification sur toute la surface du filtre.

4.2.5 Mesure de l'uniformité du filtre après dépôt

Grâce au montage décrit dans la partie précédente, nous avons d'abord effectué une mesure de l'évolution de la réponse spectrale locale en transmission sur la surface du filtre. Cette mesure permet de quantifier la non-uniformité du filtre sur toute la surface utile. La dépendance spectrale locale de la transmission a ainsi été mesurée sur 1600 points de $2,2 \text{ mm}^2$ correspondant à une surface de $60 \times 60 \text{ mm}^2$.

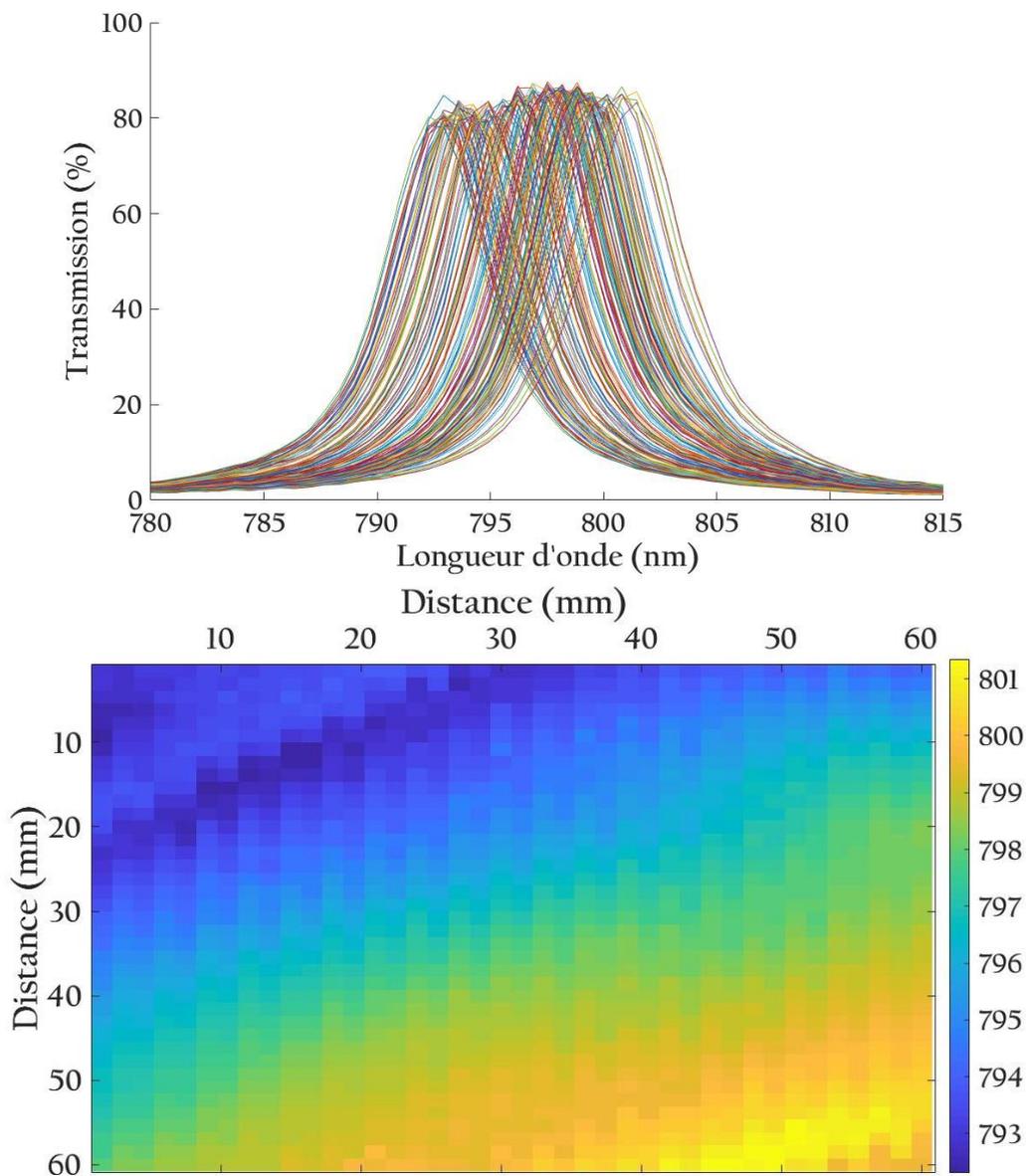


Figure 54 : (En haut) Evolution de la dépendance spectrale de la transmission mesurée sur un filtre Fabry-Perot. Chaque courbe a été mesurée sur un spot de $2,2 \text{ mm}^2$ sur une surface totale de $60 \times 60 \text{ mm}^2$ (En bas) Cartographie de la longueur d'onde centrale du filtre avant correction.

Nous avons ensuite représenté sur la Figure 54 une superposition des courbes de transmission spectrale mesurées dans la région de bande passante. On peut voir que le filtre est centré autour de 800 nm mais la longueur d'onde centrale présente des variations sur la surface du filtre allant jusqu'à 8,9 nm. Cela représente une variation de 1,1% de la longueur d'onde centrale sur la surface du filtre. Cette dispersion illustre la non-uniformité de la machine utilisée et se situe dans les performances attendues pour un tel système de dépôt. Une telle dispersion de la longueur d'onde centrale rend ce filtre inutilisable sur toute sa surface avec un large faisceau car la transmission finale résultant de l'intégration de l'ensemble de réponses spectrales locales entraînera une détérioration des performances spectrales globales du filtre. Dans ce travail, nous avons mis en œuvre une approche similaire à celle présentée par Shen et al [151] à savoir une correction locale de la transmission du filtre à l'aide d'une modification locale de l'indice de réfraction d'amplitude relative égale et de signe opposé à la variation d'épaisseur. Cependant, alors que Shen et al. ont montré cette approche sur quelques points de la surface d'un filtre de petite surface, nous avons considéré la surface globale du filtre fabriqué et utilisé le système pompe/sonde présenté dans la section 4.2.4 (Figure 53) permettant une correction automatique du filtre pour chacun des 1600 points mesurés.

4.2.6 Caractérisation de la cinétique de la variation de la longueur d'onde de centrage du filtre en fonction de l'exposition

Avant d'effectuer la modification automatisée de la longueur d'onde de centrage du filtre, il est nécessaire de connaître la cinétique et l'amplitude de cette variation en fonction de la dose d'exposition.

Nous avons donc exposé le filtre en un point avec une densité d'énergie croissante et un pas de 1 J/cm² jusqu'à atteindre 110 J/cm². En effet d'après les études faites dans la partie 3.4, nous avons montré que le premier régime de photosensibilité correspond à une augmentation de l'indice de réfraction de la couche sans modification de son épaisseur. Les spectres en transmission ont été mesurés après exposition avec différentes doses d'énergie. En augmentant cette dose, la longueur d'onde centrale du filtre est alors décalée vers les longueurs d'onde les plus grandes et aucun changement de la valeur maximale en transmission dans la bande passante n'a pu être mis en évidence (à la précision de la mesure $\pm 1\%$ près), confirmant que le changement d'indice de réfraction n'induit pas de pertes dans la couche.

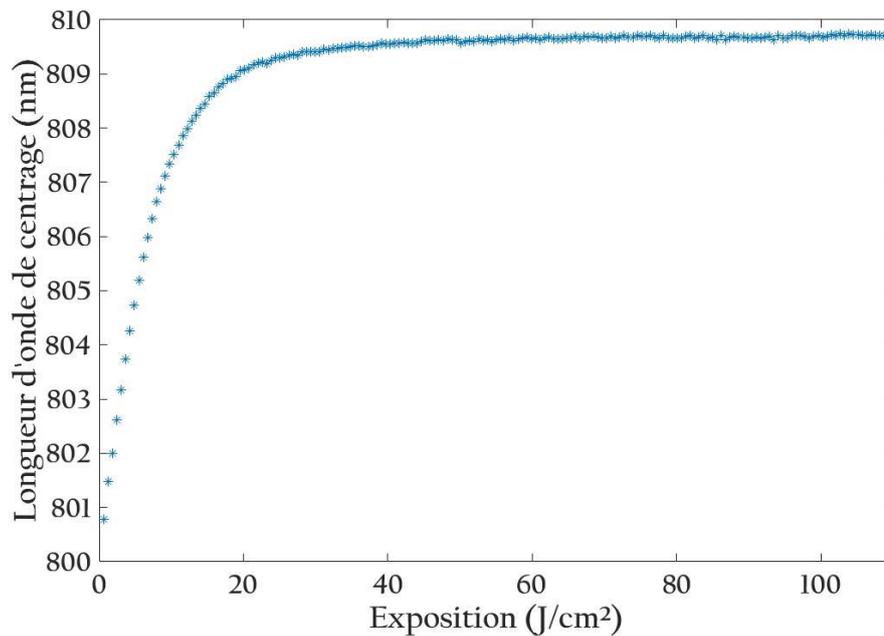


Figure 55 : Dépendance de la variation de la longueur d'onde de centrage en fonction de la quantité d'énergie de l'exposition à 470 nm.

A partir des spectres en transmission mesurés, nous avons représenté sur la Figure 55 l'évolution de la longueur d'onde centrale de la bande passante en fonction de la dose d'énergie reçue par le filtre. Nous pouvons clairement voir que l'évolution de la longueur d'onde centrale est similaire à celle de la variation de l'indice de réfraction qui a été mesurée dans les couches simples d' As_2S_3 . La cinétique est cependant différente (diminution de 4 fois) cela pourrait être expliqué par la distribution du champ électrique dans la cavité à 470 nm qui induit une diminution de l'énergie réellement absorbée par celle-ci. Une variation maximale de la longueur d'onde centrale de 9,7 nm (soit 1,2%) peut être induite par cette technique.

Cette valeur de variation peut paraître étonnante. En effet nous avons déterminé qu'il était possible d'obtenir une variation d'indice de réfraction 3,3% à 800nm. Cependant, l'équation 4.1, montre que la variation relative de longueur d'onde de centrage d'un filtre varie proportionnellement à la variation relative de l'indice de réfraction de la cavité mais est fonction d'un coefficient κ est inférieur à 1. D'après la littérature [148], l'expression du coefficient κ dépend de la dérivée de la phase en réflexion à la longueur d'onde de centrage des miroirs entourant la cavité ainsi que du nombre de couches demi-ondes composant la cavité. En prenant en compte les paramètres du filtre étudié, le coefficient κ est, dans notre cas, égal à 0,3654. Avec un tel coefficient, nous pouvons donc estimer pour une variation maximale de l'indice de réfraction égale à 3,3%, la variation maximale de longueur d'onde de centrage est de 1,21%.

La valeur de la variation maximale de la longueur d'onde de centrage étant comparable au défaut d'uniformité du filtre, cela va donc permettre de corriger localement chacun des spectres mesurés et uniformiser le filtre.

4.2.7 Uniformisation du filtre par photosensibilité

Pour obtenir un filtre présentant une uniformité meilleure que celle d'origine, nous avons opté pour un centrage de l'ensemble du filtre à 801,2 nm avec une précision de 0,1%, soit 10 fois meilleure que la valeur originale, qui était à 1,1%. Nous avons sélectionné 801,2 nm car cette valeur correspond aux longueurs d'ondes de centrage maximales mesurées sur la surface du filtre. Cependant, ce cas n'est pas un cas limitatif pour la méthode puisque si une longueur d'onde plus spécifique était nécessaire, il serait possible d'ajuster la procédure de fabrication pour garantir que la partie du filtre qui a la plus grande longueur d'onde centrale est inférieure à celle visée. Le programme d'automatisation de la correction de la longueur d'onde de centrage du filtre suit la procédure suivante :

- Le système composé d'une source blanche et du spectromètre permet de mesurer la réponse spectrale en transmission locale filtre.
- La source à 470 nm (ou 532 nm) permet d'exposer le filtre avec une densité d'énergie égale à 1 J/cm².
- La réponse spectrale locale en transmission est à nouveau mesurée.
- Si le filtre n'est pas centré à $801,2 \pm 0,5$ nm le programme reproduit les trois premières étapes, sinon il déplace l'échantillon sur la prochaine zone à corriger.

Cette procédure est ensuite répétée pour chacun des 1600 points.

Après cette correction point par point de la transmission locale du filtre, nous avons tracé sur la Figure 56 l'évolution de la longueur d'onde centrale du filtre sur sa surface ainsi qu'une superposition des spectres de transmission mesurés après correction. Les variations de la longueur d'onde centrale du filtre sur sa surface sont maintenant 10 fois plus faibles qu'avant correction (passant de 800,8 nm à 801,7 nm). Grâce à cette technique, la longueur d'onde de centrage est contrôlée avec une précision de $\pm 0,05$ % sur une surface de 60×60 mm². Cette valeur est comparable à celle que l'on peut obtenir avec des machines de dépôt reconnues comme permettant d'atteindre de très bonnes uniformités [14].

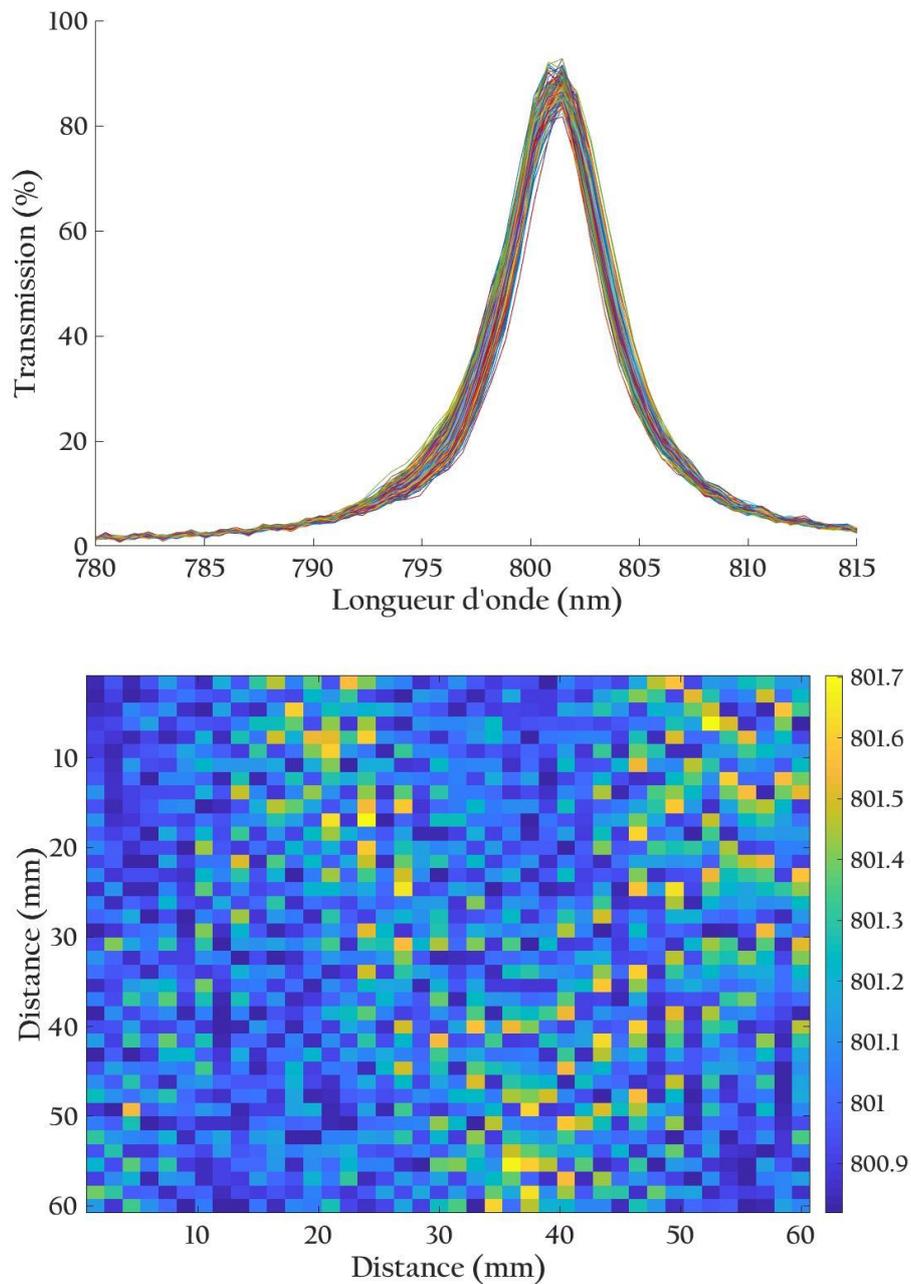


Figure 56 : (en haut) Dépendance spectrale de la transmission mesurée sur chaque point de 2.2 mm^2 sur une surface totale de $60 \times 60 \text{ mm}^2$ après correction du filtre. (En bas) Cartographie de la longueur d'onde centrale du filtre après correction

4.2.8 Caractérisations supplémentaires des performances spectrales du filtre

Nous avons montré que la réponse locale du filtre fabriqué est désormais très uniforme. Afin de confirmer que le filtre peut maintenant être utilisé sur toute sa surface, nous avons modifié la configuration du montage de de la Figure 53 et élargi le faisceau de mesure en lumière blanche de sorte à générer un faisceau de 50 mm de diamètre. Le collimateur qui collecte la

lumière a également été adapté afin de pouvoir capter, dans le spectromètre, l'ensemble du faisceau transmis par le composant et ainsi caractériser le spectre de transmission moyenné sur la surface du filtre. Cette mesure a été effectuée avant et après correction du filtre et a été comparée à la transmission théorique du filtre (Figure 57).

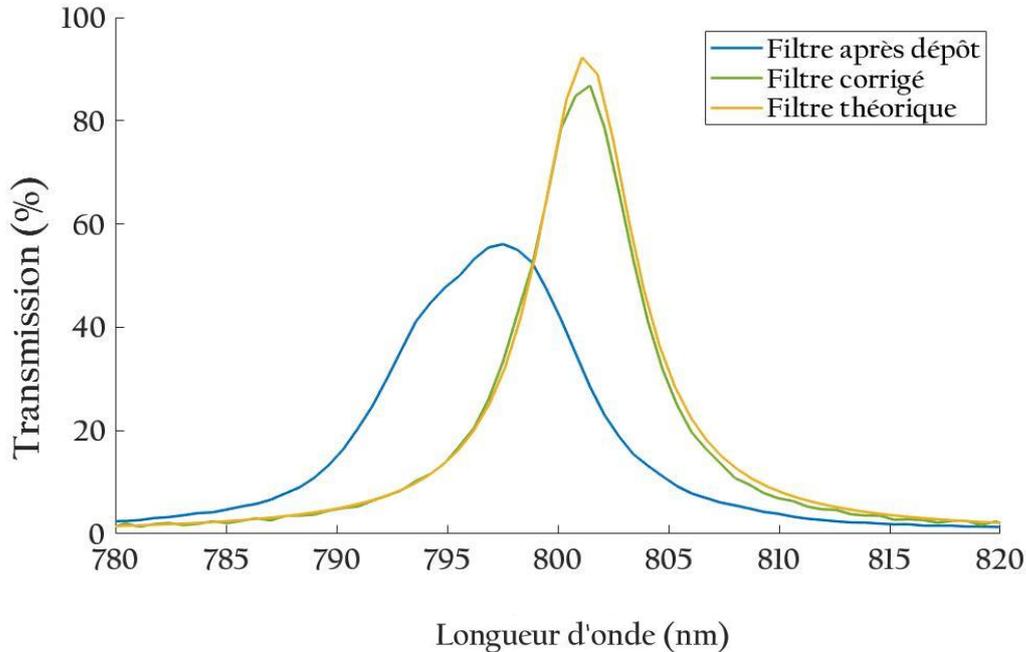


Figure 57 : Réponse globale du filtre Fabry-Perot fabriqué avec un faisceau de large diamètre égal à 50 mm : en bleu la dépendance spectrale de la transmission théorique, en vert celle après dépôt et en jaune celle après correction

Théoriquement, le filtre devrait avoir un FWHM de 4 nm et une transmission maximale de 92%. Le filtre tel que déposé présente un FWHM de 10 nm et un maximum de transmission de 60%. Ces performances dégradées sont dues à l'intégration de la transmission sur le large faisceau et donc à une moyenne des spectres de transmission sur la surface du filtre. En raison de la non-uniformité qui est de $2,5\times$ la largeur à mi-hauteur, celle-ci et le facteur de transmission sont fortement affectés. Après correction, la variation de la longueur d'onde centrale a été réduite de 10 fois et n'est plus que de $0,25\times$ la Largeur à mi-hauteur. La transmission du filtre se rapproche beaucoup plus de la transmission théorique, c'est-à-dire que nous avons une largeur à mi-hauteur de 4 nm et le facteur de transmission maximum de 87%.

En conclusion, nous avons montré la possibilité de corriger, après dépôt, la non-uniformité locale de filtres passe-bande étroits. Cette correction repose sur l'utilisation de couches minces photosensibles à base d' As_2S_3 qui sont utilisées comme cavités dans les structures Fabry-Perot. En utilisant une variation relative de l'indice de réfraction égale à la variation relative de l'épaisseur (due à des problèmes de non-uniformité) et de signe opposé, il est possible de

générer des filtres passe-bande de grande surface et très uniformes. Nous avons enfin montré une méthode qui permet une correction automatique la non-uniformité d'un filtre.

4.3 Filtres Fabry-Perot double cavité

Dans cette partie nous allons appliquer les résultats précédents au cas d'un filtre Fabry-Perot double cavité. L'avantage de ce type de filtre est qu'il permet d'obtenir un profil rectangulaire et donc plus sélectif spectralement. Nous avons étudié les conditions nécessaires pour utiliser des couches d'As₂S₃ en tant que cavités dans des filtres de types Fabry-Perot double cavité et ainsi corriger leur réponse spectrale locale.

4.3.1 Etude d'un Fabry-Perot à double cavité à couches quart d'onde

4.3.1.1 Design

Au vu des résultats obtenus dans la partie précédente, nous avons dans un premier temps cherché à transposer directement la méthode développée. Pour le design nous nous sommes basés sur la combinaison de deux cavités Fabry-Perot à couches quart d'onde. Les miroirs sont dans ce cas des miroirs à 6 couches et les deux cavités sont séparées par une couches d'adaptation L quart d'onde afin de rendre cette combinaison cohérente. La formule de l'empilement s'écrit, avec les mêmes notations que précédemment :

$$M6 / 2 \text{ ChG} / M6 / L / M6 / 2 \text{ ChG} / M6 \quad 4.3$$

Lors du design et des simulations, nous avons cette fois utilisé deux autres matériaux à savoir le ZnS pour le matériau haut indice et le YF3 pour le matériau bas indice car ils présentent une meilleure compatibilité avec les couches d'As₂S₃ compte tenu de leur composition. La réponse spectrale du filtre théorique est montrée sur la Figure 58.

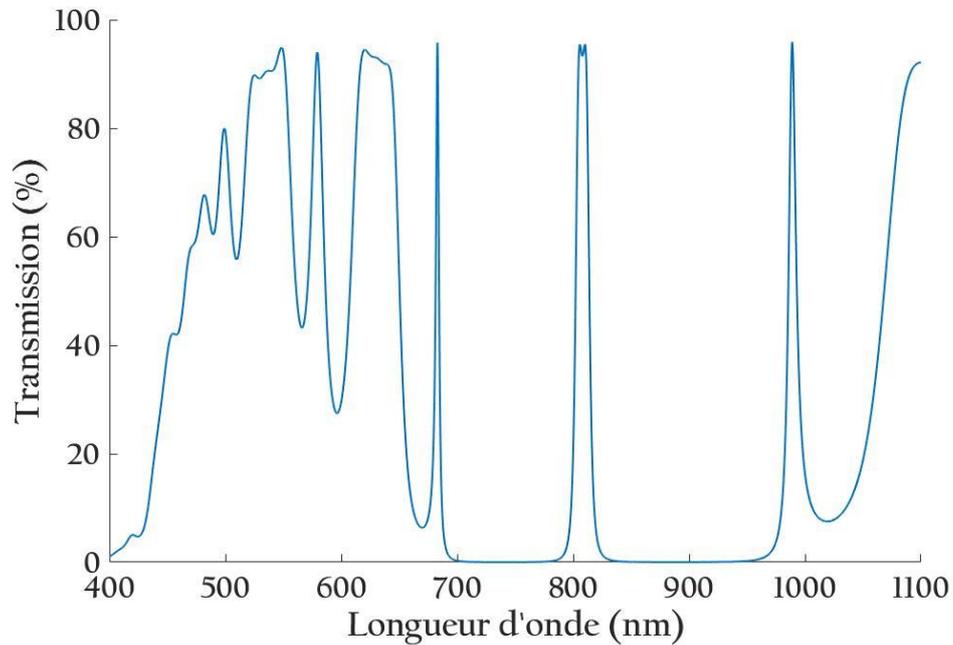


Figure 58 : Dépendance spectrale de la transmission théorique d'un filtre Fabry-Perot double cavité

Le filtre présente une bande passante à profil carré de largeur à mi-hauteur égale à 2,5 nm et rejette dans le bande spectrale 700-900 nm. Nous avons, comme dans le cas du Fabry-Perot possédant une seule cavité d'As₂S₃, déposé cette formule dans la machine Bühler SYRUSpro 710 sans assistance et avec un contrôle optique in-situ de l'épaisseur des couches et un asservissement de la vitesse de dépôt grâce à une microbalance à quartz. Le spectre en transmission de ce filtre est montré dans la Figure 59.

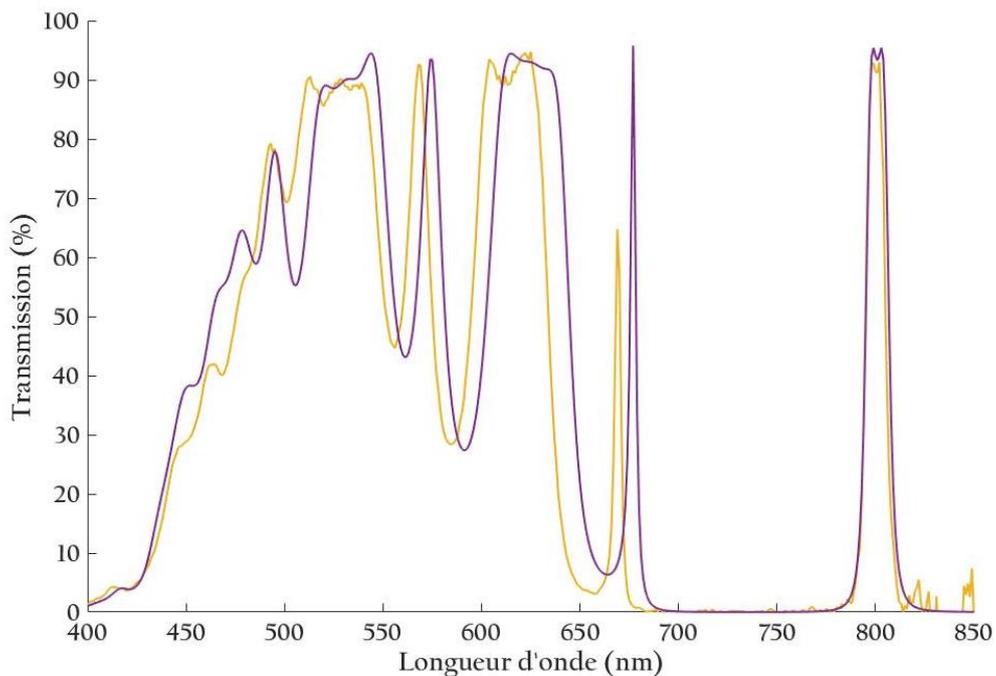


Figure 59 : Dépendance spectrale en transmission d'un filtre Fabry-Perot double cavités : en violet la réponse théorique en orange la réponse expérimentale après dépôt.

On peut voir que nous avons été en mesure de réaliser le filtre et que celui-ci présente une réponse spectrale expérimentale relativement proche de celle théorique. Il existe un décalage de la réponse spectrale au niveau des courtes longueurs d'onde qui s'explique par la méthode de contrôle utilisée à savoir un contrôle par annulation de la dérivée [109]. En revanche, la bande passante est quant à elle parfaitement centrée et a un profil carré.

4.3.1.2 Etude de l'influence d'une exposition à 470 nm

Après dépôt de ce filtre et comme dans le cas du filtre Fabry-Perot à une seule cavité nous nous avons étudié la modification locale de la réponse spectrale d'un filtre à l'aide des propriétés de photosensibilités des cavités. En particulier, nous nous sommes intéressés à l'effet de la correction sur l'amplitude et la forme de la bande passante tout au long de la modification. Une étude de l'évolution de la réponse spectrale du filtre aux alentours de la bande passante a donc été menée en fonction de la dose d'exposition. Cette expérience est réalisée avec le même montage que celui de la Figure 53. Une LED à 470 nm focalisée sur une surface d'environ 2mm² a été utilisée et la quantité d'énergie reçue par le filtre a été contrôlée par le temps d'exposition.

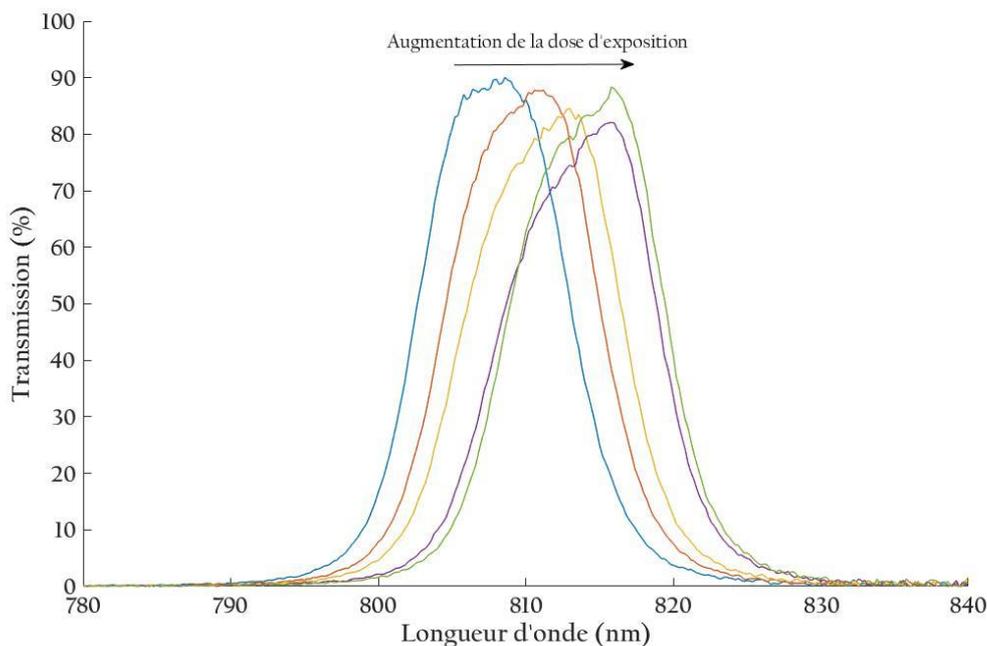


Figure 60 : Effet de l'exposition à 470 nm sur la réponse spectrale en transmission mesurée sur un filtre Fabry-Perot double cavité.

Juste après dépôt, nous pouvons voir que le filtre présente une bande passante relativement carrée. Le forme du filtre est légèrement différente de celle prévue par la théorie et cette différence peut s'expliquer par des erreurs de dépôt mais plus probablement par une résolution insuffisante du spectrophotomètre. Quand le filtre est exposé, la bande passante se décale vers le rouge, mais on peut observer une diminution de la transmission moyenne ainsi qu'une

déformation (asymétrie) de la bande passante. Quand le décalage du filtre atteint la saturation, on peut remarquer que le filtre tend à reprendre son amplitude et sa forme initiale mais décalé spectralement.

Ces effets sur la bande passante en cours de décalage peuvent être expliqués par la distribution du champ électrique dans la structure multicouche. Nous avons donc calculé cette distribution du champ dans la structure à 470 nm quand le faisceau est incident du côté opposé au substrat (Figure 61).

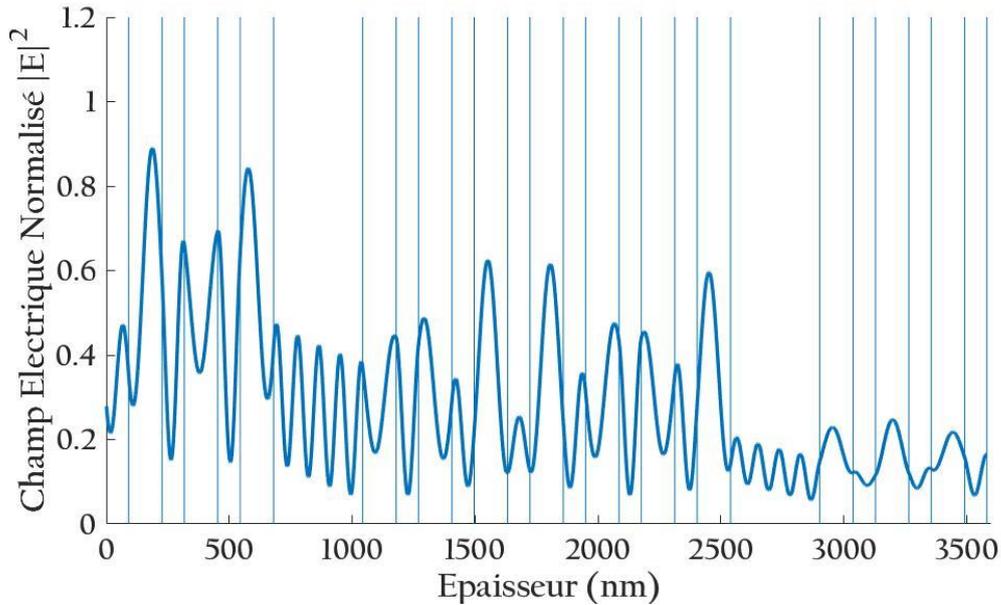


Figure 61 : Distribution du champ électrique théorique dans l'empilement d'un filtre Fabry-Perot double cavité pour un faisceau incident à 470 nm

La Figure 61 démontre que l'intensité du champ électrique à 470 nm dans la première cavité est en moyenne environ 3 fois plus grande que dans la seconde. Ce résultat est majoritairement dû à l'absorption des couches d' As_2S_3 qui est importante à cette longueur d'onde et résulte en une diminution du champ électrique lors de la propagation de la lumière qui peut être amplifiée par les phénomènes d'interférence dans les couches. Il en résulte une dose d'exposition différente dans les deux cavités.

Pour confirmer cette hypothèse, nous avons simulé le décalage de la bande passante dans le cas où le champ électrique est différent dans la première cavité et la deuxième cavité. De ce fait, nous avons tout d'abord simulé le filtre initial (courbe bleue, Figure 62) puis supposé que l'épaisseur physique des couches de la cavité étaient identiques mais que l'indice augmentait 3 fois plus vite dans la première cavité que dans la deuxième (courbe rouge, jaune et violette, Figure 62). On observe que si l'une des deux cavités a son indice optique qui est modifié plus rapidement que dans l'autre, il se produit alors un décalage non uniforme des deux cavités et donc une diminution de la transmission moyenne et une déformation (asymétrie) identique à celle observée dans les expérimentations. Nous avons enfin simulé

l'effet de saturation de la variation d'indice par un décalage devenu plus rapide pour la deuxième cavité que pour la première (courbe verte de la Figure 62), et on voit que le filtre tend à redevenir symétrique et la transmission moyenne augmente.

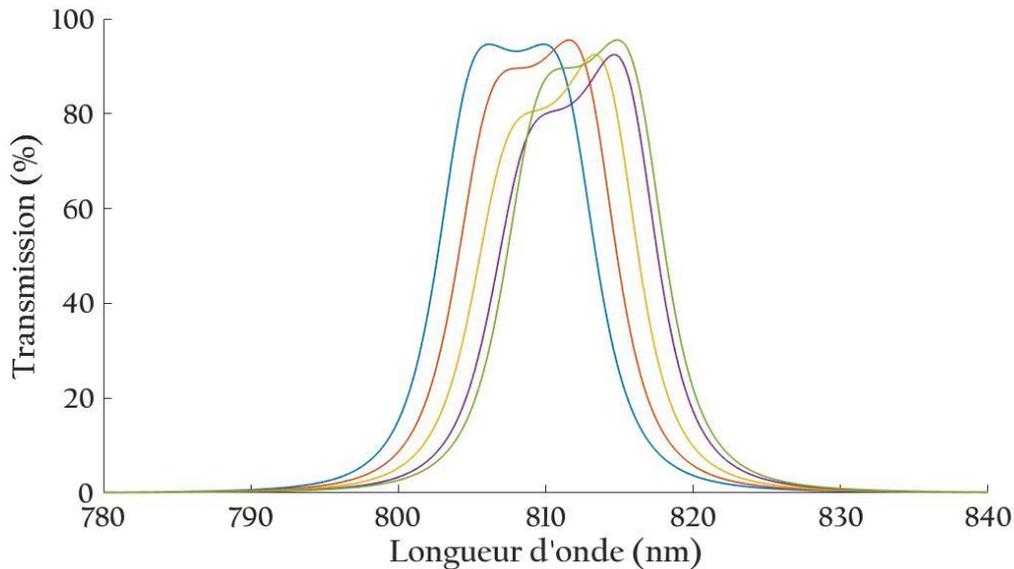


Figure 62 : Simulation de l'effet de l'exposition à 470 nm sur la réponse spectrale mesurée sur un filtre Fabry-Perot double cavité dans le cas où le champ électrique est plus important dans la première cavité que dans la deuxième, et illustration du décalage non uniforme des deux cavités et de la chute de la transmission résultante dans la bande passante.

On voit donc qu'il n'est pas possible de directement transférer la méthode développée pour un Fabry-Perot simple cavité à un Fabry-Perot multi-cavité. Il est donc essentiel dans ce cas de se placer à une longueur d'onde présentant une absorption plus faible mais également de modifier le design de la structure afin de minimiser la différence de champ électrique entre les cavités du filtre.

4.3.2 Filtre Fabry-Perot double Cavité à structure optimisée

4.3.2.1 Calcul d'une structure optimisée

Nous avons modifié la structure du filtre précédemment étudié pour prendre en compte deux nouvelles contraintes à savoir ;

- une égalisation des champs électriques dans les deux cavités,
- une minimisation de l'oscillation du champ dans les cavités afin que les cavités soient exposées uniformément en épaisseur.

Pour ce faire, nous avons modifié la structure des miroirs qui ne sont plus quart d'onde. On obtient ainsi des structures de type passe-bas c'est-à-dire avec une réflectivité maximale à 800 nm et minimale à 532 nm. Les épaisseurs des cavités ont également été modifiées pour

prendre en compte les déphasages à la réflexion des miroirs et ainsi obtenir une structure résonnante à 800 nm. Enfin, nous avons rajouté à la fin du design un anti reflet large bande afin de maximiser la transmission autour de 532 nm et la garder maximale lors du décalage dû à l'exposition. Le design final est donné dans la formule suivante pour un centrage à 808 nm.

$$M6^* / 1,85ChG / M6^* / L / M6^* / 1,85ChG / M6^* / AR$$

4.4

L'épaisseur de chacune des structures est donnée dans le Tableau 5.

	N°	Matériau	Epaisseur	Epaisseur
			Optique @ 808nm	Mécanique (nm)
<i>Miroir 6 couches</i> <i>M6*</i>	1	H (ZnS)	1,30	114,54
	2	L (YF ₃)	0,66	89,7
	3	H	1,14	100,19
	4	L	1,08	140,07
	5	H	0,63	55,8
	6	L	1,32	179,12
<i>Cavité</i>	7	ChG (As ₂ S ₃)	1,85	154,24
<i>Miroir 6 couches</i> <i>M6*</i>	8	L	1,32	179,12
	9	H	0,63	55,8
	10	L	1,09	147,07
	11	H	1,14	100,19
	12	L	0,66	89,7
	13	H	1,30	114,54
<i>Couche</i> <i>d'adaptation</i>	14	L	0,82	111,74
<i>AR</i>	28	H	0,13	11,07
	29	L	0,35	46,81
	30	H	1,58	138,86
	31	L	0,77	103,71

Répété une deuxième fois après la couche d'adaptation

Tableau 5 : Design d'un filtre Fabry-Perot double cavité optimisé à 532 et 808 nm

La Figure 63 présente une superposition des courbes de la transmission spectrale des filtres Fabry-Perot double cavité centrés à 808 nm avant et après optimisation. On peut voir que les deux filtres présentent une bande passante à 808 nm, la transmission étant plus élevée

après optimisation du fait de la structure antireflet qui a été ajoutée. De plus, les deux filtres présentent des dépendances spectrales très différentes dans la bande entre 480 et 630 nm où la transmission est maximale avec peu d'oscillations après optimisation.

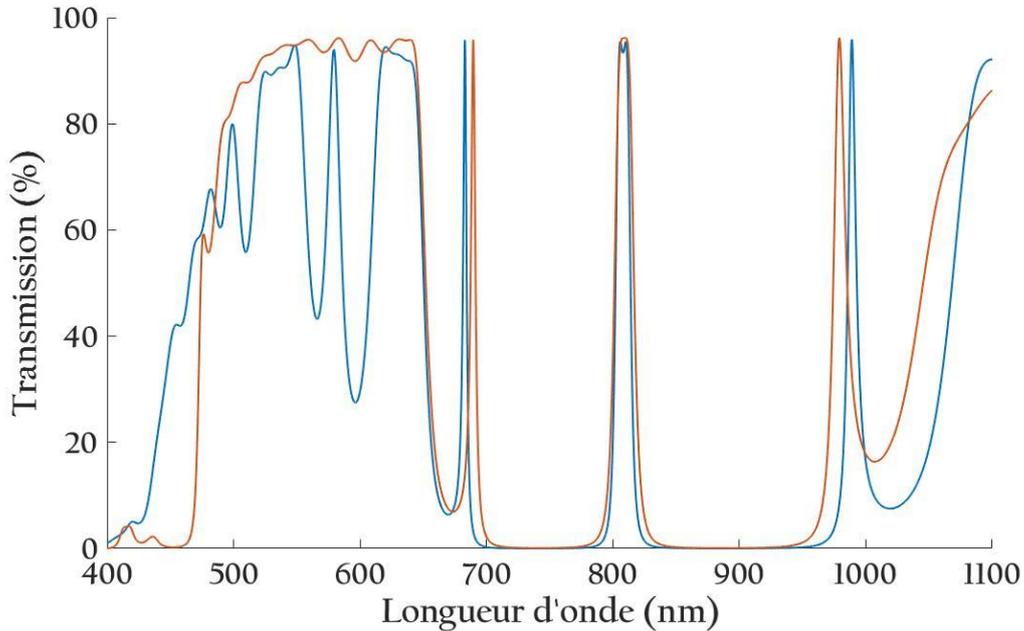


Figure 63 : Dépendance spectrale théorique de la transmission d'un filtre Fabry-Perot double cavité standard à couches quart d'onde (courbe bleue) d'un filtre Fabry-Perot double cavité optimisé à 532 et 808 nm (courbe orange).

Ces différences de réponses spectrales résultent en des distributions du champ à l'intérieur des cavités très différentes. En effet, comme prévu, la nouvelle structure permet d'éliminer les oscillations du champ électrique dans les cavités (afin de limiter les effets d'absorption de la lumière incidente avec l'épaisseur) mais également d'égaliser le champ électrique dans les deux cavités (cf. Figure 64). Un tel design devrait donc permettre d'obtenir, aux erreurs de fabrication près, une modification identique des deux cavités.

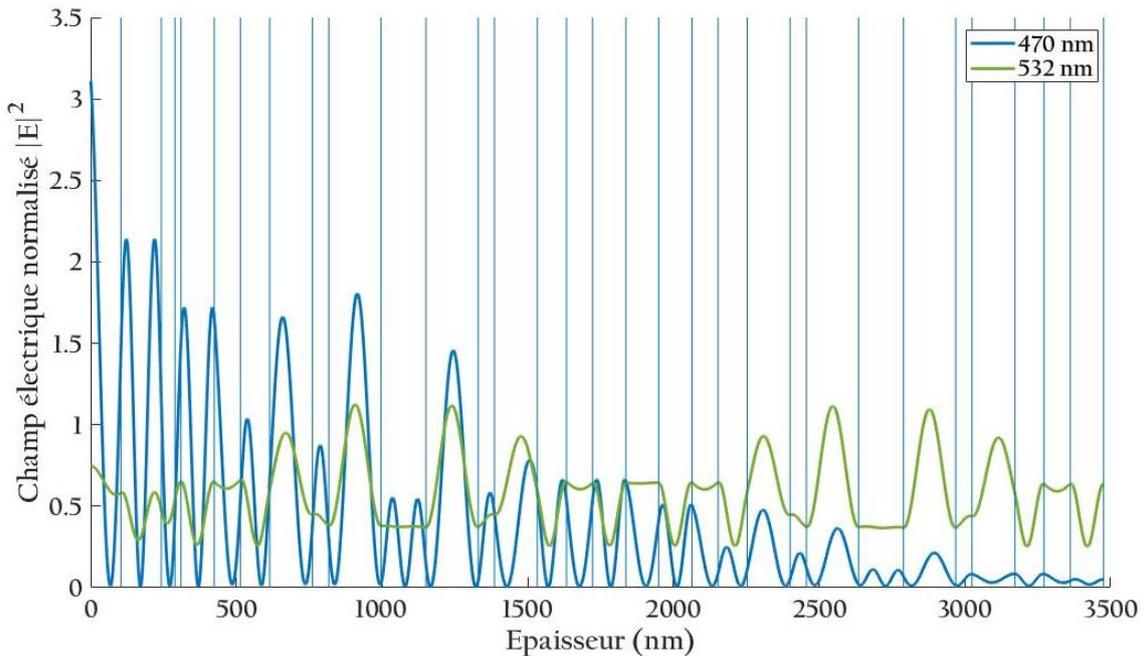


Figure 64 : Distribution du champ électrique théorique dans l'empilement d'un filtre Fabry-Perot double cavité optimisé à 532 et 808 nm pour un faisceau incident à 470 ou 532 nm.

4.3.2.2 Démonstration expérimentale

La structure de l'empilement présentée dans le Tableau 5 a donc été réalisée dans la machine de dépôt SYRUSpro 710. Le contrôle optique a de nouveau été effectué à 808 nm mais avec un contrôle optique de type Trigger Point Monitoring [110], [111] et le verre de contrôle a été changé après la couche d'adaptation afin de s'affranchir de certaines erreurs qui pourraient venir de la première cavité. La dépendance spectrale de la transmission du filtre fabriqué a été mesurée et est illustrée sur la Figure 65. Même si les réponses spectrales sont dans l'ensemble assez similaires, on peut néanmoins noter quelques différences notables entre la réponse théorique et la réponse expérimentale. Ces différences sont liées aux erreurs dans les indices théoriques et absorptions théoriques de certains matériaux mais également sur les épaisseurs de couches pendant le dépôt. Ces différences incluent une transmission plus faible que prévue mais également des oscillations dans le visible plus importantes que sur la réponse théorique.

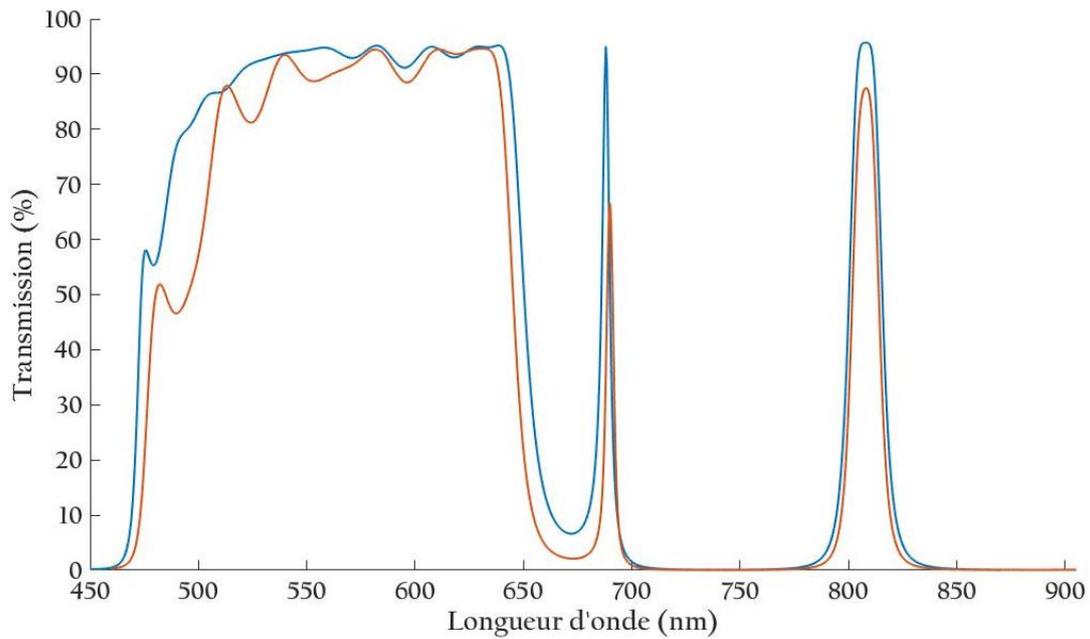


Figure 65 : Dépendance spectrale de la transmission d'un filtre Fabry-Perot double cavité optimisé à 532 et 808 nm : en bleu la réponse théorique et en rouge le réponse expérimentale.

Nous avons ensuite exposé un des filtres fabriqués avec différentes densités d'énergie croissantes afin d'étudier l'évolution de la bande passante. L'exposition a donc été faite de la même manière que dans la partie précédente avec un laser à 532 nm et les spectres de transmission ont été mesurés (Figure 66). On peut tout d'abord noter que la bande passante est centrée à 801 nm et non pas 808 nm (comme prévu) compte tenu du défaut d'uniformité de la machine.

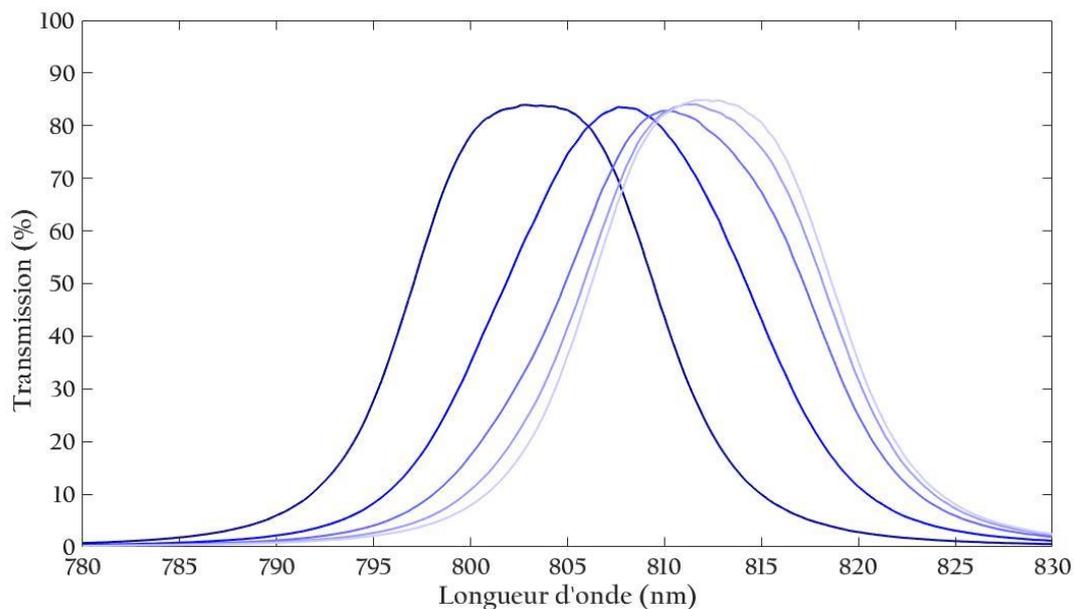


Figure 66 : Evolution de la réponse spectrale en transmission de la bande passante Fabry-Perot d'une filtre Fabry-Perot double cavité optimisé à 532 et 808 nm pour différentes expositions à 532 nm avec des énergies croissantes (du plus sombre au plus clair).

On peut également voir que l'exposition du filtre à 532 nm a permis de décaler sa longueur d'onde de centrage de 801 nm à 812 nm soit d'environ 1,2%. Le décalage induit par l'exposition ne produit pas de diminution conséquente de la valeur maximale en transmission. Cependant il est possible de voir une légère modification dans la forme du pic lors de la variation. La forme du pic passe en effet par une phase un peu plus arrondie avant de reprendre sa forme initiale. Cette déformation est peut-être le résultat d'un champ électrique non parfaitement uniforme entre les deux cavités du fait des erreurs de fabrication.

4.4 Filtre Fabry-Perot à trois cavités

Pour finir cette étude et au vu des résultats encourageants obtenus avec le Fabry-Perot à deux cavités nous avons décidé d'appliquer le même principe et design à un filtre Fabry-Perot à trois cavités. L'empilement respecte strictement le même design que celui donné dans le Tableau 5 et en rajoutant une cavité identique à celle des couches 1 à 13.

Nous avons ensuite fabriqué dans la machine SYRUSpro 710 un prototype de filtre. Compte tenu des erreurs de fabrication du filtre Fabry-Perot double cavité qui avaient été mises en évidence, nous avons donc optimisé la procédure de fabrication et en particulier les vitesses de dépôts et les paramètres associés aux méthodes d'arrêts des couches pour prendre en compte les spécificités des couches déposées. Nous avons ensuite mesuré la réponse spectrale en transmission du filtre fabriqué (Figure 67). On peut voir que les réponses spectrales théoriques et expérimentales présentent un très bon accord dans la bande passante (profil carré et transmission supérieure à 90%) et à 532 nm (T_{max}), ce qui laisse à penser que l'effet antireflet à 532 nm a bien été obtenu comme prévu.

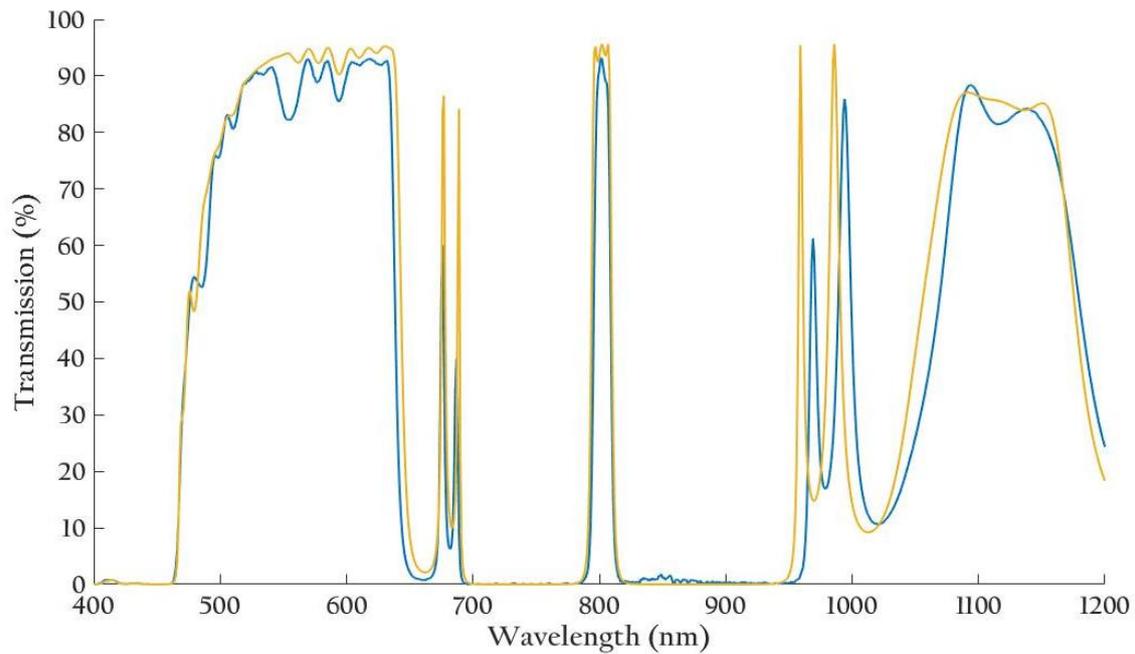


Figure 67 : Dépendance spectrale de la transmission d'un filtre Fabry-Perot à trois cavités optimisé à 532 et 808 nm : en jaune la réponse théorique et en bleue le réponse expérimentale.

Cet effet antireflet devrait permettre d'obtenir une distribution du champ électrique constante et identique dans les 3 cavités comme illustré sur la Figure 68. On peut remarquer que le champ est cependant de seulement 37% du champ incident ce qui devrait influencer les cinétiques de variation de la longueur d'onde de centrage du filtre. En revanche, cette distribution du champ électrique devrait permettre d'obtenir un décalage des trois cavités avec la même cinétique.

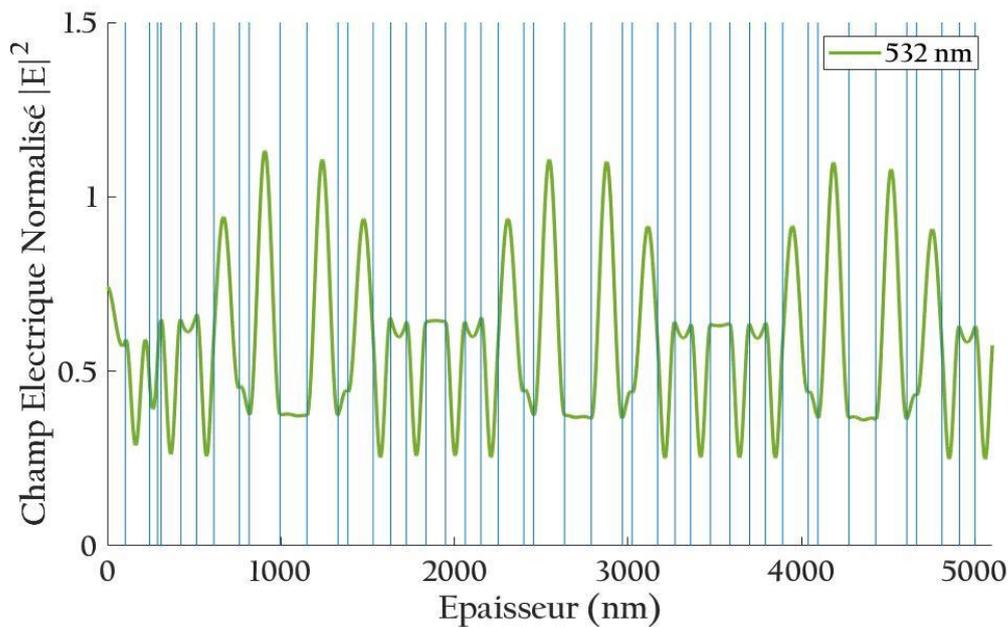


Figure 68 : Distribution du champ électrique théorique dans l'empilement d'un filtre Fabry-Perot à trois cavités optimisé à 532 et 808 nm pour un faisceau incident à 532 nm.

Nous avons alors exposé un des prototypes de filtres Fabry-Perot à 3 cavités avec un laser à 532 nm et des doses d'énergie croissantes et mesuré, après chaque exposition, la réponse spectrale en transmission. On peut voir sur la Figure 69 que le filtre se décale de 805 à 812 nm. De plus, ce décalage se produit sans modification notable de la forme ni de la transmission maximale dans la bande passante, ce qui confirme les résultats attendus avec cette méthode.

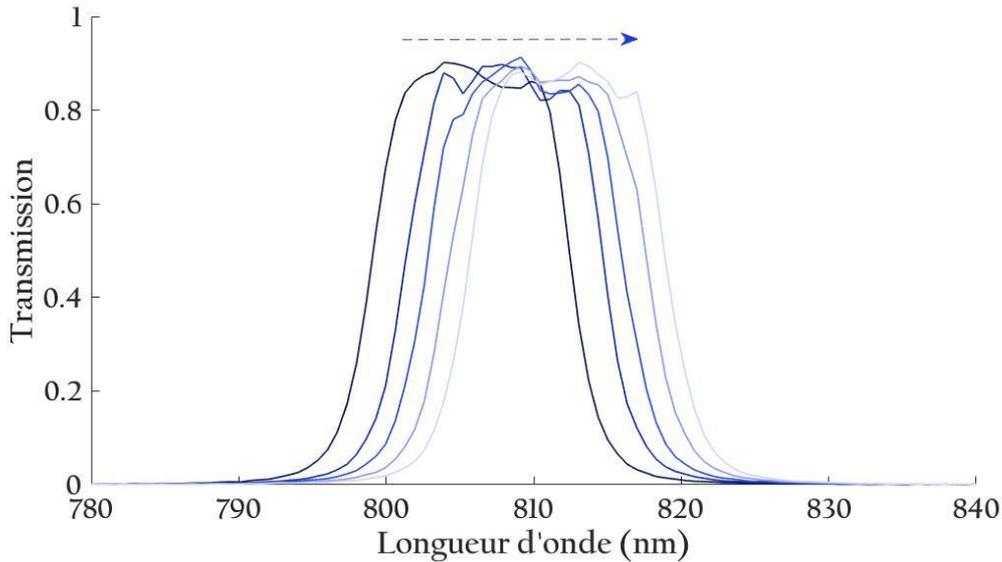


Figure 69 : Evolution de la réponse spectrale en transmission de la bande passante d'une filtre Fabry-Perot à trois cavités optimisé à 532 et 808 nm pour différentes expositions à 532 nm avec des énergies croissantes (du plus sombre au plus clair).

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons donc montré qu'il était possible d'utiliser une couche photosensible d' As_2S_3 dans différents types de filtres passe-bande. En effet nous avons tout d'abord travaillé sur l'intégration de ce matériau dans la cavité d'un Fabry-Perot à une cavité car la modification de l'indice optique de celle-ci permet la variation de la longueur d'onde de centrage de la bande passante. Au vu des résultats obtenus pour la modification sur la surface d'un échantillon de $60 \times 60 \text{ mm}^2$ et l'uniformisation de la longueur d'onde de centrage sur toute cette surface à $\pm 0,5\%$, nous avons ensuite décidé de nous pencher sur l'utilisation de ce matériau dans des filtres passe-bande multi-cavités. La réalisation d'un filtre passe-bande à deux cavités à base de couches quart d'onde a permis de mettre en évidence l'importance de l'optimisation du design du Fabry-Perot. En effet nous avons montré qu'il était nécessaire de modifier la structure de l'empilement afin de permettre de produire une meilleure distribution du champ électrique dans l'empilement et en particulier d'égaliser le champ électrique au niveau des cavités. Avec cette nouvelle structure, un décalage spectral

de la bande passante sans modification de sa forme ni pertes a été démontré. Au regard de ces résultats expérimentaux, nous avons alors décidé de réutiliser le même principe d'optimisation sur un filtre Fabry-Perot à trois cavités. La fabrication de ce filtre a résulté en un très bon accord théorie/expérience de la transmission spectrale garantissant un champ électrique normalisé égal dans les cavités. L'exposition d'un tel filtre a permis de démontrer à nouveau une correction de la longueur d'onde de centrage du filtre sans déformation de sa réponse spectrale.

Ces résultats montrent donc le potentiel de l'approche proposée pour la correction de filtres complexes. De plus, ils montrent que les couches à base de verres de chalcogénures sont compatibles avec les fabrication d'empilements multicouches complexes.

Chapitre 5

Eléments Optiques Diffractifs

5.1 Introduction aux éléments optiques diffractifs

Dans cette thèse, nous avons exploré deux pistes pour la fabrication d'éléments diffractifs optiques. Une première, basée sur les variations d'indice photoinduites dans des couches d'As₂S₃ et une deuxième basée sur la photo-dissolution d'argent dans des couches d'As₂S₃. En effet, nous savons, grâce aux premières expériences et résultats relatifs à l'étude des propriétés de couches d'As₂S₃, qu'il est possible d'induire soit des sauts de phase compris en 0 et 2π , soit des variations de la transmission, en exposant l'échantillon avec une source lumineuse (cf. 3.7.4). Nous avons donc étudié ces deux approches pour la fabrication d'EODs de volume et les avons comparés avec des EODs fabriqués à l'aide de techniques classiques de photolithographie.

5.2 Design d'EODs

5.2.1 Logiciel de design d'EODs : VirtualLab

Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi de travailler avec l'algorithme d'itération de Transformée de Fourier (IFTA). Pour ce faire, nous avons collaboré avec l'IMT Atlantique à Brest et en particulier l'équipe du Professeur Kevin Heggarty. Nous avons donc utilisé un logiciel commercial pour créer des motifs d'EODs présentant des profils classiquement utilisés dans l'industrie. Ce logiciel s'appelle VirtualLab Fusion et est vendu par LightTrans [152].

5.2.1.1 Paramètres de design utilisés par le logiciel *VirtualLab*

Afin de permettre le calcul du motif, le logiciel a besoin de plusieurs données en entrée.

- La première donnée à fournir est la taille du faisceau. Le logiciel considère un faisceau incident Gaussien défini par sa longueur d'onde et sa largeur à $1/e^2$ (ou son angle de divergence ou alors sa longueur de Rayleigh associée).
- Le type de visualisation doit ensuite être défini, à savoir soit l'observation de la figure de diffraction dans le plan de Fourier c'est-à-dire dans le plan focal d'une lentille (montage $2f$) soit en champs lointain paraxial, c'est-à-dire après propagation du faisceau incident plusieurs mètres voire dizaines de mètres après l'EOD. Dans notre cas, nous avons considéré le cas du champ lointain paraxial. Ce système ne nécessite pas de lentille. Dans ce cas, la distance de visualisation a été définie à 2 mètres pour nos calculs.
- Le troisième paramètre à définir dans le logiciel est l'image finale désirée. En effet ce logiciel utilise l'algorithme de transformée de Fourier itérative et va donc utiliser l'image finale comme paramètre de départ.
- Le dernier paramètre à fournir au logiciel est la taille des pixels qui seront utilisés dans l'EOD ainsi que le nombre de pixels définissant le motif de base de l'EOD. Pour les premiers calculs nous avons considéré des pixels carrés de petite taille égale à $750 \times 750 \text{ nm}^2$ et un motif de base d'EOD constitué de 540×540 pixels. Nous avons pris pour les premiers calculs cette taille de pixel car elle correspond à celle utilisée par l'IMT Atlantique et permettaient de valider les résultats. La Figure 70 présente une image de l'interface du logiciel *VirtualLab*. Nous avons ensuite fait varier ces paramètres pour prendre en compte la tailles de pixels qui seront accessibles avec notre méthode d'inscription.

A partir de ces paramètres d'entrée, le logiciel calcule la carte de phases du motif de base qui constitue l'EOD (Figure 70). On voit que la phase varie de $-\pi$ à 0 . Donc le saut de phase total nécessaire est de π . Le saut est défini comme négatif c'est-à-dire que les zones présentant un déphasage négatif seront celles à graver dans un verre ou une couche.

Le logiciel calcule aussi la distribution d'intensité en champ lointain obtenue après propagation dans l'EOD calculé. On peut ainsi estimer la taille de l'image finale et la qualité de l'image par rapport à la cible de départ. Dans le cas de la Figure 70, l'image du viseur final sera comprise dans un carré d'environ $30 \times 30 \text{ cm}^2$.

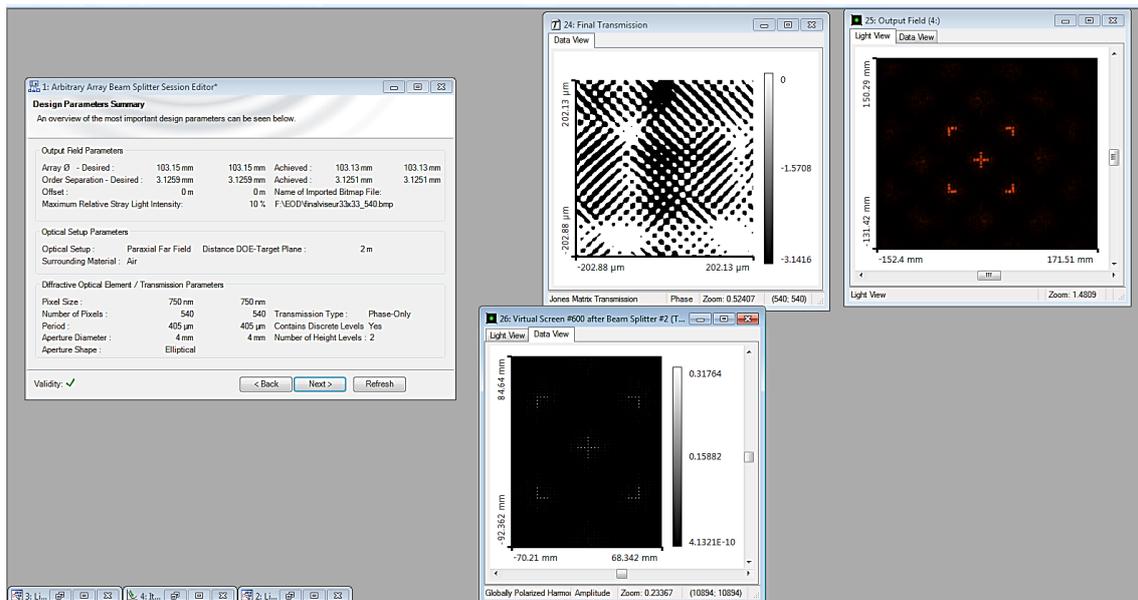


Figure 70 : Capture d'écran du logiciel VirtualLab lors du design d'un EOD permettant de générer en champ lointain un viseur

Pour des images symétriques (comme le viseur défini ici), le calcul est rapide et assez direct et les ordres -1 et $+1$ de la diffraction de l'EOD sont alors confondus. Cependant, dans le cas où l'image présente une complexité supérieure avec par exemple une symétrie non existante, l'image créée sera double puisque les ordres -1 et $+1$ de la diffraction seront distincts. Dans ce cas, il sera alors nécessaire d'induire un décalage spatial entre les ordres de diffraction pour qu'ils ne se superposent pas. Pour illustrer cet effet, nous avons représenté sur la Figure 71 le cas d'un EOD produisant le sigle RCMO en champs lointain. Si l'image est définie au centre de la fenêtre, il va se produire une superposition des deux ordres de diffractions. Pour éliminer cet effet, il est alors nécessaire de définir l'image dans un demi-plan de la fenêtre. Cela aura pour effet de modifier la structure de l'EOD produisant cette image et de la complexifier puisque les images des deux ordres contribueront de manière séparée aux deux images produites. En particulier, on voit que la taille des motifs de phase présente de tailles significativement plus petites (Figure 71).

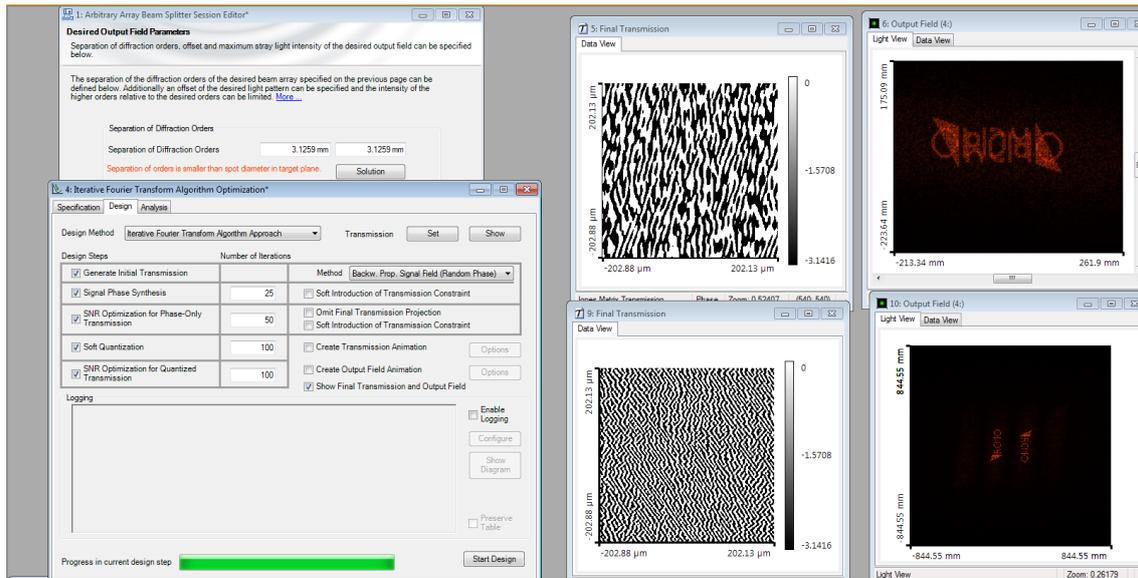


Figure 71 : Capture d'écran du logiciel VirtualLab lors du design d'un EOD permettant de générer en champ lointain une image finale non symétrique. Illustration de l'ajout d'un décalage dans le calcul de l'EOD permettant d'induire une non superposition des ordres -1 et $+1$

Ce logiciel permet aussi de créer des EODs à plusieurs niveaux de phase. En effet l'utilisation d'EODs à plusieurs niveaux est essentiel si l'on cherche à obtenir des performances élevées. L'augmentation du nombre de niveaux permet d'augmenter l'efficacité de diffraction[153]. Dans le cas d'un EOD binaire simple, l'efficacité de diffraction totale pour le premier ordre (-1 et 1) est d'environ 81%, l'énergie restante étant transmise dans les autres ordres diffractés. Tous les designs qui seront montrés et présentés par la suite ont été calculés et simulés grâce au logiciel VirtualLab. Ils ont ensuite été adaptés à la taille des pixels de chaque système de fabrication.

5.2.1.2 Exemples d'EODs binaires

Dans un premier temps et afin de montrer la faisabilité de tels EODs en utilisant différentes techniques de fabrication, nous avons effectué des premiers designs d'EODs binaires donc à saut de phase de π (la phase allant de 0 à π). Les paramètres de simulation donnés dans la partie précédente sont toujours les mêmes. Dans le cas des images finales non symétriques, nous avons cependant rajouté un décalage afin de pouvoir séparer les ordres. Lors des différents designs, nous avons cependant définis différents nombres de pixel par motif de base des EODs à savoir : $540 \text{ px} \times 540 \text{ px}$, $270 \text{ px} \times 270 \text{ px}$, et $30 \text{ px} \times 30 \text{ px}$. Ces trois possibilités permettent de répéter plus ou moins de fois l'EOD sur l'échantillon pour augmenter sa taille globale. On peut voir sur la Figure 72 que changer le nombre de pixels du design va bien évidemment modifier sa taille (largeur et longueur) mais également son design. Diminuer la taille du motif de base résulte en l'enregistrement de motifs de plus petite taille puisque la transformation doit être produite sur une plus petite surface.

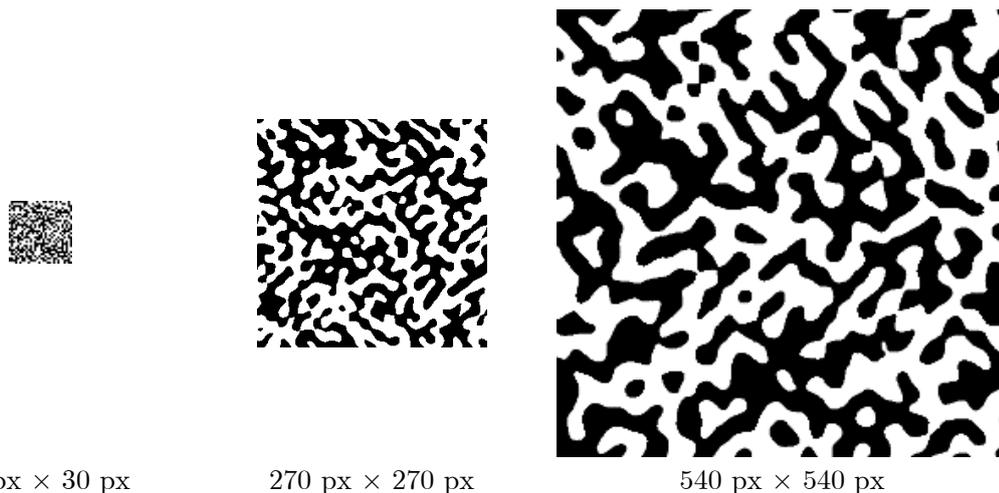


Figure 72 : Exemples de motifs de base de différentes tailles (avant réplique) permettant de produire en champ lointain une grille 7×7 lignes

Nous avons donc calculé le motif de phase de base permettant de produire quatre types d'EODs à changement de phase binaire : une grille de 7×7 lignes, un viseur, des guitares et le logo de l'équipe. Les différents designs sont montrés dans la Figure 73.

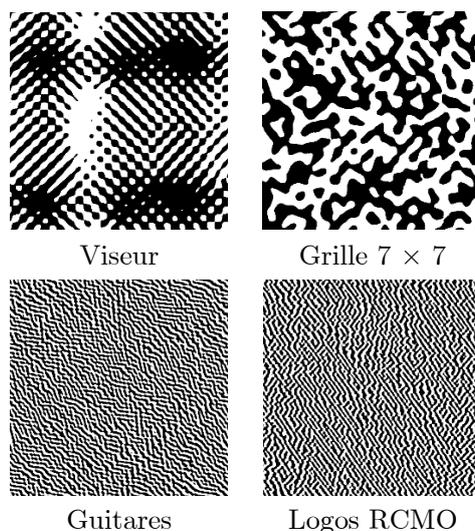


Figure 73 : Exemples de motifs de base $540 \text{ px} \times 540 \text{ px}$ (avant réplique) permettant de produire en champ lointain différentes distribution d'intensité

Tous ces designs ont été calculés avec un EOD de $540 \text{ px} \times 540 \text{ px}$. Il est possible de voir en particulier sur les plus larges formes qu'il n'existe pas, ou très peu, de pixels isolés. Ces designs seront ensuite répliqués un certain nombre de fois selon les besoins de l'expérience afin de produire des EODs de grandes surfaces.

La taille des zones iso-phases du carré, du viseur ou de la grille ont une largeur typique d'environ 25 pixels. Pour les EODs produisant des images de guitares et du logo RCMO, la taille des zones iso-phase est de 9 pixels. En d'autres termes, plus la complexité des images

finale est grande, plus les zones iso-phases sont petites et donc plus le nombre de zones iso-phases à produire est grand.

5.2.1.3 *Design d'EODs multi-niveaux*

Nous avons également étudié le design d'EODs plus complexes à 4 niveaux. Ce type d'EOD permettra d'obtenir une efficacité de diffraction plus élevée qu'un EOD binaire.

Comme image finale pour cet EOD, nous avons décidé de produire sur une image simple et très commune : une matrice de 5×5 points. Le résultat généré par le logiciel VirtualLab est illustré sur la Figure 74. On retrouve sur la figure de gauche le profil de phase de l'EOD avec les 4 niveaux : $\pi/2$, 0 , $-\pi/2$, $-\pi$, soit un saut de phase total de $3\pi/2$ et des tailles de motifs de base qui ont été diminuées d'un facteur 4 par rapport à un EOD binaire. De la partie 3.7.4, nous avons montré que les couches d' As_2S_3 fabriquées permettent de produire des sauts de phase allant jusqu'à 2π . Nous avons donc la possibilité de réaliser les sauts de phase nécessaires à la fabrication d'EOD sur 4 niveaux.

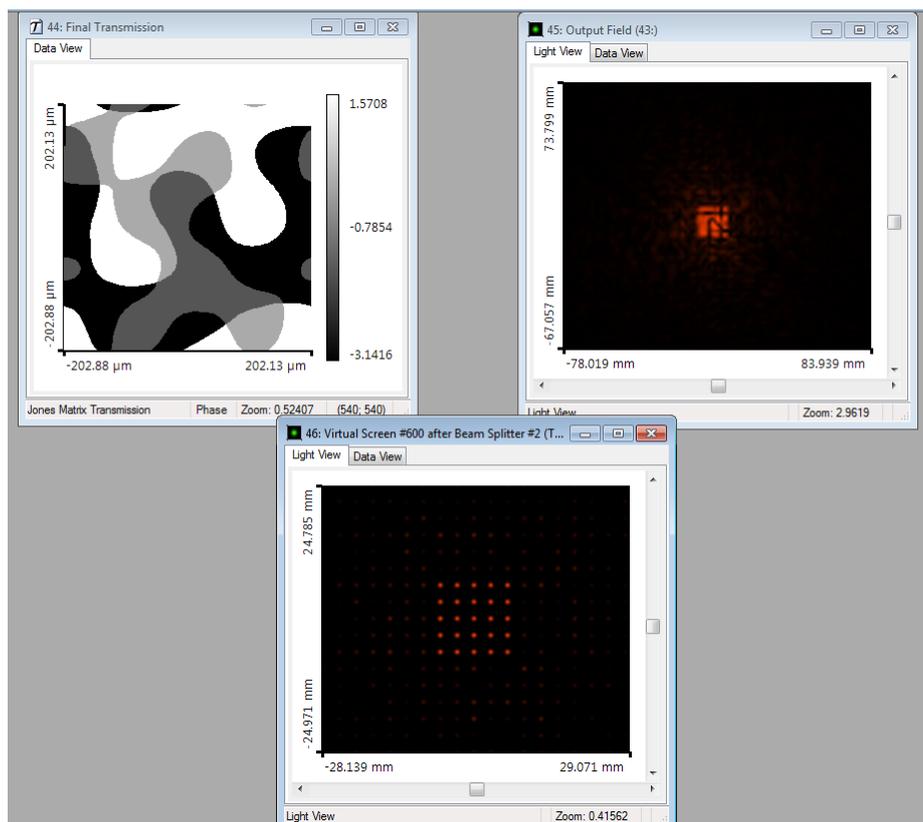


Figure 74 : Capture d'écran du logiciel VirtualLab lors du design d'un EOD à 4 niveaux permettant de générer en champ lointain une matrice de 5×5 points

La fabrication d'un filtre à plusieurs niveaux nécessite un contrôle précis des sauts de phase entre chaque niveau pour permettre d'obtenir de niveaux de phase réguliers et en accord avec ceux spécifiés.

5.3 Développement d'un banc optique d'exposition pour la fabrication d'EODs

Pour pouvoir fabriquer ce type d'élément, nous avons développé un banc optique capable de reproduire les motifs de base présentés sur la Figure 73 et de les photo-inscrire dans une couche à base d'As₂S₃. Pour ce faire nous nous sommes inspirés des techniques utilisées en général pour la fabrication de tels éléments : la photolithographie. Nous avons donc utilisé un masque qui permet de contrôler la distribution locale d'énergie sur le matériau photosensible selon la carte de phase de l'EOD. Etant donné le nombre d'échantillons à produire et afin d'avoir la possibilité de modifier le profil de phase de l'EOD à volonté, nous n'avons pas utilisé un masque fixe. En effet, de tels masques sont intéressants du point de vue de la précision et de la taille minimale des éléments qu'il est possible de générer mais ne permet aucune modification du motif une fois le masque fabriqué. Nous avons donc décidé de nous tourner vers une méthode plus versatile basée sur un modulateur spatial de lumière qui permet de modifier à façon la distribution spatiale de la lumière. Des travaux antérieurs dans l'équipe Couches Minces Optiques sur ce sujet ont été basés sur l'emploi d'une matrice de micro-miroirs [13], [30]. Cependant un tel système présente une résolution spatiale limitée à la taille des pixels si utilisée sans grandissement ($\sim 14 \mu\text{m}$) et fonctionne en réflexion, ce qui met sa mise en œuvre plus complexe. De plus, du fait des effets de diffraction, la résolution était limitée à des valeurs de l'ordre de $30 \mu\text{m}$, ce qui ne permettait pas d'obtenir des EODs avec des larges angles de diffraction.

Nous avons donc choisi un modulateur spatial de lumière (SLM) en transmission du type LCD L3C07U-85G13 de BBS BildSysteme. La dalle est fabriquée par Epson. Elle comprend 1920×1080 pixels d'une taille de $8,5 \mu\text{m} \times 8,5 \mu\text{m}$, soit une taille physique totale de $16 \text{ mm} \times 9 \text{ mm}^2$. La structure du panneau est en configuration d'alignement vertical (VA) ce qui signifie que les cristaux liquides sont alignés verticalement par rapport au substrat (perpendiculaire). Selon la tension appliquée, les molécules se placent alors en position horizontale (pixel blanc) ou alors reste verticale (pixel noir). Ce système fonctionne de la même manière que la majorité des écrans LCD présents dans les ordinateurs, télévision. En plaçant un polariseur avant et un après la dalle LCD, nous obtenons un modulateur spatial de lumière en amplitude. Ce modulateur de lumière fonctionne comme un écran ; il suffit de le connecter et de lui faire envoyer une image de la bonne dimension pour qu'il l'affiche.



Figure 75 : Image du modulateur spatial de lumière (LCD) avec le connecteur pour la carte principale

Le panneau est transparent sur tout le spectre du visible quand les pixels sont mis en blanc. Il sera cependant important de mesurer l'intensité des pixels noirs afin de vérifier que le contraste d'intensité entre les pixels blancs et les pixels noirs est suffisant, typiquement un facteur 100 ou plus.

5.3.1 Description du banc optique d'exposition

Pour l'exposition nous avons décidé, comme expliqué dans la partie 3.7.4, de travailler sur des couches d' As_2S_3 de $6,3 \mu\text{m}$ d'épaisseur déposées sur des substrats de verre, permettant ainsi un saut de phase supérieur ou égal à π entre les parties exposées et non exposées. Au vu de l'épaisseur des couches utilisées, nous avons donc choisi de travailler avec une source d'exposition émettant à 532 nm. A cette longueur d'onde, la fraction de l'énergie absorbée par une couche d' As_2S_3 étant moins importante qu'à 470 nm, il est donc possible de modifier la couche sur toute son épaisseur de manière quasi-homogène et uniforme. La source utilisée est un laser Opus 532 continu de Laser Quantum. Le laser émet un faisceau TEM00 à 532 nm avec une puissance maximale de 1,5 W. La sortie du laser est donc un faisceau gaussien collimaté de diamètre $1,8 \pm 0,2 \text{ mm}$ et polarisé linéairement.

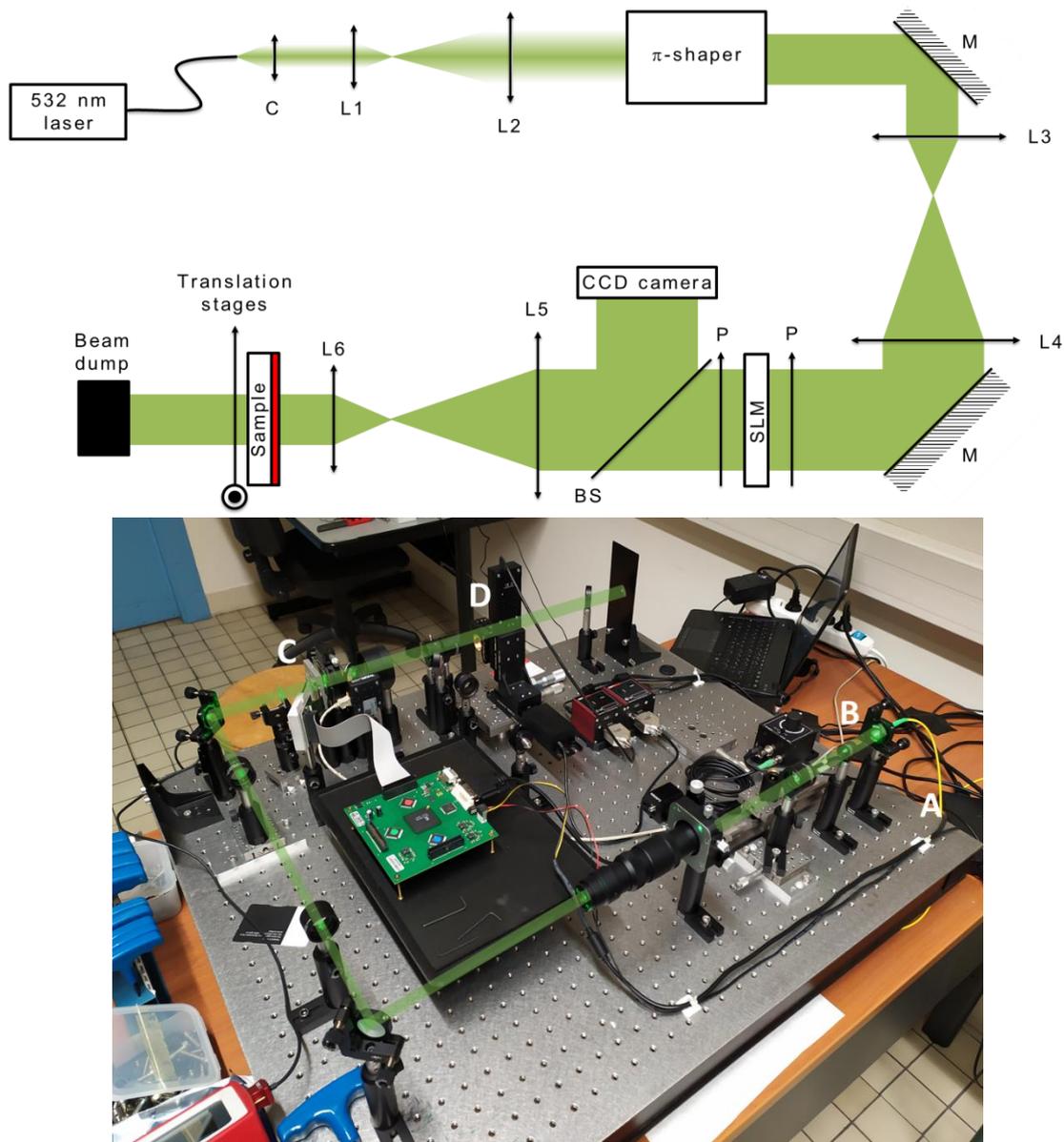


Figure 76 : (Haut) Schéma descriptif du banc optique d'exposition d'EODs de volume (Bas) Photo du montage expérimental d'exposition réalisé

Le schéma ainsi que le montage réalisé sont montrés sur la Figure 76. Le faisceau émis par le laser est tout d'abord imagé avec un système afocal à deux lentilles (L1 + L2) sur un convertisseur de faisceau (π -shaper de chez AdlOptica) avec un grandissement $\times 3$. En effet, pour fonctionner correctement, le diamètre du faisceau doit être collimaté et avec un diamètre aux alentours de 6 mm. En sortie du convertisseur, le faisceau est toujours collimaté mais présente une distribution d'énergie uniforme (top-hat circulaire). Ce faisceau est en suite à nouveau agrandi avec un système afocal à deux lentilles (L3 + L4) et un grandissement $\times 1,5$ pour produire un faisceau de diamètre 9 mm et compatible avec la dimension latérale du SLM et éviter les problèmes de diffraction liés aux bords de l'écran. L'écran LCD, placé entre deux polariseurs croisés est positionné dans le plan focal de la lentille L4 puis est imagé à l'aide

d'un troisième système afocal à deux lentilles (L5 + L6) sur la couche de chalcogénures dans laquelle le motif va être inscrit. Nous avons considéré deux configurations d'enregistrement. Tout d'abord un système produisant un grandissement de 1 : 1, c'est-à-dire constitué de deux lentilles de focales identiques ($f_5 = f_6 = 100$ mm). Cependant, compte tenu de la taille des pixels et de leur périodicité, ceux-ci vont se comporter comme un réseau de diffraction qui va produire un grand nombre d'ordres de diffraction en sortie de SLM. Compte tenu du système d'imagerie utilisé, i.e. des achromats et de la présence d'aberrations, il n'est dans ce cas pas possible d'obtenir une superposition parfaite de tous les ordres de diffraction dans le plan focal image de la dernière lentille où la couche d'As₂S₃ est placée, ce qui se traduit par un brouillage de l'image. Pour éviter ce problème, nous avons donc placé un trou de filtrage dans le plan focal situé entre les deux lentilles pour filtrer spatialement les différents ordres diffractés et ne sélectionner que l'ordre zéro du motif généré par le SLM. De ce fait, les effets de brouillage sont supprimés mais les bords des pixels seront affectés et donc moins francs. De plus, une quantité d'énergie non négligeable contenue dans les ordres diffractés est perdue. En revanche, cette perte d'énergie est assez peu problématique dans notre cas compte tenu de la puissance disponible avec le laser. De plus, comme nous le verrons par la suite, la raideur des flancs est suffisante pour produire des éléments en accord avec les performances théoriques attendues. Nous avons ensuite investigué l'influence de la décroissance des motifs en produisant un grandissement 1/3 dans le plan focal de la lentille L6 ($f_6=30$ mm) afin de produire des pixels élémentaires de 2,55 μm de côté. L'échantillon est placé sur un système de platines motorisées qui permet de le déplacer selon les deux directions transverses au faisceau d'écriture et ainsi, d'enregistrer différents motifs les uns à côté des autres afin d'augmenter la taille de l'élément final.

Nous avons enfin placé, entre le SLM et la lentille L5 une séparatrice fine (pellicule beamsplitter) et une caméra CCD. Cette caméra, placée dans le plan focal objet de la lentille L5, permet de positionner un nouvel échantillon dans le plan focal image de la lentille L6.

Nous avons également intégré sur le montage un système de caractérisation (Figure 77). Afin de caractériser l'élément, un laser HeNe à 633 nm de 10 mW de chez Thorlabs est utilisé pour illuminer l'élément en cours de fabrication. En effet, c'est pour cette longueur d'onde que nous avons décidé de fabriquer les éléments compte tenu de la bande de transparence des couches d'As₂S₃. Le laser émet un faisceau de 1 mm de diamètre qui est agrandi à l'aide d'un système de deux lentilles avec un grandissement 1 : 5 (L7 et L8). L'échantillon est, en cours d'exposition, placé dans le plan focal de la lentille L8 avec un angle inférieur à 10° compte tenu de l'encombrement du système d'écriture. De plus, cet angle permet d'étudier aussi bien en transmission qu'en réflexion la distribution d'intensité produite par les échantillons en cours de fabrication. Enfin, une lentille L9, placée après l'échantillon permet de focaliser le faisceau incident sur une caméra placée dans le plan focal de cette lentille et ainsi de créer, par transformée de Fourier, une image en champ lointain du profil d'intensité.

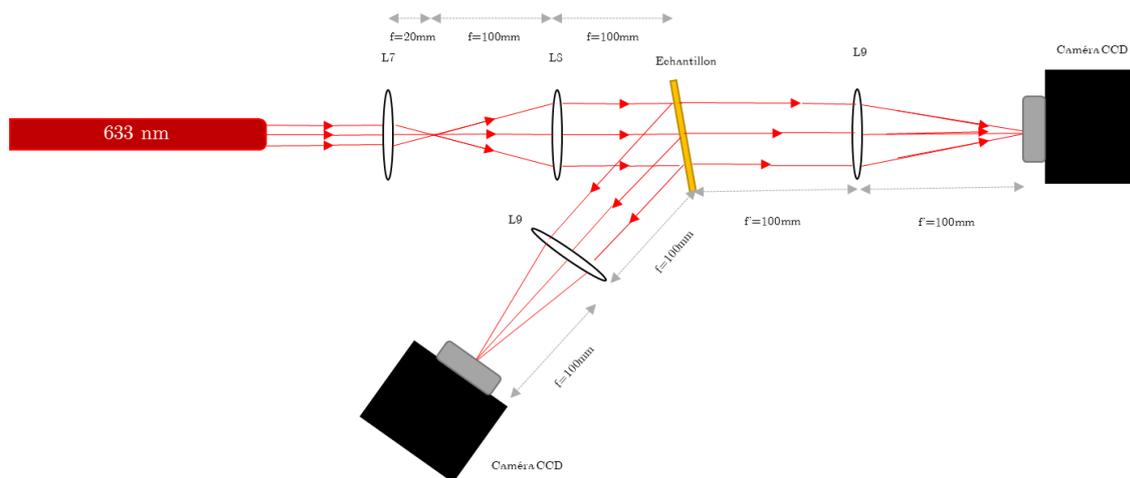


Figure 77 : Schéma de principe de la partie caractérisation in situ d'EODs pendant l'exposition

La caméra en transmission peut être remplacée par une photodiode afin de quantifier l'énergie pour chaque ordre. A noter que la configuration en réflexion, même si elle ne permet pas de caractériser directement l'élément fabriqué, permet de garantir qu'un déphasage égal à π a bien été atteint. En effet, un critère d'arrêt, dans ce cas, est la disparition de toute mise en forme de faisceau quand un déphasage de π en transmission, et donc 2π en réflexion du fait de l'aller-retour dans la couche, est atteint.

5.3.2 Optimisation de l'exposition pour la fabrication d'EODs

Une fois l'alignement du montage de la Figure 76 et de la Figure 77 effectué et validé, nous avons réalisé un ensemble de validations et de tests permettant de déterminer les paramètres d'exposition pour la fabrication des EODs. Deux types de caractérisations ont été réalisés : le premier concerne le contraste entre pixels noirs et blancs et le deuxième la durée de l'exposition.

5.3.2.1 Optimisation du contraste entre pixels noirs et blancs

Le système utilise un laser en continu à 532 nm. L'ensemble des éléments utilisés sont des éléments passifs basés sur des éléments réfractifs, excepté le modulateur spatial de lumière qu'il est nécessaire d'optimiser.

Nous avons donc ajusté le contraste de puissance entre pixels blancs et noirs et en optimisant les angles entre le polariseur d'entrée, le SLM et l'analyseur puis mesuré la puissance transmise par le SLM quand les pixels sont blancs et quand les pixels sont noirs. On obtient un ratio de 1 pour 1 600 ce qui devrait donc nous permettre d'enregistrer les éléments avec un grand contraste. Cette caractérisation ne prend pas en compte les effets de diffraction

entre un pixel noir et un pixel blanc. Cet effet sera quant à lui estimé à partir des EODs qui seront fabriqués par la suite.

5.3.2.2 *Durée d'exposition optimale théorique*

Le calcul de la durée d'exposition nécessite de prendre en compte différents paramètres tels que : la surface d'exposition, la puissance du faisceau sur cette surface ainsi que la densité d'énergie requise pour atteindre une variation de phase donnée dans une couche d'As₂S₃. Dans le cas où le modulateur spatial de lumière produit une illumination uniforme blanc, la puissance au niveau de l'échantillon est de 13,8 mW et le faisceau est distribué de manière uniforme sur une surface de circulaire de 9 mm de diamètre sur le SLM. On obtient une densité de puissance de 21,7 mW/cm² dans le cas d'un grandissement $\times 1$ dans le plan de l'échantillon.

Le calcul de la variation de phase suit l'équation donnée dans la partie 3.7.4. On souhaite avoir un saut de phase de π entre les parties exposées et non exposées. Nous pouvons ainsi calculer à partir de l'intensité d'exposition par unité de surface le temps optimal pour obtenir le saut de phase théorique qui est de l'ordre de 25 minutes dans le cas d'un grandissement $\times 1$ dans le plan de l'échantillon et de 5 minutes dans le cas d'un grandissement $\times 2,3$ dans le plan de l'échantillon.

5.3.3 **Alignement et positionnement de l'échantillon**

Un des paramètres critiques pour l'obtention d'EODs présentant des motifs de petite taille est le positionnement correct de la couche d'As₂S₃ dans le plan focal de la lentille L6. Une méthode spécifique a été développée. Tout d'abord nous avons réalisé, à l'aide du SLM, un ensemble de figures de calibration du type mires de différentes dimensions et résolutions (cf. Figure 78), à savoir : des lignes de 1 pixel noir et 2 pixels blancs, 5 pixels noirs et 10 pixels blancs et 10 pixels noirs et 10 pixels blancs ainsi que des damiers de 1 pixel, 5 pixels et 10 pixels.

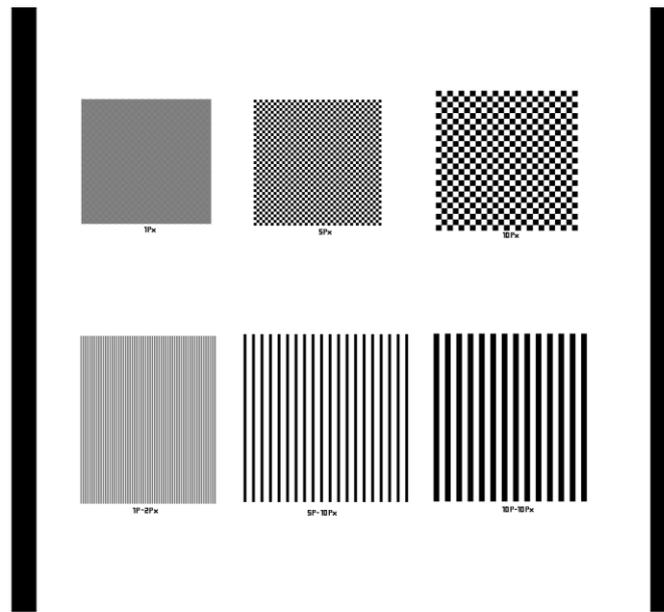


Figure 78 : Image de la mire utilisée pour l'alignement du banc optique d'exposition d'EODs de volume

Nous avons ensuite enregistré, dans une monocouche d' As_2S_3 , les motifs de la Figure 78 pour différentes distances de la lentille L6. Après enregistrement, une image des motifs enregistrés a été réalisée à l'aide d'un microscope à contraste de phase (DIC) (Figure 79) (cf. 2.2.3.2). Bien que le contraste d'intensité soit assez limité, il est possible de définir une position de l'échantillon associée à une définition optimale de chacun des motifs. Pour cette position, même s'il existe une limitation de la résolution du fait de la résolution de la caméra égale à $5 \mu\text{m}$, on peut voir qu'il est possible de produire des motifs proches d'un pixel de SLM.

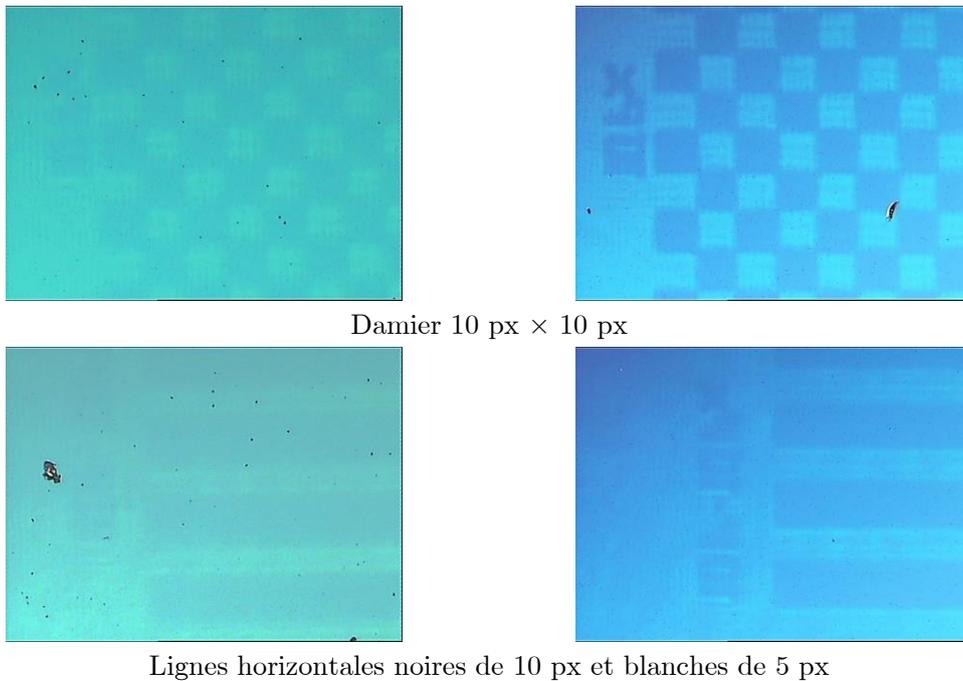


Figure 79 : Images typiques obtenues par microscopie optique (grandissement $\times 10$) dans des couches d' As_2S_3 lors de l'alignement, avec la mire, du banc optique d'exposition d'EODs de volume : à gauche avant optimisation de la position de l'échantillon dans le plan focal de la lentille L6, à droite après optimisation

Enfin, nous avons positionné précisément la caméra CCD présentée dans la Figure 76 dans le plan focal objet de la lentille L5 et utilisé l'image sur la caméra des échantillons d'As₂S₃, pour le repositionnement précis de nouveaux échantillons qui seront enregistrés dans le suite de ces travaux

5.4 Fabrication d'EODs binaires en Phase

5.4.1 Fabrication d'EODs par photo-lithographie

5.4.1.1 *Méthode de fabrication d'EODs par photo-lithographie*

Dans notre étude, nous proposons une méthode de fabrication d'EODs par variation d'indice photoinduite. Afin de caractériser les performances des composants fabriqués, nous avons réalisé une étude comparative avec des éléments fabriqués à l'aide d'une technique classique basée sur la photolithographie. Ces fabrications ont été réalisées à l'IMT Atlantique au sein de l'équipe de M. Kevin Heggarty, lors d'un séjour de recherche dans leur laboratoire. La méthode de fabrication est basée sur un photo-traceur à écriture directe [154]–[156]. Ce principe se déroule en plusieurs étapes schématisées dans la Figure 80 (a).

Tout d'abord le substrat est nettoyé et chauffé pendant quelques minutes afin de limiter la quantité d'humidité et donc d'eau présent à la surface du verre. Ensuite, grâce à un spin-coater (cf. (b) Figure 80), une couche de photo-résine de l'épaisseur calculée pour permettre le saut de phase nécessaire est déposée sur le substrat. La photo-résine utilisée est de la S1805 [157] déposée à 2500 tr/min. La vitesse de rotation utilisée permet de contrôler l'épaisseur de la couche de résine : 2500 tr/min produit une couche d'épaisseur égale à environ 500 nm. Le lien entre vitesse de dépôt et épaisseur déposée dépend des paramètres physiques de la résine mais aussi du temps pendant lequel la rotation du substrat est effectuée. Ensuite le photo-traceur (visible sur le (c) de la Figure 80) est utilisé pour exposer avec le motif choisi. En fournissant le profil de phase de l'EOD à fabriquer, le photo-traceur va exposer, avec une taille de pixel définie (cf. schéma (d) Figure 80), la résine photosensible. L'utilisation d'une telle machine permet la fabrication rapide, simple et à bas coûts de prototypes. La dernière étape consiste à développer c'est-à-dire enlever la résine exposée (résine positive) grâce à une solution chimique (développeur MF319 [158]) pendant quelques minutes.

Les éléments fabriqués sont ensuite caractérisés à l'aide d'un microscope et d'un banc de mesure permettant d'évaluer l'efficacité de diffraction de l'élément.

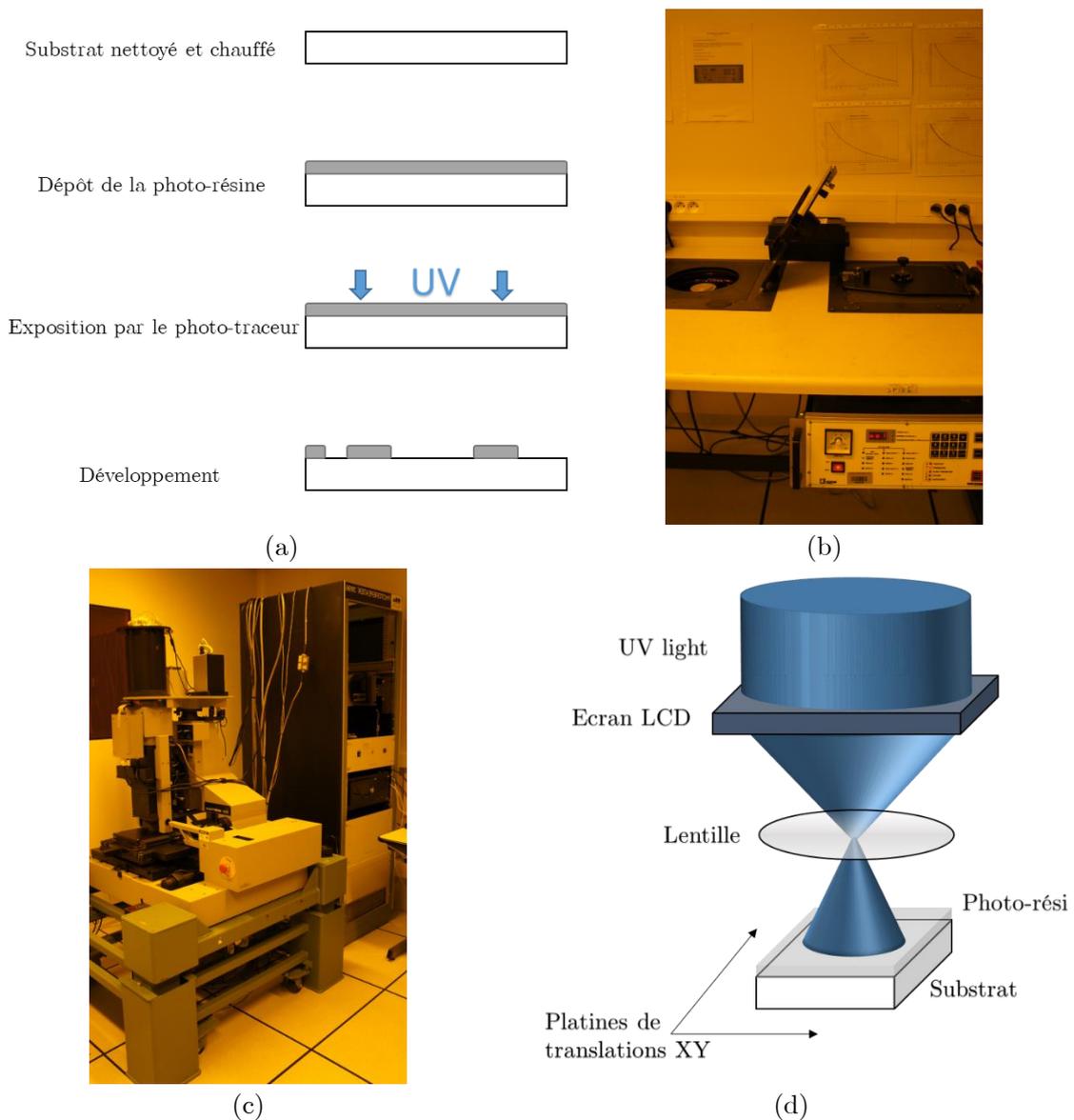


Figure 80 : (a) Schéma du principe du procédé de fabrication d'EODs utilisé à l'IMT Atlantique (b) Spin-coaters (c) Phototracer à écriture directe (d) Principe du phototracer

5.4.1.2 Résultats

Plusieurs échantillons ont été fabriqués à l'IMT Atlantique. Ceux que nous allons étudier ici ont une taille de pixel d'EOD comparable à celle obtenue avec le SLM du montage de la Figure 76 avec un grandissement $\times 1$. La taille d'un pixel sur l'échantillon réalisé à l'IMT Atlantique est donc de $8,25 \mu\text{m}$ ce qui correspond à 11 fois la taille accessible avec le système de la Figure 80 (750 nm). Le substrat de départ est un substrat de silice de 50 mm de diamètre. L'épaisseur de la couche de photo-résine déposée est de 495 nm . Grâce au microscope, il est possible de valider que l'étape de développement de la résine a correctement fonctionné en regardant la limite entre zone exposée et non exposée. L'image de droite de la

Figure 81 montre que toute l'épaisseur de la résine a été enlevée dans la zone exposée. On peut aussi remarquer que la zone de transition entre une zone gravée et une zone non gravée est très faible et de l'ordre du micromètre ou inférieur.

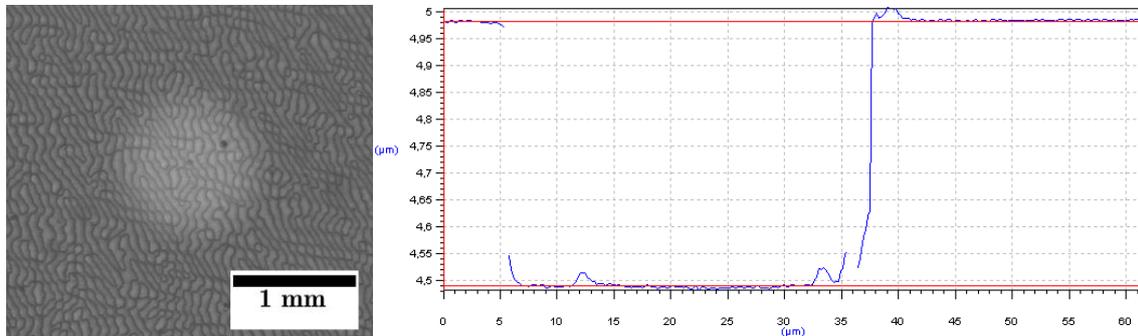


Figure 81 : Caractérisation du profil spatial d'épaisseur inscrit dans des couches de résines à l'IMT Atlantique : à gauche, une image par microscopie optique du motif de l'EOD donnant le logo RCMO (grandissement $\times 2$), à droite, une mesure par profilométrie de l'épaisseur de résine à la transition d'un motif gravé

Sur la Figure 81, l'image de gauche montre la qualité de l'enregistrement. On peut parfaitement retrouver le motif de la Figure 73. Sur un EOD où les deux zones de phase sont quasi transparentes dans le visible il est difficile de voir quelles parties de l'EOD appartient à quelle zone. Cependant on peut clairement mettre en évidence les sauts de phase entre les deux zones.

Après l'étude physique de l'inscription des cartes de phase sur l'échantillon, il est nécessaire de valider puis de quantifier le résultat obtenu par ces EODs. Pour la partie validation, il faut comparer l'inscription faite avec celle prévue (motifs EODs pré-calculés) ainsi que l'image obtenue par ces EODs avec le rendu théorique calculé par le logiciel VirtualLab. Et pour la seconde partie, il faut quantifier la quantité d'énergie qui est diffractée dans l'ordre 0 et celle dans les ordres supérieurs. Cette partie de quantification de l'efficacité de diffraction de l'ordre zéro sera présentée dans la partie comparaison avec les EODs fabriqués par différentes techniques (cf. 5.4.3).

Pour commencer nous allons donc analyser par microscopie les inscriptions réalisées par photolithographie. Les résultats sont montrés dans la Figure 82. La première comparaison est entre le profil théorique obtenu par le logiciel et celui après fabrication à l'IMT Atlantique. Le microscope utilise un grandissement $\times 2$. On voit clairement le très bon accord entre le profil théorique et celui visible dans le microscope. Les lignes délimitant les sauts d'épaisseur (donc de phase) sont les seules délimitant des zones iso-phase. Dans le cas de la grille il est aussi possible de voir la similarité entre les profils. Mais dans le dernier cas (celui des logos RCMO) au vu de la taille assez petite des zones isophases la comparaison entre les motifs théoriques et expérimentaux est plus difficile à réaliser même si l'accord semble très bon.

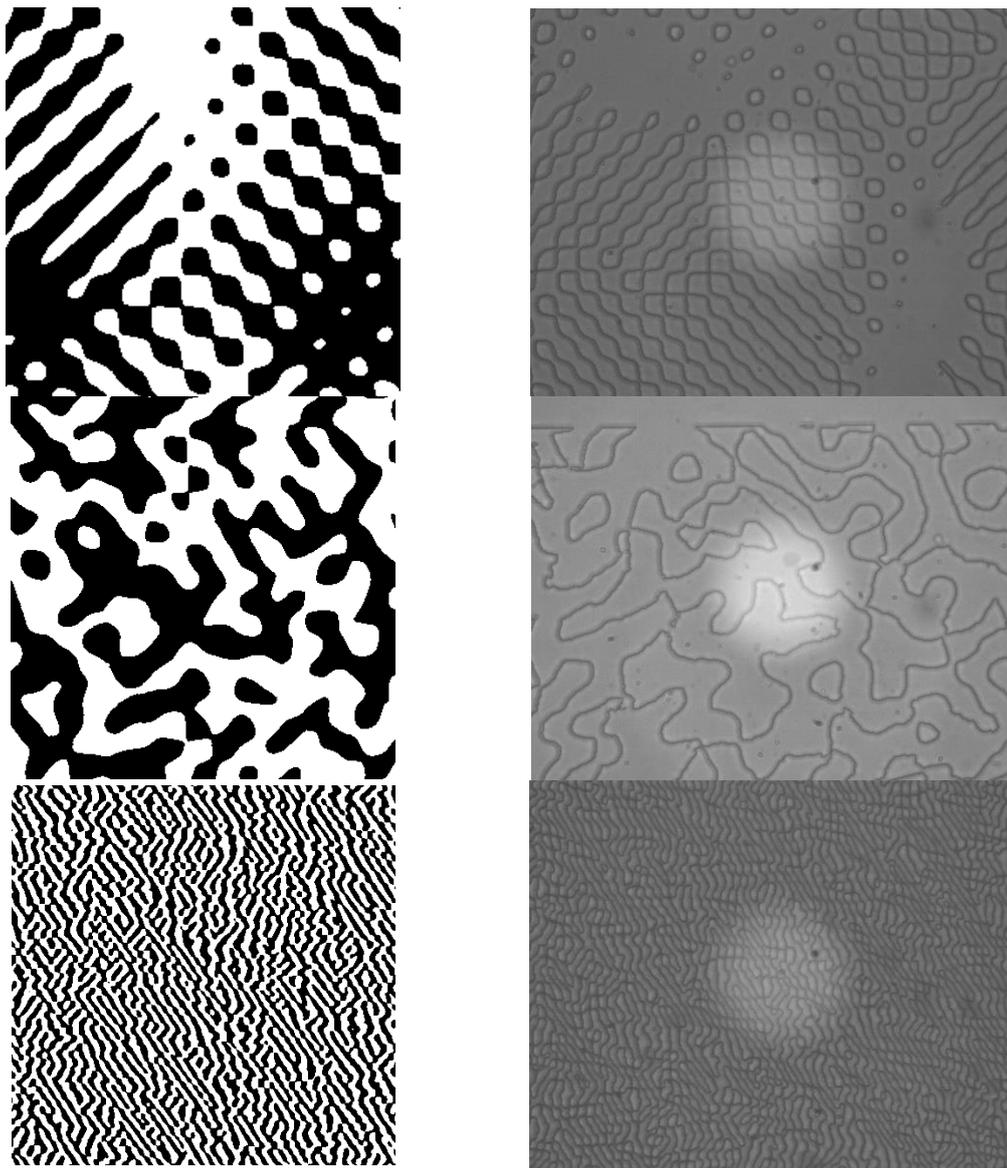


Figure 82 : Comparaison entre les profils de phase théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite), réalisés par photolithographie et visualisés par un microscope avec un grossissement (grandissement $\times 2$). De haut en bas : viseur en croix – grille – logo RCMO

Une fois la validation géométrique des motifs inscrits faite, il est nécessaire de vérifier que les éléments produisent les bons motifs de diffraction en champ lointain. Pour cela nous avons utilisé le montage décrit dans la Figure 77 en plaçant l'échantillon fabriqué à l'IMT Atlantique dans le montage. Le résultat est alors enregistré sur la caméra CCD. Il est parfois nécessaire de rajouter une ou plusieurs densités optiques pour que l'affichage sur la caméra se fasse sans saturation.

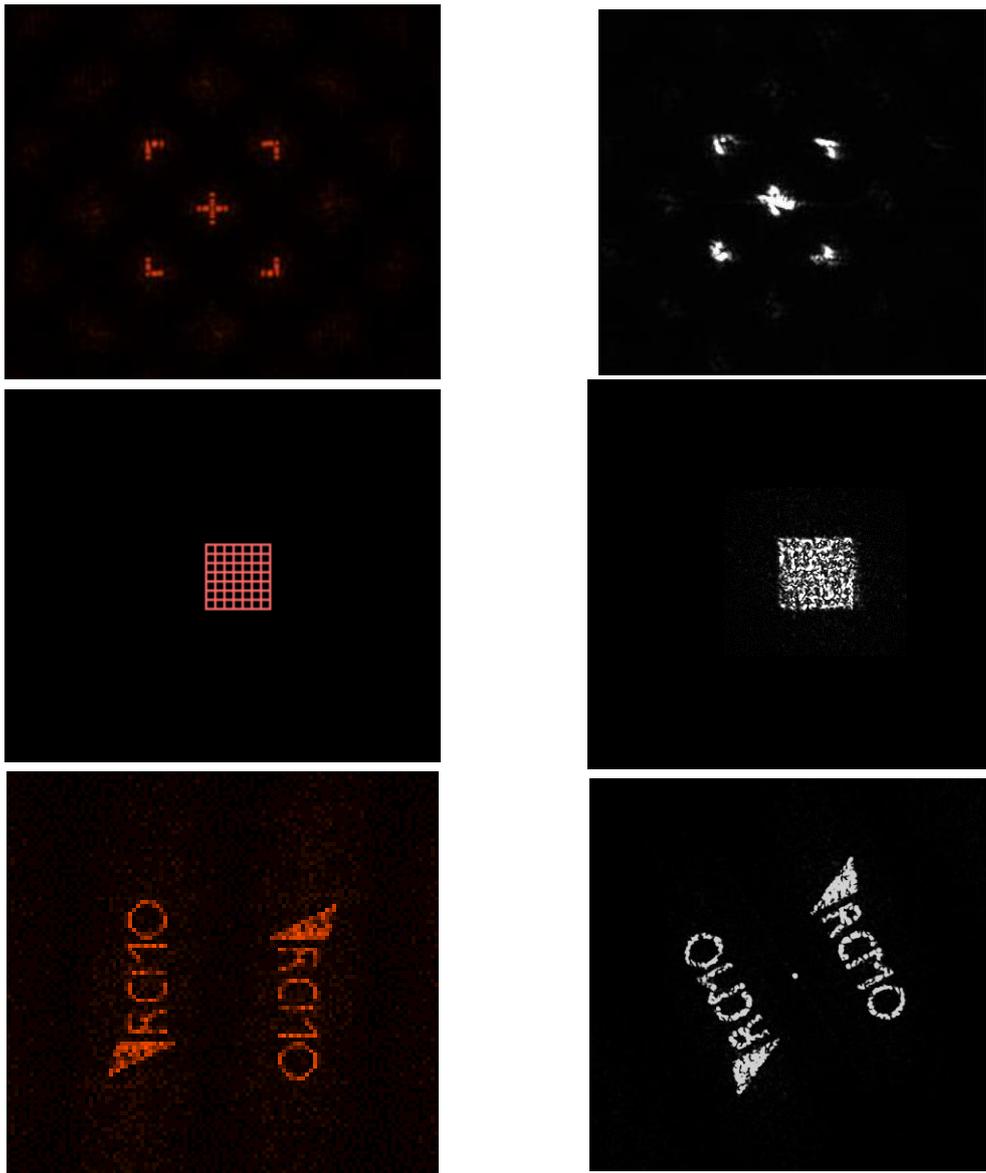


Figure 83 : Comparaison entre les profils théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite) de l'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs réalisés par photolithographie. De haut en bas : cible en croix (viseur) - grille - logo RCMO

La Figure 83 présente une comparaison entre les profils théoriques obtenus avec le logiciel de calcul et les images finales obtenues après fabrication des EODs. Pour le viseur, il est possible de remarquer que les lignes et bords ne sont pas nets contrairement à l'image théorique calculée. Pour la grille il est possible de reconnaître la forme de celle-ci sur l'image expérimentale mais les lignes déterminant la grille sont également peu nettes. Dans les derniers profils montrés (représentant le logo RCMO), l'image finale est très ressemblante à celle théorique. Il est possible cependant de voir la présence de l'ordre 0 plus importante dans le cas expérimental que dans le cas théorique. Mais le reste de l'image est nette comme montré par les parties droites du R ou du M.

Cette première série de fabrication, utilisant la technique usuelle (la photo-lithographie), montre la faisabilité de ces EODs de manière classique. Cela donne aussi une idée des images qui peuvent être obtenues à partir des motifs créés par le logiciel. Cette série servira de témoin pour la comparaison avec les EODs faits grâce à un saut d'indice. Cependant, on peut voir que les images sont, en particulier pour la grille, de très mauvaise qualité du fait de la taille des pixels qui sont trop gros pour permettre d'atteindre des motifs très bien définis. Et ce résultat n'est en aucun cas dû à une limitation de la technique de fabrication mais bien au design et aux conditions de fabrication. C'est ce résultat qui nous a donc poussé à réduire la taille des motifs de base de 8,5 à 2,3 μm et ce afin de produire des images de bien meilleure qualité. Dans la suite de ces travaux, nous avons donc dans un premier temps cherché à reproduire les mêmes EODs avec les mêmes dimensions, puis nous avons investigué l'effet d'une modification de la taille des pixels sur les EODs finaux. Des démonstrations expérimentales d'EODs par photolithographie avec des tailles de pixels réduites sont prévues dans les mois à venir.

5.4.2 Fabrication d'EODs par photosensibilité dans des couches d' As_2S_3

5.4.2.1 Fabrication

A partir du montage décrit dans la Figure 76, nous avons enregistré des EODs directement sur des couches d' As_2S_3 . Afin de prévenir les problèmes exprimés précédemment dans la partie 3.7.3, nous avons utilisé des empilements multicouches d' As_2S_3 protégés par des structures antireflets. Les échantillons qui seront utilisés dans cette partie seront donc les mêmes que ceux utilisés précédemment. La configuration initiale a donc consisté à utiliser un grandissement $\times 1$ entre le plan du modulateur spatial de lumière et celui de l'échantillon.

Chaque échantillon a donc été placé dans le montage et exposé pour une durée optimale calculée précédemment (liée à la quantité d'énergie surfacique nécessaire à la modification du matériau). Nous avons inscrit jusqu'à 4 motifs différents sur un échantillon de 25 mm de diamètre. La Figure 84 montre une photo d'un des échantillons d' As_2S_3 après l'inscription de divers motifs. Ici on peut retrouver un EOD de guitare (numéro 4), deux pour obtenir un viseur (numéro 1 et 2), et un pour obtenir le logo RCMO (numéro 3). Dans l'image de droite il est possible de mettre en évidence l'aspect de notre réplique de motif ainsi que l'effet diffractif de l'élément par illumination en lumière rasante.

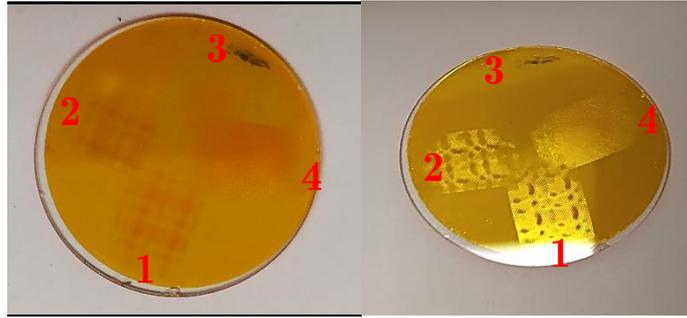


Figure 84 : Photo d'un échantillon d' As_2S_3 dans lequel 4 EODs de phase différents ont été inscrits. 1 : EOD de viseur, 2 : EOD de viseur, 3 : EOD de logos RCMO et 4 : EOD de guitares

Dans la suite, nous avons caractérisé les propriétés géométriques puis de diffraction de ces éléments.

5.4.2.2 Résultats

Pour la caractérisation des performances des EODs fabriqués, nous avons suivi les étapes de validation réalisées pour la caractérisation des EODs fabriqués par photolithographie.

En premier lieu, nous avons réalisé une étude par microscopie des motifs inscrits.

Cependant, dans le cas des EODs inscrits dans l'empilement multicouche contenant de l' As_2S_3 , il est beaucoup plus difficile d'obtenir des images de bon contraste par microscopie classique (Figure 85) et ce du fait du très faible contraste d'indice à mettre en évidence ($<0,1$ alors qu'il est de 0,5 dans le cas d'EODs fabriqués par photolithographie). Nous avons donc utilisé d'autres méthodes de caractérisation.

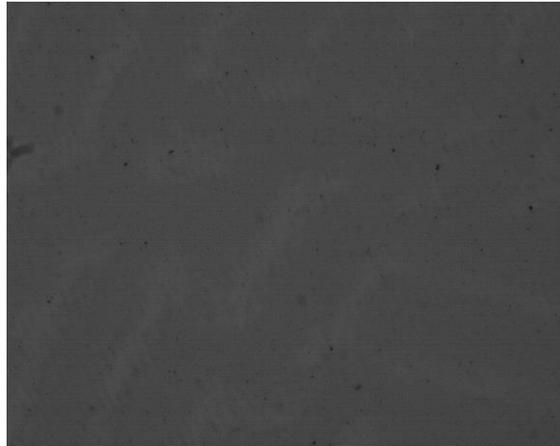


Figure 85 : Exemple d'image obtenue par microscopie classique, d'un EOD enregistré dans un empilement à base d' As_2S_3 et permettant de générer en champ lointain le logo RCMO (grandissement $\times 10$)

L'utilisation d'un microscope DIC de type Nomarski (cf. 2.2.3.2) est donc apparue comme une solution au problème. En effet, il permet la visualisation efficace d'un saut de phase même entre deux parties ayant des transmissions très proches.

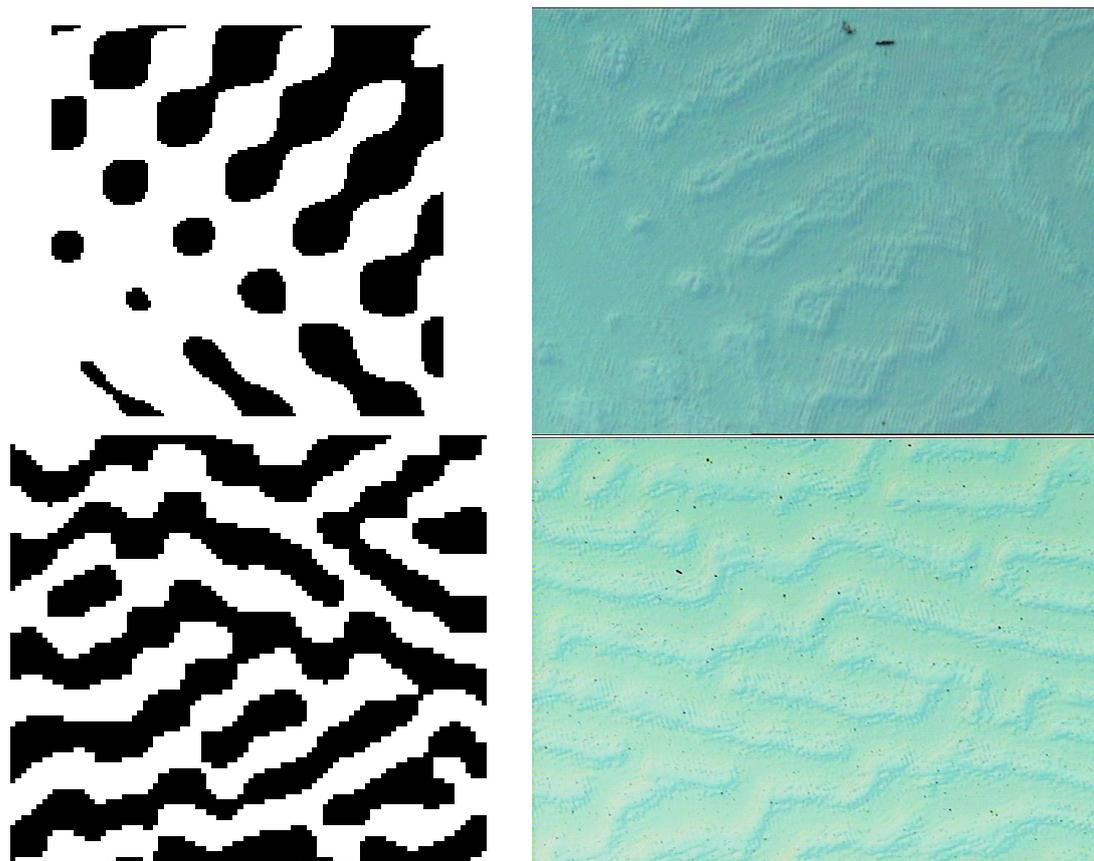


Figure 86 : Exemple d'images obtenues par microscopie DIC (à droite) et des profils de phase théoriques (à gauche), d'EODs enregistrés dans un empilement à base d' As_2S_3 et permettant de générer en champ lointain : en haut : un viseur en croix et en bas : le logo RCMO (grandissement $\times 5$)

Sur la première série d'images de la Figure 86 correspondant au viseur, on peut voir un très bon accord entre profil théorique de l'EOD et celui mesuré par microscopie DIC . Il est possible de voir même la présence des îlots de pixels non exposés qui sont de taille réduite (quelques pixels). Le même type d'accord est obtenu sur la seconde série d'images, celle pour l'EOD des logos RCMO, avec des motifs plus petits. On voit donc que les motifs produits sur le modulateur spatial de lumière semblent donc bien avoir été reproduits, sous forme de modulation d'indice de réfraction, dans des couches d' As_2S_3 .

Nous avons ensuite caractérisé les performances optiques en termes de diffraction des EODs fabriqués. Comme indiqué dans la section précédente, même si les designs n'étaient pas optimaux, nous avons étudiés les performances d'EODs identiques à ceux fabriqués par photolithographie avec l'ajout d'un nouveau motif permettant la fabrication de guitares comme image finale. Ce dernier profil présente l'avantage d'avoir des détails assez fins et caractéristiques qui permettront de valider la qualité des images enregistrées.

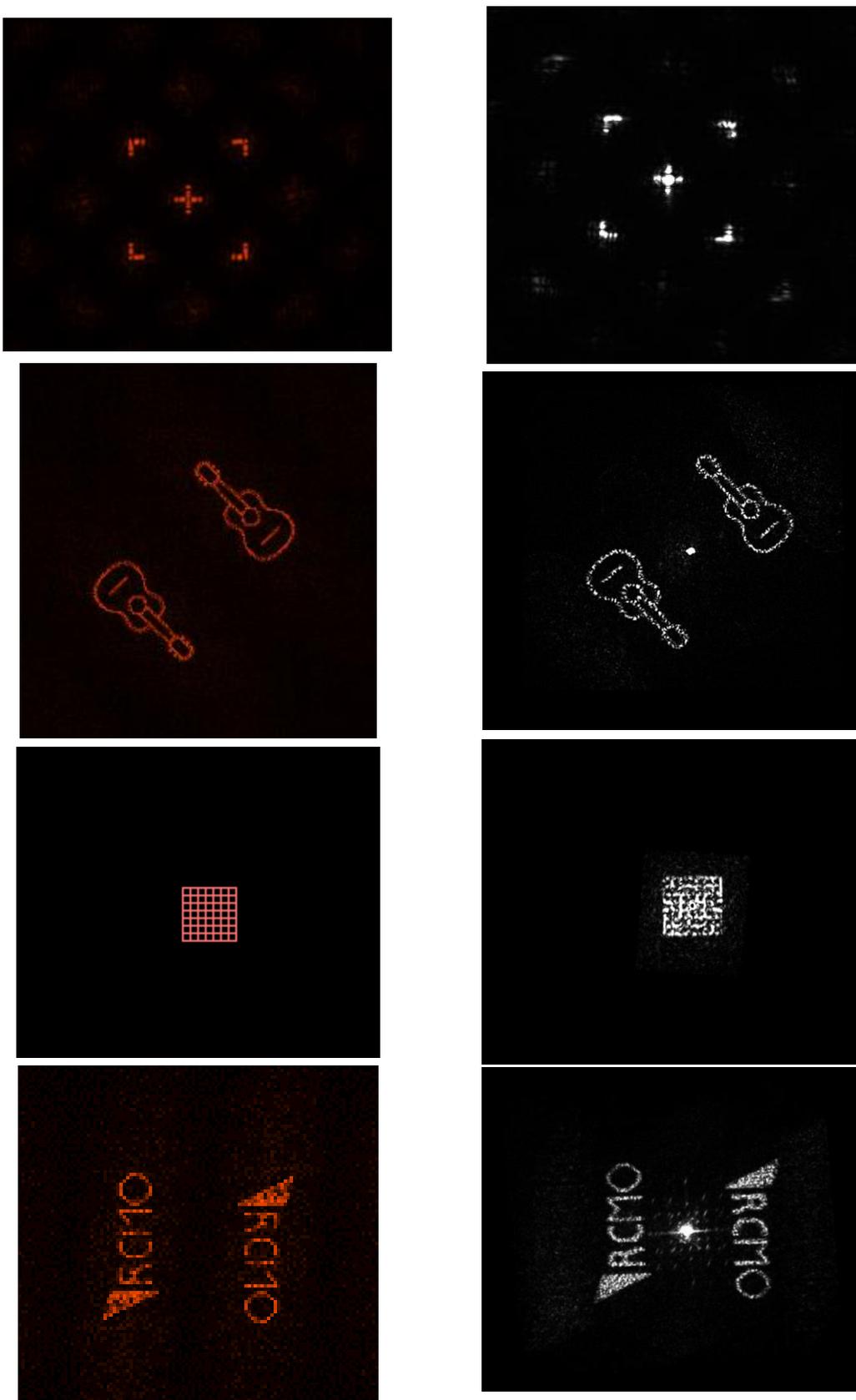


Figure 87 : Comparaison entre les profils théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite) d'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs enregistrés dans des couches d' As_2S_3 . De haut en bas : cible en croix (viseur) - guitares - grille - logo RCMO

La Figure 87 illustre les performances des EODs enregistrés dans des couches d'As₂S₃. Tout d'abord, on peut remarquer que les images obtenues sont assez proches de celles théoriques. Cependant, comme dans le cas des EODs réalisés par photolithographie, les images du viseur et de la grille présentent une mauvaise résolution, non pas du fait de l'enregistrement mais de la qualité du design associée à la taille des motifs. Le viseur présente également des ordres de diffraction secondaires très importants qui sont dus au design. Le motif associé aux guitares ou au logo RCMO présentent un bien meilleur accord théorie/expérience. Toutefois l'ordre zéro est très présent sur les images de la caméra CCD en particulier dans le cas du logo RCMO.

5.4.3 Comparaison des résultats obtenus pour les différentes méthodes de fabrication

Nous avons donc étudié qualitativement les EODs fabriqués par différentes méthodes de fabrication. Cette étude s'est faite par la comparaison des performances géométriques des profils de phase des EODs inscrits et des accords entre les résultats théoriques et expérimentaux des motifs diffractés pour chaque type de fabrication. Nous avons regroupé ci-dessous quelques éléments de comparaison entre les différents éléments fabriqués.

5.4.3.1 Comparaison qualitative des EODs

La Figure 88 compare les profils de faisceaux diffractés en champ lointain des EODs fabriqués par photolithographie et par photo-inscription dans les couches d'As₂S₃. On peut tout d'abord voir que les deux techniques présentent des images très similaires certaines images semblant mieux résolues par l'une des techniques ou l'autre. Par exemple, pour le viseur, les EODs fabriqués sur des empilements d'As₂S₃ semblent de meilleure qualité dans l'ordre 1 mais avec une intensité dans l'ordre zéro plus élevée. Dans le cas de la grille, Les deux techniques donnent des résultats assez similaires avec des lignes composant la grille très peu nette. Enfin, l'EOD donnant le logo RCMO donne des images très similaires quelle que soit la technique utilisée avec un ordre zéro plus important dans le cas de l'EOD fabriqué dans la couche d'As₂S₃. Il est donc difficile d'analyser les résultats avec seulement un aspect qualitatif de l'image finale. Mais ces premiers résultats montrent que dans les deux cas, même avec un mécanisme d'inscription différent, il est possible d'obtenir des performances comparables.

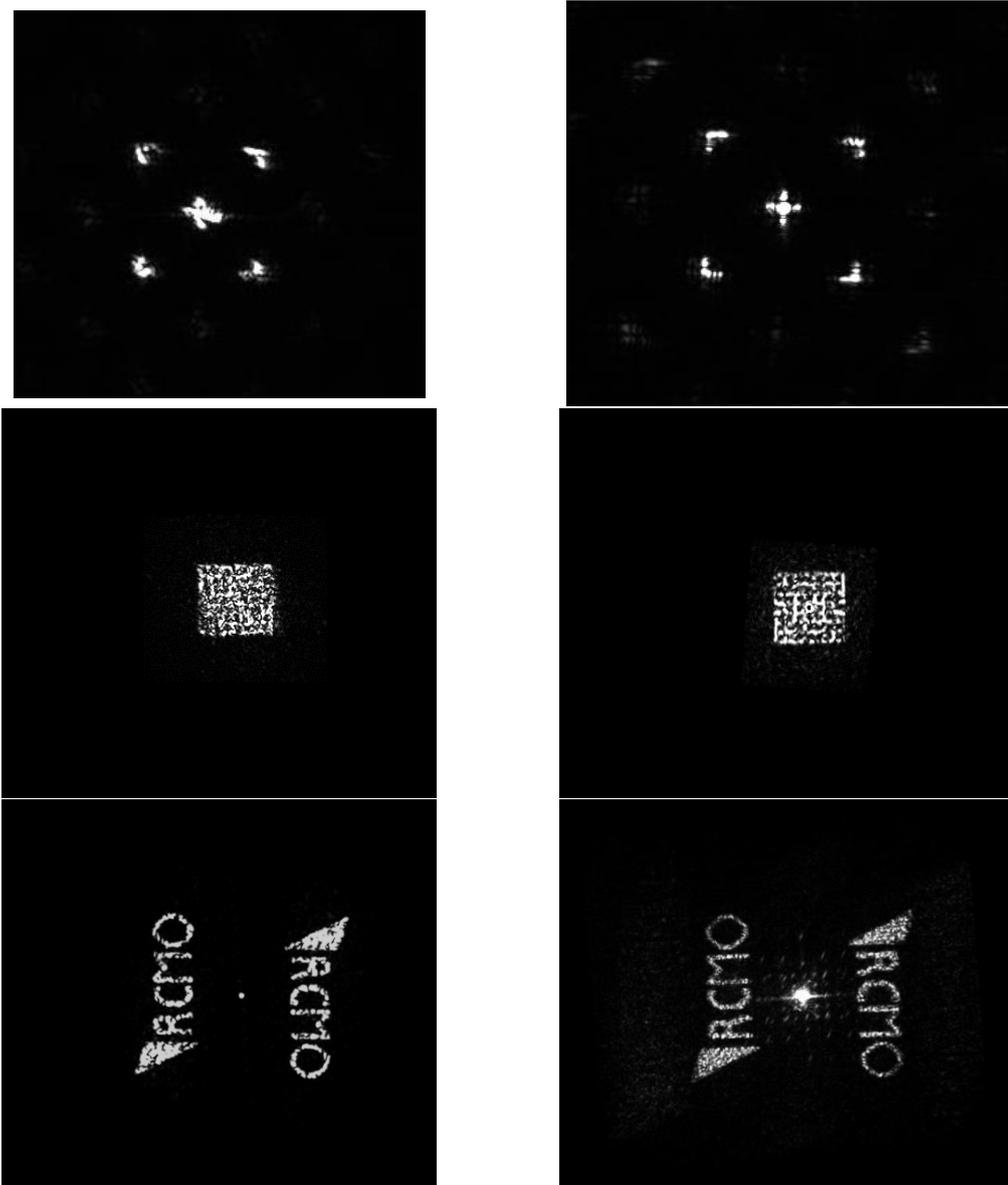


Figure 88 : Comparaison des profils expérimentaux d'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs enregistrés par différentes technologies : à gauche les EODs fabriqués dans des couches de résine par photolithographie et à droite les EODs obtenus par variation d'indice de réfraction photoinduites dans des couches d' As_2S_3

5.4.3.2 Efficacité de diffraction de l'ordre zéro

Après cette étude qualitative des EODs fabriqués, nous avons étudié quantitativement les efficacités de diffraction de l'ordre zéro (η_0) pour les deux méthodes de fabrication. L'efficacité de diffraction de l'ordre zéro est la quantité d'énergie qui reste dans l'ordre zéro (qui n'est donc pas diffractée). Cette étude quantitative est reprise dans le Tableau 6.

	<i>Visueur</i>	<i>Grille</i>	<i>Logo RCMO</i>
<i>Photo-lithographie</i>	<3%	<3%	<3%
<i>Photosensibilité</i>	<8%	<8%	<8%

Tableau 6 : Comparaison des efficacités de diffraction de l'ordre zéro mesurées dans les EODs fabriqués par photolithographie et par variation d'indice de réfraction photoinduites dans des couches d'As₂S₃

On voit que l'ordre zéro a tendance à être plus élevé dans les EODs fabriqués dans des couches d'As₂S₃. Ce résultat s'explique très certainement par un saut de phase non optimisé, c'est-à-dire qui n'est pas strictement égal à π .

5.5 EODs en amplitude par photo-dissolution

Une autre façon de produire de tels éléments ne consiste pas à changer la phase locale transmise, comme dans les différents cas précédents mais l'amplitude locale transmise. En utilisant des motifs similaires à ceux utilisés pour produire des éléments de phase, il est possible de produire des EODs d'amplitude pour la mise en forme du faisceau [159]. Dans ce cas, les EODs présentent une certaine forme d'achromaticité puisqu'ils ne reposent plus sur un saut de phase spectralement variable mais sur un contraste de transmission. Ils sont donc utilisables sur toute la gamme spectrale où ce contraste de transmission est valide. En revanche, la taille de motif est variable spectralement. Nous avons donc utilisé les propriétés de photo-dissolution de l'argent dans des couches d'As₂S₃ pour l'enregistrement d'EODs d'amplitude par inscription laser directe.

Deux des motifs précédents ont été utilisés pour la fabrication d'éléments optiques diffractifs : les guitares ainsi que le viseur. Les profils d'amplitude à enregistrer sont ceux qui ont été calculés à l'aide du logiciel VirtualLab et conçus pour être compatibles avec la résolution de 8,5 μm du SLM. Avec un pas aussi important, seuls des angles de diffraction limités (1-2° pour la lecture) peuvent être obtenus. Pour les motifs les plus grands comme dans le cas des EODs en amplitude la mesure expérimentale en champ lointain présente un certain bruit. Cependant, ces différents motifs ont permis de vérifier le potentiel de cette méthode pour enregistrer des microstructures de différentes tailles. Le temps d'exposition pour tous les profils EODs a été fixé à 5 minutes. Une telle exposition a permis d'obtenir une photo-dissolution complète de l'argent dans la couche d'As₂S₃.

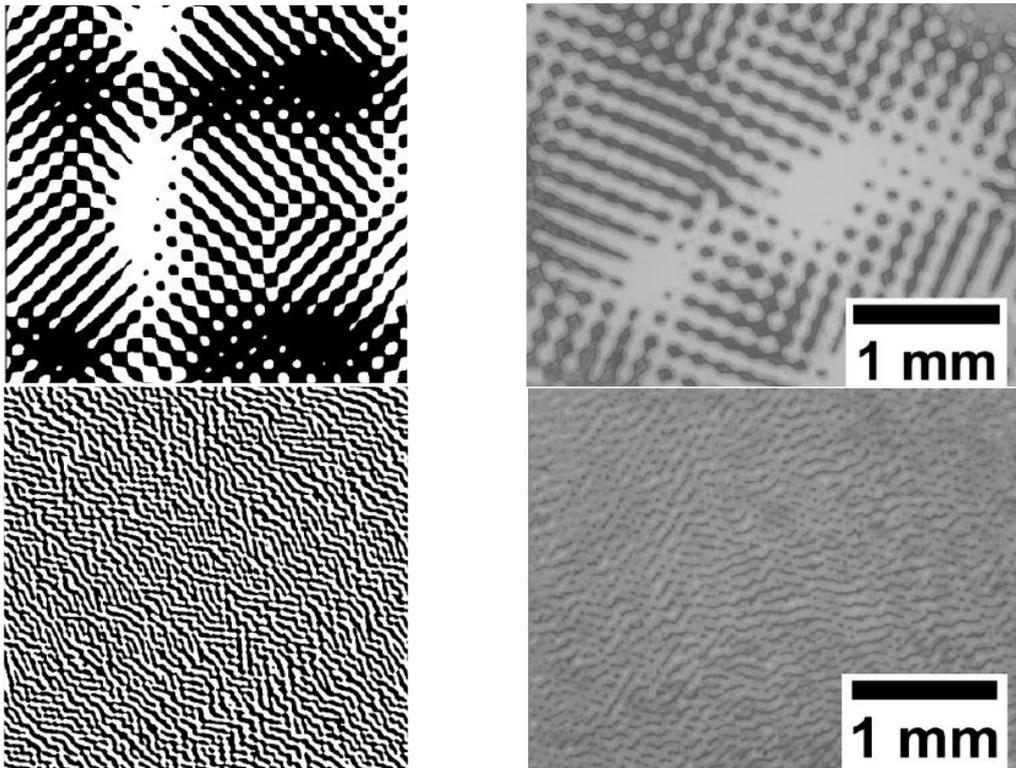


Figure 89 : Comparaison entre les profils d'amplitude théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite) enregistrés dans un bicouche $As_2S_3 + Ag$. En haut : viseur en croix - en bas : guitares

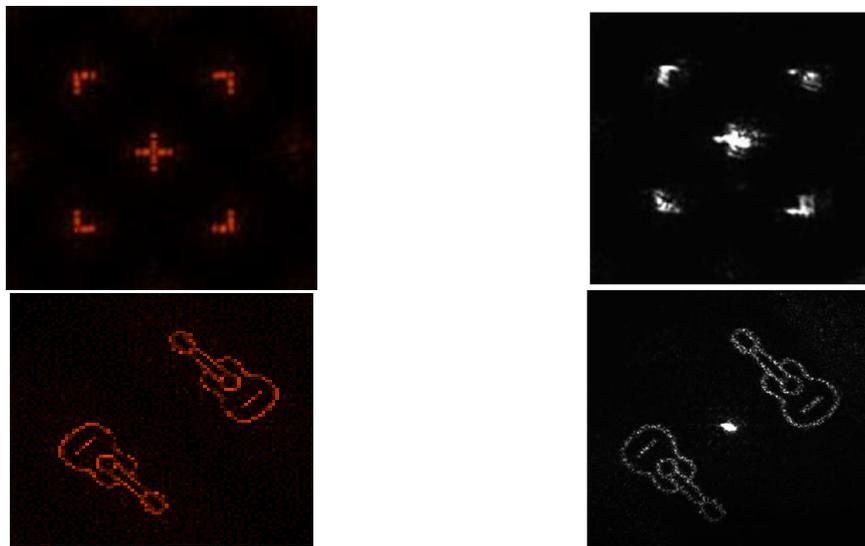


Figure 90 : Comparaison entre les profils théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite) d'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs enregistrés dans des bicouches $As_2S_3 + Ag$. En haut : visière de cible en croix - en bas : guitares

Nous avons dans un premier temps caractérisé au microscope optique le profil d'amplitude enregistré et l'avons comparé aux profils théoriques (Figure 89). Nous avons également

caractérisé les performances en champ lointain de ces éléments. La Figure 90 présente une comparaison entre les profils théoriques et expérimentaux d'intensité diffractée pour chaque type d'EOD.

Tout d'abord, on peut voir sur la Figure 89 que les profils d'amplitude enregistrés sont très proches des profils théoriques, même pour les guitares qui sont associées à des motifs d'amplitude de petites tailles (quelques dizaines de micromètres). On peut également voir que la majorité des caractéristiques des profils d'amplitude du viseur ont été reproduites avec précision, même les zones les plus petites et isolées au milieu des zones uniformes. De même, le profil d'amplitude des guitares a été bien reproduit et des transitions nettes entre les zones sombres et claires peuvent être observées. En ce qui concerne les profils d'intensité diffractés (Figure 26), on constate également une très bonne concordance entre les profils théoriques et expérimentaux. L'ordre zéro peut être vu sur les deux images, montrant que l'enregistrement pourrait être amélioré, cependant, l'intensité de cet ordre zéro ne dépasse pas quelques pourcents de l'intensité totale dans le plan de mesure. Enfin, il serait possible d'obtenir des images plus nettes si l'on enregistrerait les motifs avec une taille de pixel plus petite.

5.6 Optimisation des EODs fabriqués dans des couches d'As₂S₃

Les résultats présentés précédemment, ont permis de montrer que le banc d'exposition que nous avons développé dans le cadre de cette thèse permet de fabriquer des éléments optiques diffractifs à partir des motifs calculés par le logiciel VirtualLab et d'obtenir des résultats comparables à ceux obtenus par une méthode classique de photolithographie. Cependant nous avons mis en évidence que la taille de pixel utilisée pour l'enregistrement d'EODs avant réplique sur le SLM est trop large (8,5 μm) pour permettre d'obtenir des images en champ lointain de bonne qualité. Comme mentionné dans la Section 5.3, le montage présente l'option de pouvoir changer le grandissement du modulateur spatial de lumière dans le plan de la couche d'As₂S₃. Dans cette partie nous nous sommes donc intéressés à l'optimisation de ce paramètre.

5.6.1.1 Diminution de la taille des motifs

Le banc optique d'inscription d'EODs dans des couches d'As₂S₃ comprend après le SLM un système d'imagerie afocal. En configuration standard, deux lentilles imagent le SLM dans le plan l'échantillon avec un grandissement de 1. La modification du ratio des focales entre les lentilles L5 et L6 (cf. Figure 76) permet alors d'obtenir un grandissement < 1 .

Nous avons donc gardé la lentille L5 avec une focale de 100 mm et modifié la lentille L6 avec une nouvelle lentille de focale de 30 mm. On obtient ainsi un grandissement de 0.3 sur l'échantillon ce qui correspond à une taille de pixel au niveau de l'échantillon égale à $8,5 \mu\text{m} \times 0,3 = 2,55 \mu\text{m}$.

Cette différence dans le système d'imagerie va également modifier la taille de la zone éclairée dans le plan de l'échantillon. En effet le SLM a pour dimension $16 \text{ mm} \times 9 \text{ mm}$ de sorte que la zone enregistrée dans la couches d' As_2S_3 sera égale à $4,8 \text{ mm} \times 2,7 \text{ mm}$. La surface exposée sera donc environ 10 fois inférieure à celle précédemment exposée, ce qui se traduira par un temps d'enregistrement également réduit de la même quantité pour obtenir le saut de phase voulu.

5.6.1.2 *Processus de réplification des motifs*

Au vu de la taille assez faible de l'EOD produit par le SLM puis imagé sur l'échantillon, nous avons mis en place un système permettant de répliquer plusieurs fois l'image du SLM sur l'échantillon et qui permettra donc d'adapter la taille de l'élément à l'application.

Ce système de réplification utilise deux platines de translation motorisées et un programme LabView qui va automatiquement décaler l'échantillon après chaque exposition afin d'enregistrer un ensemble d'éléments contigus. Au-delà de permettre l'enregistrement d'EODs de tailles variables, cette réplification va également permettre au faisceau de lecture de traverser un plus grand nombre de répliques de l'EOD, ce qui se traduira par l'obtention d'une image plus nette et moins bruitée (cf. Figure 6).

Afin de permettre une réplification contiguë des différents motifs, nous avons donc caractérisé le déplacement des platines. Un carré blanc de 750×750 pixels associé à la partie la plus uniforme du faisceau d'exposition a été produit sur le modulateur spatial de lumière. Ce motif a ensuite été enregistré dans des échantillons de $\text{Ag}+\text{As}_2\text{S}_3$. Ces échantillons présentent l'avantage de ne nécessiter qu'une faible exposition mais surtout permettent d'obtenir un meilleur contraste au microscope et donc une mesure plus précise des contours. Nous avons donc enregistré plusieurs de ces motifs avec un décalage donné au niveau des platines et avons ajusté ce décalage jusqu'à n'obtenir qu'un très faible écart entre les motifs. Cependant, il est important de noter que même si les deux motifs ne sont pas parfaitement contigus, si cet écart ne dépasse pas quelques dizaines de micromètres, la lumière associée à cette zone se retrouvera dans l'ordre zéro mais ne contribuera pas à plus de 1% de celui-ci compte tenu de la très faible surface associée à cette zone. La Figure 91 illustre le procédés d'ajustement de ce décalage. A gauche, on peut voir les carrés décalés. A droite, on peut voir que les carrés sont contigus suivant une des directions mais pas selon l'autre. On peut voir également que le contraste de l'image au niveau des angles des carrés est différent, ce qui traduit une puissance du faisceau d'éclairage plus faible dans ces zones et nécessiterait donc une diminution de la taille de la zone d'éclairage pour éliminer cette effet.

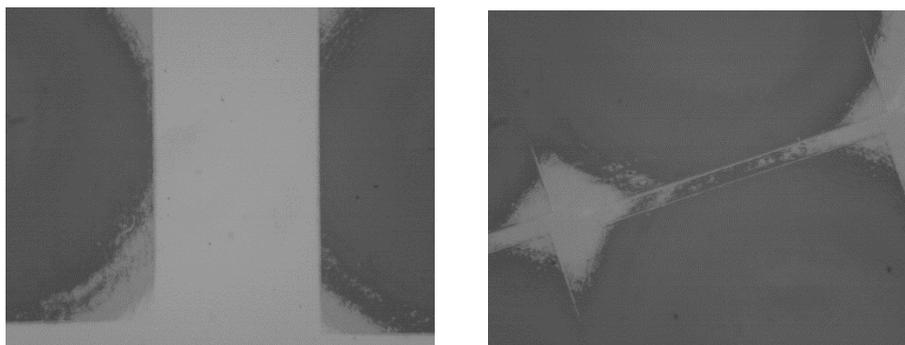


Figure 91 : Caractérisation par microscopie optique du décalage entre deux motifs de base d'un EOD. A gauche : avant toute optimisation du décalage, à droite : durant l'optimisation

5.6.1.3 Etude de l'influence de la taille du motif initial

Afin de fabriquer les EODs permettant de produire de meilleures images en champ lointain, nous avons investigué l'influence de la taille du motif initial. En effet, nous avons vu qu'augmenter le nombre de motifs de base traversés par le faisceau de lecture va permettre de diminuer le bruit dans l'image finale. En revanche, plus le motif de base sera petit, et plus il sera difficile d'obtenir une image de qualité donnée avec celui-ci, notamment du fait de la présence de pixels isolés. Il existe donc un compromis entre la taille du motif de base et le nombre de répliques possibles pour une taille totale d'EOD donnée. Plusieurs motifs de bases permettant d'obtenir des guitares ont donc été calculés puis inscrits dans des couches d' As_2S_3 . Ces motifs avaient différentes tailles initiales : $540 \text{ px} \times 540 \text{ px}$, $270 \text{ px} \times 270 \text{ px}$ et $30 \text{ px} \times 30 \text{ px}$). Les performances de ces éléments ont ensuite été caractérisées à 633 nm . Les résultats de l'intensité diffractée en champ lointain par ces différents motifs sont montrés dans la Figure 92.

Dans le cas du motif $540 \text{ px} \times 540 \text{ px}$, on peut voir que les guitares sont bien reproduites mais qu'il existe un bruit de fond assez important associé à la présence d'ordres supérieurs. Dans le cas du motif $30 \text{ px} \times 30 \text{ px}$, l'efficacité de diffraction dans les ordres -1 , $+1$ est en revanche très faible, et ce résultat est très certainement dû à la présence de nombreux pixels isolés très difficiles à enregistrés. Enfin, on peut voir que dans le cas du motif $270 \text{ px} \times 270 \text{ px}$, il semble exister un compromis qui permet d'obtenir un motif de base de petite taille ($700 \times 700 \mu\text{m}^2$) et permettant d'obtenir une forte intensité dans les ordres $+1$ et -1 . C'est donc cette taille de motif de base que nous avons conservé pour la suite de cette étude.

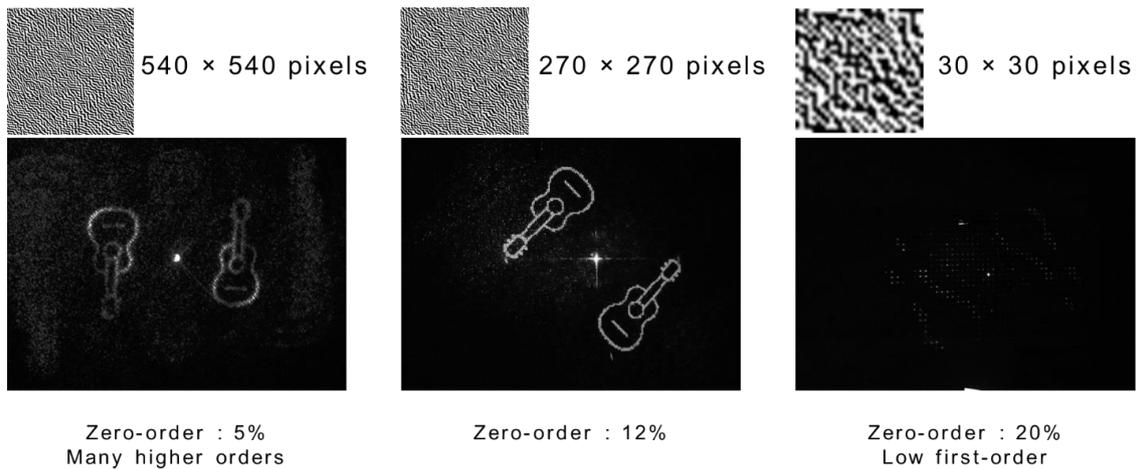


Figure 92 : Effet de la taille du motif de base sur l'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs de guitares enregistrés dans des bicouches $As_2S_3 + Ag$.

5.6.1.4 Exemples d'EODs optimisés

En utilisant les résultats précédents, nous avons inscrit par réplication de motifs $270 \text{ px} \times 270 \text{ px}$, un ensemble d'EODs en phase et en amplitude de tailles égales à $2 \times 2 \text{ mm}$ ont été enregistrés dans des couches d' As_2S_3 .

Nous nous sommes tout d'abord intéressés à l'enregistrement d'EODs en phase. Pour la fabrication de ces éléments, l'empilement utilisé est le même que celui utilisé dans la partie 5.4.2 (une couche d' As_2S_3 entourée de structures antireflets). Nous avons ensuite caractérisé les performances des éléments à 633 nm (Figure 93).

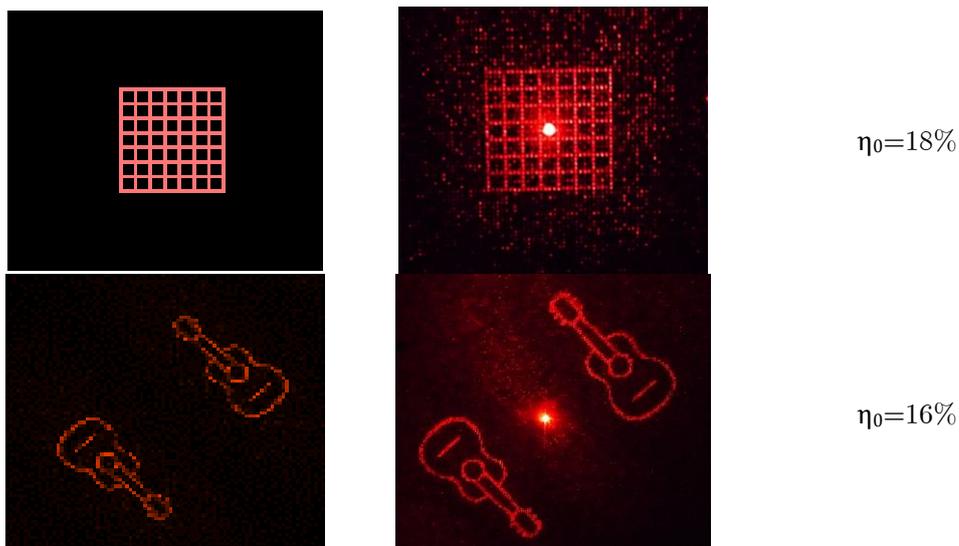


Figure 93 : Comparaison entre les profils théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite) d'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs enregistrés dans des couches d' As_2S_3 après optimisation, c'est-à-dire avec un motif de base de 270×270 pixels. Comparaison de l'efficacité de diffraction de l'ordre 0. En haut : grille – en bas : guitares.

On peut voir que dans les deux exemples de la Figure 93, les motifs reproduits par les EODs fabriqués sont de bien meilleure qualité que ceux présentés de la partie 5.4.2.2. En particulier, dans le cas de la grille, les lignes sont clairement dessinées, même s'il subsiste des ordres supérieurs. La guitare présente également de très nombreux détails présents dans le motif de base, confirmant que le motif de phase a bien été reproduit. Il y a toujours la présence d'un ordre zéro, dont l'origine reste à être investiguée. L'énergie dans l'ordre zéro est de l'ordre de 16-18% de l'énergie totale dans les deux cas.

Nous avons ensuite appliqué les mêmes recettes pour l'enregistrement d'EODs en amplitude dans des couches d' $\text{As}_2\text{S}_3 + \text{Ag}$ identiques à celles présentées dans la partie 5.5 puis caractérisé leurs performances à 633 nm (Figure 94).

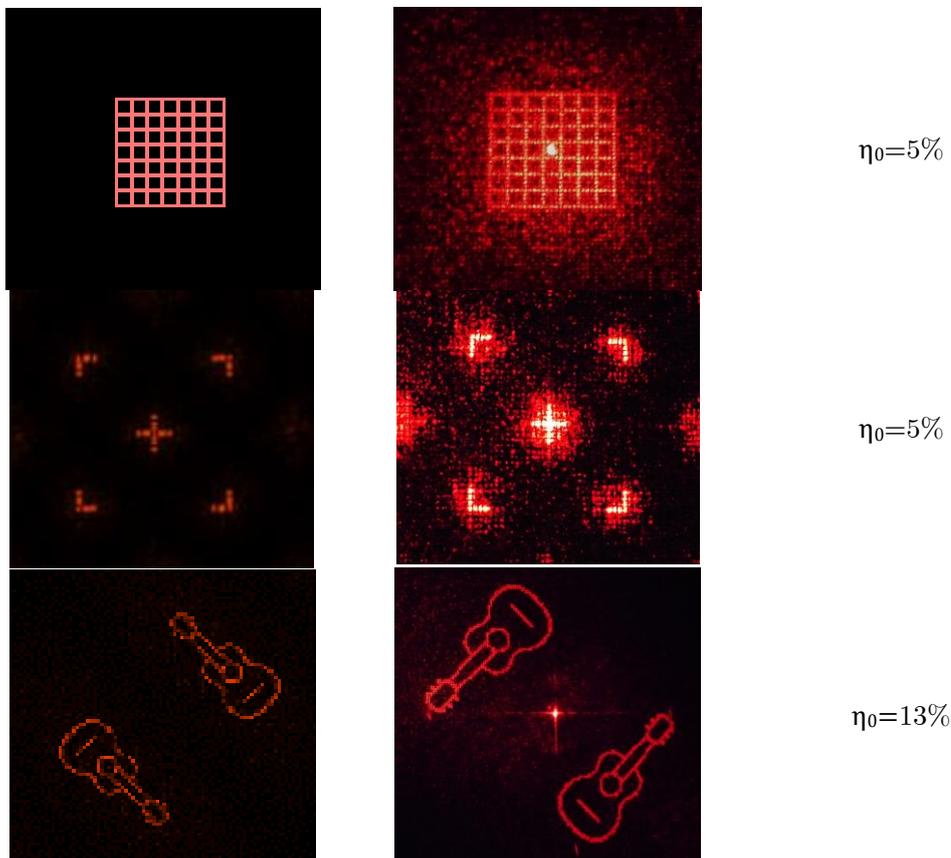


Figure 94 : Comparaison entre les profils théoriques (à gauche) et expérimentaux (à droite) d'intensité diffractée en champ lointain à 633 nm par les EODs enregistrés dans des bicouches $\text{As}_2\text{S}_3 + \text{Ag}$ après optimisation, c'est-à-dire avec un motif de base de 270×270 pixels. Comparaison de l'efficacité de diffraction de l'ordre 0. De haut en bas : grille – viseur - guitares.

Tout comme pour les EODs en phase décrits précédemment, les résultats obtenus après optimisation sont de bien meilleure qualité de ceux obtenus dans la section 5.5. La grille et le viseur présentent des motifs bien définis même s'il reste du bruit et des ordres supérieurs diffractés. La guitare présente un motif parfaitement défini où l'on peut retrouver, comme

sur le viseur, l'ensemble des points qui ont été utilisés lors de la définition du profil d'intensité à produire en champ lointain. Comme précédemment, nous pouvons cependant noter la présence d'un ordre zéro. L'efficacité de diffraction de l'ordre 0 est de l'ordre de 5% pour les motifs de grille et de viseur et de 13% pour la guitare.

Nous avons donc démontré que les différentes optimisations que nous avons développées nous ont permis d'obtenir des EODs en phase et en amplitude plus performants et à motifs variés, ce qui valide la méthode de fabrication. En revanche, on peut voir qu'il existe toujours un certain nombre de défauts qui nécessiteraient d'être corrigés. En particulier, les designs ont été réalisés en supposant un pixel de $8,5 \mu\text{m}$ et appliqués avec un pixel de $2,55 \mu\text{m}$. Il serait d'une part important de voir s'il est possible de diminuer encore la taille des pixels puis de re-designer des motifs de base optimisés pour cette taille de pixel. De plus, il serait important d'investiguer l'origine de la diffraction assez importante dans l'ordre zéro pour certains designs qui représente un frein pour l'utilisation de ces EODs dans des systèmes optiques.

.

Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse était de démontrer l'impact de nouveaux matériaux comme des verres de chalcogénures dans des empilements de couches minces optique pour la fabrication de composants optiques à performances optimisées. En particulier, ces matériaux possèdent des effets photoinduits qui permettent de localement changer les propriétés optiques de ces couches. Ces matériaux ouvrent la voie à la fabrication de composants optiques spatialement structurés en volume.

Pour répondre à cet objectif, nous avons étudié les propriétés de couches minces optiques à base d' As_2S_3 . Nous avons tout d'abord développé les paramètres de dépôt de ce matériau par évaporation par canons à électrons. Nous avons démontré que des couches de qualités optiques d'épaisseurs comprises entre 100 nm et 5 μm peuvent être obtenues et intégrées dans des empilements multicouches. Les couches fabriquées présentent une large gamme de transparence de 550 nm au moyen infrarouge. Nous avons ensuite étudié ses propriétés optiques (dispersion d'indice de réfraction et du coefficient d'extinction) ainsi que sa stabilité dans le temps. Nous avons montré que ces couches possèdent un indice élevé (2,48 à 633 nm) ainsi qu'une très bonne stabilité dans le temps sur une durée de plusieurs mois. Une des caractéristiques principales de ces couches est les variations des propriétés opto-géométriques qui peuvent être induites quand elles sont exposées à un rayonnement inclus dans le spectre d'absorption. En effet, nous avons montré que lorsqu'une couche d' As_2S_3 est exposée à un rayonnement d'une longueur d'onde inférieure à 550 nm, deux phases de modification des paramètres du matériau peuvent être observées. La première phase est obtenue pour des expositions à 470 nm avec des densités d'énergies inférieures à 110 J/cm² et génère une variation de l'indice de réfraction positive pouvant atteindre 0,1 à 633 nm. La seconde phase

est observée pour des expositions à des densités d'énergies supérieures à 110 J/cm^2 et une saturation apparaît aux alentours de $5,3 \text{ kJ/cm}^2$. Lors de cette phase, il se produit une nouvelle augmentation de l'indice de réfraction ainsi qu'une diminution de l'épaisseur physique de la couche. A saturation, la modification de l'indice de réfraction est de l'ordre de 0,17 à 633 nm tandis que l'épaisseur de la couche diminue d'une quantité de l'ordre de 8%. Une étude des phénomènes de photodissolution de fines couches d'argent dans des couches dans des couches d' As_2S_3 a également été menée. Nous avons alors montré que les variations d'indice de réfraction peuvent être utilisées pour le contrôle de la phase locale transmise par un empilement tandis que la photodissolution peut quant à elle être utilisée pour le contrôle de l'amplitude locale transmise par un empilement.

Après cette étude des effets photosensibles, nous nous sommes tout d'abord penchés sur l'intégration de couches minces optiques d' As_2S_3 dans des filtres optiques passe-bande de type Fabry-Perot. Dans ce type d'empilement multicouche, contenant des miroirs composés de couches alternées de matériaux haut et bas indices entourant une cavité, nous avons intégré des couches d' As_2S_3 dans la cavité. Nous avons alors montré que nous pouvions réaliser des filtres très étroits à 800 nm (largeur à mi-hauteur égale à 1% de la longueur d'onde de centrage). Ces filtres présentent une non uniformité de la réponse spectrale de l'ordre de 1% sur une surface de l'ordre de $70 \times 70 \text{ mm}^2$. Une telle non-uniformité ne permet pas d'envisager l'utilisation de ce filtre sur toute sa surface. Nous avons alors montré qu'il est possible de localement corriger, point par point et a posteriori, la réponse spectrale du filtre afin de le rendre plus uniforme. En effet, la longueur d'onde de centrage d'un filtre passe-bande de type Fabry-Perot est dépendante de l'épaisseur optique de la cavité. En modifiant l'indice de réfraction local de la cavité, il est alors possible de compenser les variations locales de l'épaisseur physique de cette cavité et obtenir une épaisseur optique uniforme sur la surface du filtre. Nous avons ainsi montré qu'il était possible d'obtenir, par cette méthode, une uniformité dix fois meilleure que celle d'origine passant de $\pm 0,5\%$ à $\pm 0,05\%$. Nous avons ensuite étudié comment étendre la méthode à des filtres Fabry-Perot multi-cavités. Nous avons montré que pour obtenir un tel filtre et conserver les mêmes caractéristiques de la bande passante tout au long de la modification il était nécessaire d'optimiser le design et de garantir qu'il soit antireflet à la longueur d'exposition. La fabrication d'un filtre Fabry-Perot à trois cavités avec un design optimisé ainsi que l'exposition locale de ce filtre à 532 nm a permis de démontrer que l'approche était transférable à un nombre quelconque de cavités. En effet nous avons pu mettre en évidence la possibilité de décalage local d'un filtre Fabry-Perot à trois cavités avec conservation des caractéristiques de la bande-passante (forme et valeur de la transmission maximale).

Nous nous sommes ensuite intéressés au développement de composants non pas spectraux mais pour le contrôle spatial de la lumière. Pour ce faire nous avons travaillé sur le

développement d'éléments optiques diffractifs (EODs) binaires. Un ensemble de motifs de base ont été créés. Ces motifs ont ensuite été inscrits à l'aide de différentes méthodes. Ces éléments ont d'abord été réalisés de manière conventionnelle par photolithographie dans des résines photosensibles. Ces mêmes éléments ont ensuite été réalisés en phase par inscription par variations d'indice photoinduites dans des couches d'As₂S₃ et en amplitude par mécanismes de photodissolution de l'argent dans des couches d'As₂S₃. Pour cet enregistrement, nous avons développé un banc d'inscription basé sur un modulateur spatial de lumière et un système d'imagerie. Nous avons montré qu'avec ce système, nous pouvons enregistrer des motifs de l'ordre de 2,5 μm et ainsi induire des profils de phases ou d'amplitude binaires dans des couches d'As₂S₃. Divers EODs permettant de générer un motif en champ lointain ont été réalisés avec cette méthode et nous avons montré que les performances des éléments obtenus par variation d'indice ou de transmission présentent des performances comparables à celles obtenues avec des éléments fabriqués par photolithographie, confirmant la validité de la méthode. Enfin, nous avons également montré qu'en optimisant la taille des motifs de base ou la taille des pixels, il était possible de tendre vers des éléments produisant des motifs en champ lointain très proches de ceux prédits théoriquement. Ces résultats ouvrent donc la porte au développement d'EODs plus complexes, et multi-niveaux.

Les résultats de cette thèse ont donc permis de démontrer que l'intégration de couches minces à base de verres de chalcogénure dans des empilements multicouches est compatible avec la fabrication de composants optiques à très bonnes performances. Cette thèse s'est intéressée essentiellement aux couches à base d'As₂S₃, mais des développements en parallèle de couches à base d'autres verres de chalcogénures ont également été réalisés. Ces couches présentent soit des propriétés de changement de phase différentes (thermiques par exemple) soit des propriétés non linéaires originales (forte absorption saturable). On voit donc que ces résultats ouvrent la voie au développement d'autres types de composants, tels que des modulateurs de lumière, des masques de super-résolution...

A partir de ces résultats, deux perspectives importantes apparaissent. La première concerne les éléments diffractifs optiques. Nous nous sommes restreints à des éléments simples, c'est-à-dire dédiés à une longueur d'onde sans se soucier de leur comportement en dehors de celle-ci. Cependant, l'intégration de couches dont la phase ou l'amplitude peut être contrôlée ouvre la porte au développement de composants à la fois spectraux et spatiaux. On peut donc imaginer deux directions distinctes à savoir :

1. Le développement d'EODs large bande, c'est-à-dire à déphasage constant égal à π sur un large domaine spectral. Les EODs classiques ayant un déphasage spectralement variable, cela peut être obtenu en utilisant les propriétés de dispersion de phase contrôlables des empilements multicouches.

2. Le développement d'EODs monochromatiques, c'est-à-dire ne produisant une mise en forme du faisceau que pour un faible domaine spectral. En utilisant des phénomènes de résonance présents dans des empilements multicouches, il devrait être possible de ne produire un déphasage (ou un variation d'amplitude) que pour une bande spectrale donnée.

Le deuxième développement concerne la taille des motifs inscrits. On voit que dans cette thèse nous nous sommes exclusivement intéressés à des motifs de tailles supérieures ou égales au micromètre. Or, une des grandes directions de recherche actuelle concerne les nanostructures (réseaux, métasurfaces ou métamatériaux, nano-antennes...). Deux approches peuvent être envisagées pour répondre à ce besoin :

1. La première concerne l'inscription directe de motifs de petite taille par laser pulsé. Ces activités ont été initiées au sein de l'institut Fresnel il y a 3 ans (thèse de Charles Moisset) et seront le cadre d'une thèse à venir (Richard Verrone – 2019-2022), et visent à développer des couches minces à base de matériaux à très fortes non-linéarités pour l'inscription directe par laser de motifs inférieurs à 100 nm dans des couches de divers matériaux.
2. La deuxième concerne l'inscription holographique de réseaux de Bragg dans ces couches et leur intégration dans des empilements multicouches pour la réalisation de structures résonantes. Cette approche est particulièrement intéressante pour le développement de filtres passe-bande très étroits pour le domaine infrarouge. Des premiers développements très préliminaires effectués dans le cadre de cette thèse et non reportés dans ce manuscrit montrent que cette approche est envisageable avec les couches développées. Cependant, l'obtention de composants finaux nécessite l'utilisation d'un système d'enregistrement en cours de développement. De plus, une étude des designs nécessaires pour l'obtention de composants optiques à hautes performances sera nécessaire.

Références

- [1] J. Hu *et al.*, « Resonant cavity-enhanced photosensitivity in As₂S₃ chalcogenide glass at 1550 nm telecommunication wavelength », *Optics letters*, vol. 35, n° 6, p. 874–876, 2010.
- [2] « Raman spectroscopy benefits from thin-film filters », *Laser Focus World*, 01-sept-2004. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.laserfocusworld.com/optics/article/16549713/raman-spectroscopy-benefits-from-thin-film-filters>. [Consulté le: 03-juill-2019].
- [3] P. Louda, « Applications of thin coatings in automotive industry », *Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering*, vol. 24, n° 1, p. 6, 2007.
- [4] T. W. Leung, R. W. Li, et C. Kee, « Blue-Light Filtering Spectacle Lenses: Optical and Clinical Performances », *PLoS One*, vol. 12, n° 1, janv. 2017.
- [5] S. V. C. III, « Optical Filter for Selectively Blocking Light », US20100149483A1, 17-juin-2010.
- [6] H. A. Macleod, *Thin-film optical filters*, 3rd ed. Bristol ; Philadelphia: Institute of Physics Pub, 2001.
- [7] A. V. Tikhonravov, M. K. Trubetskov, et G. W. DeBell, « Optical coating design approaches based on the needle optimization technique », *Appl. Opt., AO*, vol. 46, n° 5, p. 704-710, févr. 2007.
- [8] A. V. Tikhonravov et M. K. Trubetskov, « Modern design tools and a new paradigm in optical coating design », *Appl. Opt., AO*, vol. 51, n° 30, p. 7319-7332, oct. 2012.
- [9] M. Vignaux, F. Lemarchand, T. Begou, C. Grèzes-Besset, et J. Lumeau, « Ternary mappings: a tool for the determination of potential spectral paths for optical monitoring of optical interference filters », *Appl. Opt.*, vol. 57, n° 24, p. 7012, août 2018.

-
- [10] M. Vignaux, F. Lemarchand, C. Grezes-Besset, et J. Lumeau, « In situ optical monitoring of Fabry-Perot multilayer structures: analysis of current techniques and optimized procedures », *Opt. Express*, vol. 25, n° 15, p. 18040, juill. 2017.
- [11] M. Trubetskov, T. Amotchkina, et A. Tikhonravov, « Automated construction of monochromatic monitoring strategies », *Appl. Opt., AO*, vol. 54, n° 8, p. 1900-1909, mars 2015.
- [12] K. D. Hendrix, C. A. Hulse, G. J. Ockenfuss, et R. B. Sargent, « Demonstration of narrowband notch and multi-notch filters », in *Advances in Thin-Film Coatings for Optical Applications V*, 2008, vol. 7067, p. 706702.
- [13] A. Joërg et J. Lumeau, « Fabrication of binary volumetric diffractive optical elements in photosensitive chalcogenide AMTIR-1 layers », *Optics Letters*, vol. 40, n° 14, p. 3233, juill. 2015.
- [14] T. Begou *et al.*, « Complex optical interference filters with stress compensation for space applications », *CEAS Space J*, vol. 9, n° 4, p. 441-449, déc. 2017.
- [15] L. Abel-Tibérini, F. Lemarquais, et M. Lequime, « Masking mechanisms applied to thin-film coatings for the manufacturing of linear variable filters for two-dimensional array detectors », *Appl. Opt., AO*, vol. 47, n° 30, p. 5706-5714, oct. 2008.
- [16] T. Amotchkina, M. K. Trubetskov, Y. Pervak, L. Veisz, et V. Pervak, « Stress compensation with antireflection coatings for ultrafast laser applications: from theory to practice », *Opt. Express, OE*, vol. 22, n° 24, p. 30387-30393, déc. 2014.
- [17] T. Begou, F. Lemarchand, et J. Lumeau, « Advanced optical interference filters based on metal and dielectric layers », *Optics Express*, vol. 24, n° 18, p. 20925, sept. 2016.
- [18] M. Scherer, J. Pistner, et W. Lehnert, « UV- and VIS Filter Coatings by Plasma Assisted Reactive Magnetron Sputtering (PARMS) », in *Optical Interference Coatings (2010), paper MA7*, 2010, p. MA7.
- [19] L. Gao, F. Lemarchand, et M. Lequime, « Refractive index determination of SiO₂ layer in the UV/Vis/NIR range: spectrophotometric reverse engineering on single and bi-layer designs », *Journal of the European Optical Society: Rapid Publications*, vol. 8, janv. 2013.
- [20] C. Deumié, H. Giovannini, et C. Amra, « Angle-resolved ellipsometry of light scattering: discrimination of surface and bulk effects in substrates and optical coatings », *Appl. Opt.*, vol. 41, n° 16, p. 3362, juin 2002.
- [21] A. Joerg, « Couches minces photosensibles pour la réalisation d'éléments optiques diffractifs et de filtres optiques interférentiels spatialement structurés », 2015.
- [22] « B 270® i Ultra White Crown Glass: SCHOTT Advanced Optics | SCHOTT AG ». [En ligne]. Disponible sur: https://www.schott.com/advanced_optics/english/products/optical-materials/thin-glass/ultra-white-glass-b-270-i/index.html. [Consulté le: 21-juill-2019].

-
- [23] M. Lequime et C. Amra, *De l'Optique électromagnétique à l'Interférométrie – Concepts et Illustrations*. EDP Sciences, 2013.
- [24] *Ondes électromagnétiques en radioélectricité et en optique... - Roger Petit*. .
- [25] C. AMRA et C. GRÈZES-BESSET, « Couches minces optiques et filtrage interférentiel - Champs et multicouches, synthèse, résonances et modes... », *Ref: TIP053WEB - « Physique Chimie »*, 10-janv-2011. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/sciences-fondamentales-th8/optique-physique-42528210/couches-minces-optiques-et-filtrage-interferentiel-af3348/>. [Consulté le: 08-juill-2019].
- [26] L. E. Regalado, R. Machorro, et J. M. Siqueiros, « Attenuated-total-reflection technique for the determination of optical constants », *Appl. Opt., AO*, vol. 30, n° 22, p. 3176-3180, août 1991.
- [27] F. Abelès, « Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoïdales dans les milieux stratifiés - Application aux couches minces », *Ann. Phys.*, vol. 12, n° 5, p. 596-640, 1950.
- [28] S. A. Furman et A. V. Tikhonravov, *Basics of Optics of Multilayer Systems*. Atlantica Séguier Frontières, 1992.
- [29] R. Voelkel, « Micro-Optics for Illumination Light Shaping in Photolithography », *Laser Beam Shaping Applications*, 24-févr-2017. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.taylorfrancis.com/>. [Consulté le: 09-avr-2019].
- [30] A. Joerg, M. Vignaux, et J. Lumeau, « Versatile digital micromirror device-based method for the recording of multilevel optical diffractive elements in photosensitive chalcogenide layers (AMTIR-1) », *Optics Letters*, vol. 41, n° 15, p. 3415, août 2016.
- [31] B. K. Jennison, J. P. Allebach, et D. W. Sweeney, « Efficient design of direct-binary-search computer-generated holograms », *J. Opt. Soc. Am. A, JOSAA*, vol. 8, n° 4, p. 652-660, avr. 1991.
- [32] V. Kettunen, « Review of iterative Fourier-transform algorithms for beam shaping applications », *Optical Engineering*, vol. 43, n° 11, p. 2549, nov. 2004.
- [33] S.-T. Wu, S.-H. Huang, H.-M. P. Chen, et Y.-P. Huang, « 7-1: Computer Generated Hologram Accelerated by using Hybrid Iterative Fourier Transform Algorithm (HIFTA) on Phase Modulator LCOS », *SID Symposium Digest of Technical Papers*, vol. 49, n° 1, p. 60-63, 2018.
- [34] G.-N. Nguyen *et al.*, « Iterative scalar nonparaxial algorithm for the design of Fourier phase elements », *Opt. Lett., OL*, vol. 39, n° 19, p. 5551-5554, oct. 2014.
- [35] A. G. Kirk et T. J. Hall, « Design of binary computer generated holograms by simulated annealing: coding density and reconstruction error », *Optics Communications*, vol. 94, n° 6, p. 491-496, déc. 1992.
- [36] N. Yoshikawa et T. Yatagai, « Phase optimization of a kinoform by simulated annealing », *Appl. Opt., AO*, vol. 33, n° 5, p. 863-868, févr. 1994.

-
- [37] M. S. Kim et C. C. Guest, « Simulated annealing algorithm for binary phase only filters in pattern classification », *Appl. Opt., AO*, vol. 29, n° 8, p. 1203-1208, mars 1990.
- [38] M. Wen, « Holographic diffuser design using a modified genetic algorithm », *Optical Engineering*, vol. 44, n° 8, p. 085801, août 2005.
- [39] N. C. Evans et D. L. Shealy, « Design and optimization of an irradiance profile-shaping system with a genetic algorithm method », *Appl Opt*, vol. 37, n° 22, p. 5216-5221, août 1998.
- [40] F. Wyrowski, R. Hauck, et O. Bryngdahl, « Computer-generated holography: hologram repetition and phase manipulations », *J. Opt. Soc. Am. A, JOSAA*, vol. 4, n° 4, p. 694-698, avr. 1987.
- [41] L. B. Lesem, P. M. Hirsch, et J. A. Jordan Jr., « Scientific Applications: Computer Synthesis of Holograms for 3-D Display », *Commun. ACM*, vol. 11, n° 10, p. 661-674, oct. 1968.
- [42] K. Weiser, R. J. Gambino, et J. A. Reinhold, « Laser-beam writing on amorphous chalcogenide films: crystallization kinetics and analysis of amorphizing energy », *Applied Physics Letters*, vol. 22, n° 1, p. 48-49, janv. 1973.
- [43] K. Tanaka et K. Shimakawa, « Chalcogenide glasses in Japan: A review on photoinduced phenomena », *physica status solidi (b)*, vol. 246, n° 8, p. 1744-1757, 2009.
- [44] R. Todorov, J. Tasseva, et T. Babeva, « Thin chalcogenide films for photonic applications », in *Photonic Crystals-Innovative Systems, Lasers and Waveguides*, InTech, 2012.
- [45] T. Igo, Y. Noguchi, et H. Nagai, « Photoexpansion and "thermal contraction" of amorphous chalcogenide glasses », *Applied Physics Letters*, vol. 25, n° 4, p. 193-194, août 1974.
- [46] H. Hisakuni et K. Tanaka, « Giant photoexpansion in As_2S_3 glass », *Applied Physics Letters*, vol. 65, n° 23, p. 2925-2927, déc. 1994.
- [47] K. Tanaka, « Photo-induced dynamical changes in refractive index in amorphous As-S films », *Solid State Communications*, vol. 28, n° 7, p. 541-545, 1978.
- [48] Y. Matsuura, « 4 - Optical fibers for medical applications », in *Lasers for Medical Applications*, H. Jelínková, Éd. Woodhead Publishing, 2013, p. 110-124.
- [49] R. Ahmad et M. Rochette, « Photosensitivity at 1550 nm and Bragg grating inscription in As_2Se_3 microwires », p. 17.
- [50] F. Désévéday, « Fibres optiques micro-structurées à base de verres de chalcogénures pour applications dans le domaine des télécommunications et le moyen IR », thesis, Rennes 1, 2008.
- [51] A. L. Pelé *et al.*, « Wavelength conversion in Er^{3+} doped chalcogenide fibers for optical gas sensors », *Opt. Express, OE*, vol. 23, n° 4, p. 4163-4172, févr. 2015.

-
- [52] F. Starecki *et al.*, « Mid-IR optical sensor for CO₂ detection based on fluorescence absorbance of Dy³⁺:Ga₅Ge₂₀Sb₁₀S₆₅ fibers », *Sensors and Actuators B-chemical*, vol. 207, p. 518-525, 2015.
- [53] E. Bychkov, Yu. Tveryanovich, et Yu. Vlasov, « CHAPTER 3 - Ion Conductivity and Sensors », in *Semiconductors and Semimetals*, vol. 80, R. Fairman et B. Ushkov, Éd. Elsevier, 2004, p. 103-168.
- [54] K. Vu *et al.*, « Hybrid waveguide from As₂S₃ and Er-doped TeO₂ for lossless nonlinear optics », *Opt. Lett., OL*, vol. 38, n° 11, p. 1766-1768, juin 2013.
- [55] M. Iovu *et al.*, « Electrical and photoelectrical properties of glassy As/sub 2/Se/sub 3/ doped with Mn, Dy and Sm », in *1996 International Semiconductor Conference. 19th Edition. CAS'96 Proceedings*, 1996, vol. 1, p. 313-316 vol.1.
- [56] S. Fayek, L. Wahab, S. El-Sayed, et A. Ashour, « Effect of copper addition on electrical and optical properties of As₁₀Se₉₀ thin films according to chemical bond », *Vacuum*, vol. 49, n° 1, p. 59-62, janv. 1998.
- [57] L. G. Aio, A. M. Efimov, et V. F. Kokorina, « Refractive index of chalcogenide glasses over a wide range of compositions », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 27, n° 3, p. 299-307, mars 1978.
- [58] H. G. Dantanarayana *et al.*, « Refractive index dispersion of chalcogenide glasses for ultra-high numerical-aperture fiber for mid-infrared supercontinuum generation », *Opt. Mater. Express, OME*, vol. 4, n° 7, p. 1444-1455, juill. 2014.
- [59] W. S. Rodney, I. H. Malitson, et T. A. King, « Refractive index of arsenic trisulfide », *Josa*, vol. 48, n° 9, p. 633-636, 1958.
- [60] A. Zakery et S. R. Elliott, Éd., « An Introduction to Chalcogenide Glasses », in *Optical Nonlinearities in Chalcogenide Glasses and their Applications*, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2007, p. 1-28.
- [61] J. Sanghera et D. Gibson, « 5 - Optical properties of chalcogenide glasses and fibers », in *Chalcogenide Glasses*, J.-L. Adam et X. Zhang, Éd. Woodhead Publishing, 2014, p. 113-138.
- [62] T. Wagner, « Photo-and thermally-induced diffusion and dissolution of Ag in chalcogenide glasses thin films », *J. Optoelectron. Adv. Mater.*, vol. 4, n° 3, p. 717-727, 2002.
- [63] T. V. Galstyan, J.-F. Viens, A. Villeneuve, K. Richardson, et M. A. Duguay, « Photoinduced self-developing relief gratings in thin film chalcogenide As/sub 2/S/sub 3/glasses », *Journal of lightwave technology*, vol. 15, n° 8, p. 1343-1347, 1997.
- [64] J. B. Vaney *et al.*, « Thermal stability and thermoelectric properties of CuxAs_{40-x}Te_{60-y}Se_y semiconducting glasses », *Journal of Solid State Chemistry*, vol. 203, p. 212-217, juill. 2013.

-
- [65] A. V. Kolobov et J. Tominaga, « Photo-Induced Phenomena in Chalcogenide-Metal Structures », in *Chalcogenides*, vol. 164, Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2012, p. 133-145.
- [66] J. D. Musgraves *et al.*, « Chalcogenide Glasses and their Photosensitivity: Engineered Materials for Device Applications », in *Advanced Photonics & Renewable Energy (2010)*, paper BWD1, 2010, p. BWD1.
- [67] D. Goldschmidt et P. S. Rudman, « The kinetics of photodissolution of Ag in amorphous As₂S₃ films », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 22, n° 2, p. 229-243, nov. 1976.
- [68] V. A. Bordovskii, G. A. Bordovskii, et R. A. Castro, « Investigation of Photoelectric and Relaxation Characteristics of Photosensitive Layers Based on Chalcogenide Glasses », *Glass Physics and Chemistry*, vol. 26, n° 6, p. 566-568, nov. 2000.
- [69] N. Mehta, D. Sharma, et A. Kumar, « Effect of Ag additive on the photoelectric and dielectric properties of Se-Te alloys », *Physica B: Condensed Matter*, vol. 391, n° 1, p. 108-112, mars 2007.
- [70] K. Tanaka, « Giant photo-expansion in chalcogenide glass », p. 8.
- [71] K. Palanjyan, S. H. Messaddeq, Y. Messaddeq, R. Vallée, E. Knystautas, et T. Galstian, « Study of photoinduced birefringence vs As content in thin GeAsS films », *Opt. Mater. Express, OME*, vol. 3, n° 6, p. 671-683, juin 2013.
- [72] B. Spektor, « Recording on As₂S₃ glassy films by pulsed and continuous illumination—optical evaluation and comparison », *Optical Engineering*, vol. 42, n° 11, p. 3279, nov. 2003.
- [73] N. Hô, J. M. Laniel, R. Vallée, et A. Villeneuve, « Photosensitivity of As₂S₃ chalcogenide thin films at 1.5 μm », p. 3.
- [74] M. Olivier, P. Němec, G. Boudebs, R. Boidin, C. Focsa, et V. Nazabal, « Photosensitivity of pulsed laser deposited Ge-Sb-Se thin films », *Opt. Mater. Express*, vol. 5, n° 4, p. 781, avr. 2015.
- [75] M. W. Lee *et al.*, « Photosensitive and thermal nonlinear effects in chalcogenide photonic crystal cavities », *Opt Express*, vol. 18, n° 25, p. 26695-26703, déc. 2010.
- [76] X. Su, R. Wang, B. Luther-Davies, et L. Wang, « The dependence of photosensitivity on composition for thin films of GexAsySe1-x-y chalcogenide glasses », *Appl. Phys. A*, vol. 113, n° 3, p. 575-581, nov. 2013.
- [77] V. K. Tikhomirov, K. Asatryan, T. V. Galstian, R. Vallée, et A. B. Seddon, « Photoinduced volume changes related to photoinduced anisotropy in chalcogenide glasses », *Philosophical Magazine Letters*, vol. 83, n° 2, p. 117-124, janv. 2003.
- [78] K. Tanaka, « Photoexpansion in As₂S₃ glass », *Physical Review B*, vol. 57, n° 9, p. 5163, 1998.

-
- [79] M. I. Kozak, V. Yu. Loya, N. P. Golub, et M. Yu. Onis'ko, « Mechanism of photoinduced nanodimensional expansion/contraction in glassy thin layers of As₂S₃ », *Theoretical and Experimental Chemistry*, vol. 45, n° 1, p. 69-73, janv. 2009.
- [80] S. Ducharme, J. Hautala, et P. C. Taylor, « Photodarkening profiles and kinetics in chalcogenide glasses », *Phys. Rev. B*, vol. 41, n° 17, p. 12250-12259, juin 1990.
- [81] A. Ganjoo, K. Shimakawa, K. Kitano, et E. A. Davis, « Transient photodarkening in amorphous chalcogenides », *Journal of non-crystalline solids*, vol. 299, p. 917-923, 2002.
- [82] S. Zhang, Y. Chen, R. Wang, X. Shen, et S. Dai, « Observation of photobleaching in Ge-deficient Ge_{16.8}Se_{83.2} chalcogenide thin film with prolonged irradiation », *Scientific Reports*, vol. 7, n° 1, p. 14585, nov. 2017.
- [83] István Csarnovics *et al.*, « Dual Effects of Photo-Darkening and Photo-Bleaching in Ge-Se Films », *JMSE-A*, vol. 5, n° 2, févr. 2015.
- [84] H. Singh Nalwa, Éd., « Chapter 4 - Photoinduced anisotropy in chalcogenide glass », in *Handbook of Advanced Electronic and Photonic Materials and Devices*, Burlington: Academic Press, 2001, p. 119-139.
- [85] D. A. P. Bulla, R. P. Wang, A. Prasad, A. V. Rode, S. J. Madden, et B. Luther-Davies, « On the properties and stability of thermally evaporated Ge-As-Se thin films », *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 96, p. 615-625, août 2009.
- [86] C. Goncalves *et al.*, « New Candidate Multicomponent Chalcogenide Glasses for Supercontinuum Generation », *Applied Sciences*, vol. 8, n° 11, p. 2082, nov. 2018.
- [87] A. R. Hilton, J. Hayes, et M. D. Rehtin, « Chalcogenide Glasses for High Energy Laser Application », p. 85.
- [88] K. Palanjyan, Y. Ledemi, Y. Messaddeq, R. Vallée, et T. Galstian, « High efficiency and stability gratings recorded in GeAsS thin films », *Opt. Mater. Express*, vol. 6, n° 5, p. 1604, mai 2016.
- [89] S. R. Ovshinsky, « Reversible Electrical Switching Phenomena in Disordered Structures », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 21, n° 20, p. 1450-1453, nov. 1968.
- [90] M. S. Kim et H. G. Kim, « Preparation and observation of an artifact-free Ge₂Sb₂Te₅ TEM specimen by the small angle cleavage technique », *Materials Characterization*, vol. 56, n° 3, p. 245-249, avr. 2006.
- [91] H.-P. Wong *et al.*, « Phase Change Memory », *Proceedings of the IEEE*, vol. 98, n° 12, p. 2201-2227, déc. 2010.
- [92] B. J. Eggleton, B. Luther-Davies, et K. Richardson, « Chalcogenide photonics », *Nature Photon*, vol. 5, n° 3, p. 141-148, mars 2011.
- [93] A. Faraon *et al.*, « Local tuning of photonic crystal cavities using chalcogenide glasses », *Applied Physics Letters*, vol. 92, n° 4, p. 043123, 2008.

-
- [94] J.- Viens *et al.*, « Fabrication and characterization of integrated optical waveguides in sulfide chalcogenide glasses », *Journal of Lightwave Technology*, vol. 17, n° 7, p. 1184-1191, juill. 1999.
- [95] C. Meneghini et A. Villeneuve, « As₂S₃ photosensitivity by two-photon absorption: holographic gratings and self-written channel waveguides », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 15, n° 12, p. 2946, déc. 1998.
- [96] M. W. Lee *et al.*, « Photowritten high-Q cavities in two-dimensional chalcogenide glass photonic crystals », *Opt. Lett., OL*, vol. 34, n° 23, p. 3671-3673, déc. 2009.
- [97] K. Richardson, D. Krol, et K. Hirao, « Glasses for Photonic Applications », *International Journal of Applied Glass Science*, vol. 1, n° 1, p. 74-86, 2010.
- [98] A. Ganjoo *et al.*, « Planar chalcogenide glass waveguides for IR evanescent wave sensors », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 352, n° 6, p. 584-588, mai 2006.
- [99] A. Pope *et al.*, « Chalcogenide waveguide structures as substrates and guiding layers for evanescent wave Raman spectroscopy of bacteriorhodopsin », *Vibrational Spectroscopy*, vol. 42, n° 2, p. 249-253, nov. 2006.
- [100] Y. Vlasov, A. Legin, et A. Rudnitskaya, « Cross-sensitivity evaluation of chemical sensors for electronic tongue: determination of heavy metal ions », *Sensors and Actuators B: Chemical*, vol. 44, n° 1, p. 532-537, oct. 1997.
- [101] S.-Y. Pung, K.-L. Choy, X. Hou, et C. Shan, « Preferential growth of ZnO thin films by the atomic layer deposition technique », *Nanotechnology*, vol. 19, n° 43, p. 435609, sept. 2008.
- [102] P. O. Oviroh, R. Akbarzadeh, D. Pan, R. A. M. Coetzee, et T.-C. Jen, « New development of atomic layer deposition: processes, methods and applications », *Science and Technology of Advanced Materials*, vol. 20, n° 1, p. 465, 2019.
- [103] A. Museum, *Zones of Experience: The Art of Larry Bell*, First Edition edition. Albuquerque, New Mexico: The Albuquerque Museum, 1997.
- [104] M. D. Tyona, « A comprehensive study of spin coating as a thin film deposition technique and spin coating equipment », *Advances in materials Research*, vol. 2, n° 4, p. 181-193, déc. 2013.
- [105] B. Maleyre, O. Briot, et S. Ruffenach, « MOVPE growth of InN films and quantum dots », *Journal of Crystal Growth*, vol. 269, n° 1, p. 15-21, août 2004.
- [106] A. Marty et S. Andrieu, « Croissance et structure des couches minces », *J. Phys. IV France*, vol. 06, n° C7, p. C7-3-C7-11, nov. 1996.
- [107] R. Kern, « Croissance cristalline et adsorption », *Bulletin de Minéralogie*, vol. 91, n° 3, p. 247-266, 1968.
- [108] T. Nakada et M. Mizutani, « 18% Efficiency Cd-Free Cu(In, Ga)Se₂ Thin-Film Solar Cells Fabricated Using Chemical Bath Deposition (CBD)-ZnS Buffer Layers », *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 41, n° 2B, p. L165, févr. 2002.

-
- [109] S. Larouche, A. Amassian, B. Baloukas, et L. Martinu, « Turning-point monitoring is not simply optical thickness compensation », in *Optical Interference Coatings (2004)*, paper TuE8, 2004, p. TuE8.
- [110] R. R. Willey, « Optical thickness monitoring sensitivity improvement using graphical methods », *Appl. Opt.*, vol. 26, n° 4, p. 729, févr. 1987.
- [111] A. Piegari et F. Flory, *Optical Thin Films and Coatings: From Materials to Applications*. Elsevier, 2013.
- [112] I. Elhechmi, « Instrumentation optique pour la mesure des périkyématiques de la couronne dentaire ».
- [113] R. D. Allen, G. B. David, et G. Nomarski, « The zeiss-Nomarski differential interference equipment for transmitted-light microscopy. », *Z Wiss Mikrosk.*, vol. 69, n° 4, p. 193-221, nov. 1969.
- [114] M. Pluta, « Nomarski's DIC microscopy: a review », in *Phase Contrast and Differential Interference Contrast Imaging Techniques and Applications*, 1994, vol. 1846, p. 10-25.
- [115] V. Centonze Frohlich, « Phase contrast and differential interference contrast (DIC) microscopy », *J Vis Exp*, n° 17, août 2008.
- [116] « Microscope à contraste interférentiel — Wikipédia ». [En ligne]. Disponible sur: https://fr.wikipedia.org/wiki/Microscope_%C3%A0_contraste_interf%C3%A9rentiel. [Consulté le: 19-juill-2019].
- [117] A. V. Tikhonravov *et al.*, « Optical characterization and reverse engineering based on multiangle spectroscopy », *Applied Optics*, vol. 51, n° 2, p. 245, janv. 2012.
- [118] « OptiLayer - Thin Film Software ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.optilayer.com/>. [Consulté le: 19-juill-2019].
- [119] « FilmStar DESIGN ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.ftgsoftware.com/design.htm>. [Consulté le: 19-juill-2019].
- [120] G. E. Jellison et F. A. Modine, « Parameterization of the optical functions of amorphous materials in the interband region », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 69, n° 3, p. 371-373, juill. 1996.
- [121] Sellmeier, « Zur Erklärung der abnormen Farbenfolge im Spectrum einiger Substanzen », *Annalen der Physik*, vol. 219, n° 6, p. 272-282, 1871.
- [122] « Amorphous Materials - Manufacturer of Infrared Transmitting Glasses ». [En ligne]. Disponible sur: <http://www.amorphousmaterials.com/>. [Consulté le: 22-juill-2019].
- [123] S. G.-C. Carrillo *et al.*, « Design of practicable phase-change metadevices for near-infrared absorber and modulator applications », *Opt. Express, OE*, vol. 24, n° 12, p. 13563-13573, juin 2016.
- [124] K. Shportko, S. Kremers, M. Woda, D. Lencer, J. Robertson, et M. Wuttig, « Resonant bonding in crystalline phase-change materials », *Nature Materials*, vol. 7, n° 8, p. 653-658, août 2008.

-
- [125] S. Liu, J. Wei, et F. Gan, « Nonlinear absorption of Sb-based phase change materials due to the weakening of the resonant bond », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, n° 11, p. 111903, mars 2012.
- [126] M. Kuwahara *et al.*, « Approach for measuring complex refractive index of molten Sb₂Te₃ by spectroscopic ellipsometry », *Appl. Phys. Lett.*, vol. 100, n° 10, p. 101910, mars 2012.
- [127] J. Wei *et al.*, « Nano-optical information storage induced by the nonlinear saturable absorption effect », *Nanoscale*, vol. 3, n° 8, p. 3233-3237, août 2011.
- [128] C. Moisset *et al.*, « Saturable absorption optimization of silica protected thin Sb₂Te₃ layers towards super-resolution applications », *Optical Materials*, vol. 86, p. 7-11, déc. 2018.
- [129] H. Hisakuni et K. Tanaka, « Laser-induced persistent self-focusing in As₂S₃ glass », *Solid state communications*, vol. 90, n° 8, p. 483-486, 1994.
- [130] K. Tanaka, N. Toyosawa, et H. Hisakuni, « Photoinduced Bragg gratings in As₂S₃ optical fibers », *Optics letters*, vol. 20, n° 19, p. 1976-1978, 1995.
- [131] S. Ramachandran, S. G. Bishop, J. P. Guo, et D. J. Brady, « Fabrication of holographic gratings in As₂S₃ glass by photoexpansion and photodarkening », *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 8, n° 8, p. 1041-1043, août 1996.
- [132] M. Kasai, H. Nakatsui, et Y. Hajimoto, « Photodepression in As-S thin films », *Journal of Applied Physics*, vol. 45, n° 7, p. 3209-3210, juill. 1974.
- [133] K. Tanaka et Y. Ohtsuka, « Measurements of photoinduced transformations in amorphous As₂S₃ films by optical waveguiding », *Journal of Applied Physics*, vol. 49, n° 12, p. 6132-6135, déc. 1978.
- [134] Beer, « Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten », *Annalen der Physik*, vol. 162, n° 5, p. 78-88, 1852.
- [135] S. J. Madden *et al.*, « Long, low loss etched As₂S₃ chalcogenide waveguides for all-optical signal regeneration », *Opt. Express, OE*, vol. 15, n° 22, p. 14414-14421, oct. 2007.
- [136] L. Zehnder et L. Mach, « The Interferometers of Zehnder and Mach », p. 18.
- [137] O. M. Efimov, L. B. Glebov, et H. P. Andre, « Measurement of the induced refractive index in a photothermorefractive glass by a liquid-cell shearing interferometer », *Appl. Opt., AO*, vol. 41, n° 10, p. 1864-1871, avr. 2002.
- [138] A. Bourgade et J. Lumeau, « Large aperture, highly uniform narrow bandpass Fabry-Perot filter using photosensitive As₂S₃ thin films », *Opt. Lett., OL*, vol. 44, n° 2, p. 351-354, janv. 2019.
- [139] I. Shimizu, H. Sakuma, H. Kokado, et E. Inoue, « The Photo-doping of Metals into Solids for New-type Imaging Systems », *BCSJ*, vol. 44, n° 4, p. 1173-1173, avr. 1971.
- [140] M. A. Popescu, Éd., « Modifications Induced in Non-Crystalline Chalcogenides », in *Non-Crystalline Chalcogenides*, Dordrecht: Springer Netherlands, 2002, p. 209-292.

-
- [141] P. Khan *et al.*, « Kinetics of photo-dissolution within Ag/As₂S₃ heterostructure », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 500, p. 468-474, nov. 2018.
- [142] M. Frumar et T. Wagner, « Ag doped chalcogenide glasses and their applications », *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 7, n° 2, p. 117-126, avr. 2003.
- [143] S. R. Elliott, « A unified mechanism for metal photodissolution in amorphous chalcogenide materials », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 130, n° 1, p. 85-97, juin 1991.
- [144] F. Sava, M. Popescu, A. Lőrinczi, et A. Velea, « Possible mechanism of Ag photodiffusion in a-As₂S₃ thin films », *physica status solidi (b)*, vol. 250, n° 5, p. 999-1003, 2013.
- [145] R. El Ghrandi, J. Calas, G. Galibert, et M. Averous, « Silver photodissolution in amorphous chalcogenide thin films », *Thin Solid Films*, vol. 218, n° 1-2, p. 259-273, 1992.
- [146] D. Tsiulyanu et I. Stratan, « On the photodissolution kinetics of silver in glassy As₂S₃ », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 356, n° 3, p. 147-152, févr. 2010.
- [147] P. J. S. Ewen, « Applications of the Photodissolution Effect in Chalcogenide Glasses », in *Photo-Induced Metastability in Amorphous Semiconductors*, John Wiley & Sons, Ltd, 2007, p. 365-382.
- [148] M. Lequime, R. Parmentier, F. Lemarchand, et C. Amra, « Toward tunable thin-film filters for wavelength division multiplexing applications », *Applied optics*, vol. 41, n° 16, p. 3277-3284, 2002.
- [149] M. Lequime et J. Lumeau, « Laser trimming of thin-film filters », in *Advances in Optical Thin Films II*, 2005, vol. 5963, p. 596308.
- [150] W. Shen, M. Cathelinaud, M. Lequime, V. Nazabal, et X. Liu, « Photosensitive post tuning of chalcogenide Te₂₀As₃₀Se₅₀ narrow bandpass filters », *Optics Communications*, vol. 281, n° 14, p. 3726-3731, juill. 2008.
- [151] W. D. Shen, M. Cathelinaud, M. Lequime, F. Charpentier, et V. Nazabal, « Light trimming of a narrow bandpass filter based on a photosensitive chalcogenide spacer », *Opt. Express, OE*, vol. 16, n° 1, p. 373-383, janv. 2008.
- [152] « VirtualLab Fusion: Optical Design Software from LightTrans ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.lighttrans.com/>. [Consulté le: 21-juill-2019].
- [153] U. Levy, D. Mendlovic, et E. Marom, « Efficiency analysis of diffractive lenses », *Journal of the Optical Society of America A*, vol. 18, n° 1, p. 86, janv. 2001.
- [154] G. N. Nguyen, « Modeling, design and fabrication of diffractive optical elements based on nanostructures operating beyond the scalar paraxial domain », p. 175.
- [155] M. M. Kessels, M. E. Bouz, R. Pagan, et K. J. Heggarty, « Versatile stepper based maskless microlithography using a liquid crystal display for direct write of binary and multilevel microstructures », *JM3*, vol. 6, n° 3, p. 033002, juill. 2007.

-
- [156] M. V. Kessels, C. Nassour, P. Grosso, et K. Heggarty, « Direct write of optical diffractive elements and planar waveguides with a digital micromirror device based UV photoplotter », *Optics Communications*, vol. 283, p. 3089-3094, août 2010.
- [157] « MicroChem: Innovative Chemical Solutions for MEMS and Microelectronics ». [En ligne]. Disponible sur: <http://microchem.com/products/>. [Consulté le: 21-juill-2019].
- [158] « MF 319 Developer Distributor & Supplier - Seidler ». [En ligne]. Disponible sur: <https://www.seidlerchem.com/mf-319-developer.htm>. [Consulté le: 21-juill-2019].
- [159] A. W. Lohmann et D. P. Paris, « Binary Fraunhofer Holograms, Generated by Computer », *Appl. Opt., AO*, vol. 6, n° 10, p. 1739-1748, oct. 1967.
- [160] F. Cardarelli, Éd., « Less Common Nonferrous Metals », in *Materials Handbook: A Concise Desktop Reference*, London: Springer London, 2008, p. 213-454.
- [161] L. Gao, F. Lemarchand, et M. Lequime, « Exploitation of multiple incidences spectrometric measurements for thin film reverse engineering », *Optics Express*, vol. 20, n° 14, p. 15734, juill. 2012.
- [162] R. Leitel, O. Stenzel, S. Wilbrandt, D. Gäbler, V. Janicki, et N. Kaiser, « Optical and non-optical characterization of Nb₂O₅-SiO₂ compositional graded-index layers and rugate structures », *Thin Solid Films*, vol. 497, n° 1-2, p. 135-141, févr. 2006.
- [163] A. Masuno, H. Inoue, K. Yoshimoto, et Y. Watanabe, « Thermal and optical properties of La₂O₃-Nb₂O₅ high refractive index glasses », *Opt. Mater. Express*, vol. 4, n° 4, p. 710, avr. 2014.
- [164] M. Debenham, « Refractive indices of zinc sulfide in the 0.405–13- μ m wavelength range », *Appl. Opt., AO*, vol. 23, n° 14, p. 2238-2239, juill. 1984.
- [165] M. Querry, « Optical Constants of Minerals and Other Materials from the Millimeter to the Ultraviolet », CHEMICAL RESEARCH DEVELOPMENT AND ENGINEERING CENTER ABERDEEN PROVING GROUNDMD, CRDEC-CR-88009, nov. 1987.
- [166] L. V. R. Marcos et J. I. Larruquert, « Analytic optical-constant model derived from Tauc-Lorentz and Urbach tail », *Opt. Express, OE*, vol. 24, n° 25, p. 28561-28572, déc. 2016.
- [167] M. Gaillet, « Tauc-Lorentz Dispersion Formula », p. 3.
- [168] I. H. Malitson, « Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica*,† », *J. Opt. Soc. Am., JOS A*, vol. 55, n° 10, p. 1205-1209, oct. 1965.
- [169] D. F. Bezuidenhout, K. D. Clarke, et R. Pretorius, « The optical properties of YF₃ films », *Thin Solid Films*, vol. 155, n° 1, p. 17-30, déc. 1987.

Annexe :

Constantes optiques des matériaux utilisés pour les empilements multicouches

Afin de pouvoir réaliser des dépôts multicouches de matériaux, nous avons utilisé différents types de matériaux bas et hauts indices. Ces matériaux vont permettre, comme expliqué dans la section 1.1.1, de créer des structures optiques multicouches interférentielles pour le contrôle des propriétés spectrales de la lumière.

Pour déterminer les dispersions d'indices dans le cas d'un matériau à indice haut nous avons déposé une monocouche du matériau et étudié avec la méthode décrite dans le Chapitre 2, la courbe de dépendance spectrale de la transmission. Pour un matériau bas indice, compte tenu du faible contraste d'indice entre le substrat et la couche nous avons déposé un bicouche constitué d'un matériau haut indice (afin de produire une différence d'indice importante entre le substrat et la couche pour laquelle on veut étudier l'indice) et d'une couche du matériau bas indice étudié.

Nous avons étudié des matériaux standard oxydes tels que la silice (SiO_2) et le pentoxyde de niobium (Nb_2O_5) mais aussi des alternatives à ces matériaux pouvant être déposées facilement sans assistance comme le fluorure d'yttrium (YF_3) ou le sulfure de zinc (ZnS). Toutes les valeurs des coefficients trouvées par notre méthode (indices de réfraction et coefficients d'extinction) sont regroupés dans le Tableau 7 et Tableau 8.

	$A1$	$B1$	$A2$	$B2$	$A3$	$B3$
As_2S_3	409,06268	0,02009	3,06404	0,307965	410,47641	0,01480
$GeAsSe$	967,89413	0,04456	0,93526	0,43835	963,46596	0,04134
Nb_2O_5	1,30494	0,06184	1,30444	0,06184	1,16433	0,28550
ZnS	2,22	-0,5648	-0,2727			
SiO_2	1,48137	0,00307	0,00002			
YF_3	1,487	-0,3477	-0,2372			

Tableau 7 : Coefficients utilisés pour le calcul de la dépendance spectrale de l'indice de réfraction.

	C	D	E	F
As_2S_3	$2,74281 \times 10^{18}$	0,0668327	6629,9528	0
$GeAsSe$	$2,42495 \times 10^{12}$	0,0362695	5913,5448	0.0008069
Nb_2O_5	416,8577	-0,05712	-3395,20930	0
ZnS	$5,5623 \times 10^7$	0,05987	0	0
SiO_2	0,03793	-0,01860	-0,00058	-0,00551
YF_3	0,08681	0,019	0	0

Tableau 8 : Coefficients utilisés pour le calcul de la dépendance spectrale du coefficient d'extinction

5.1 Couches de matériaux haut indice

5.1.1 Couches de Nb_2O_5

Le Nb_2O_5 est un matériau oxyde communément utilisé dans de nombreux domaines de l'industrie [160]. En effet c'est un excellent diélectrique et isolant qui est utilisé comme couche de protection pour la fabrication d'anodes industrielles. Il aussi très souvent utilisé dans les verres ou filtres pour le spatial et l'astrophysique.

Il est considéré comme un matériau haut indice car son indice est de 2,3347 à 600 nm [161]. Dans notre cas nous avons déposé plusieurs couches de Nb_2O_5 et ensuite calculé, grâce au programme de rétro-ingénierie présenté dans la section 2.4.1, l'épaisseur estimée ainsi que les autres constantes optiques.

Les équations utilisées pour trouver les dispersions d'indice sont les mêmes que celles utilisées dans le cas de l' As_2S_3 (Sellmeier pour l'indice de réfraction et une exponentielle pour le coefficient d'extinction).

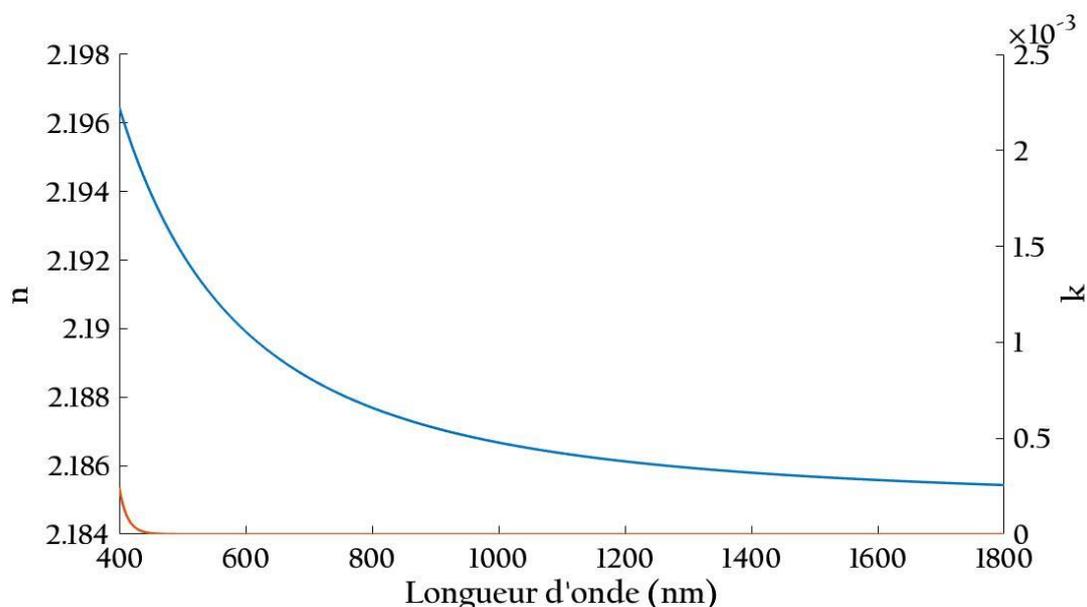


Figure 95 : Dépendance spectrale de la partie réelle n (en bleu) et la partie imaginaire k (en rouge) de l'indice N pour une couche de Nb_2O_5 déposée avec assistance plasma

Les paramètres de l'équation de Sellmeier et du coefficient d'extinction déterminés pour ces couches sont résumés dans le Tableau 7 et le Tableau 8.

On voit que les indices déterminés sont légèrement différents de ceux obtenus par d'autres groupes ou avec d'autres techniques de dépôt [162], [163]. Ce résultat n'est pas surprenant car ces indices sont très dépendants des techniques et paramètres de dépôts utilisés. Néanmoins, les couches sont homogènes et uniformes et présentent une très grande transparence au-delà de 420 nm ainsi qu'une très grande compacité et adhésion.

5.1.2 Couches de ZnS

Nous avons aussi utilisé un autre matériau haut indice qui peut servir d'alternative au Nb_2O_5 : le sulfure de zinc (ZnS). C'est un matériau qui possède une très large gamme spectrale de transparence (400-15000 nm) avec un indice de l'ordre de 2,36 à 600 nm [164] [165]. Ce matériau est une alternative intéressante car il peut être déposé sans assistance plasma.

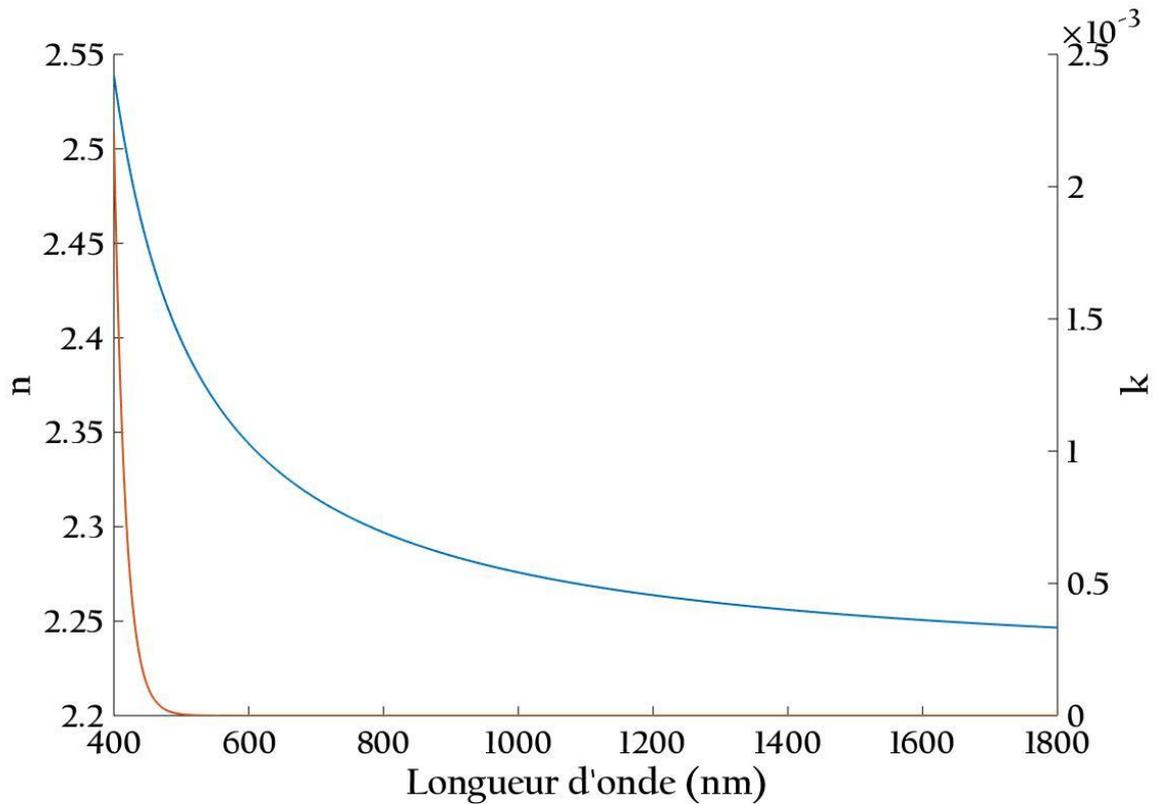


Figure 96 : Dépendance spectrale de la partie réelle n (en bleu) et la maginaire k (en rouge) de l'indice N pour une couche de ZnS déposée sans assistance

La dispersion spectrale de n et k sont dans ce cas calculé à partir des équations décrites par la suite.

Pour n on utilise une équation de type Tauc-Lorentz avec une modification de la queue d'Urbach [166], [167] :

$$n(\lambda) = \frac{A_1 * \lambda + B_1}{\lambda + B_2} \quad 0.1$$

Pour k on se base sur l'expression d'une exponentielle décroissante (cf. équation 2.6).

Les paramètres de l'indice de réfraction et du coefficient d'extinction déterminés pour ces couches sont résumés dans le Tableau 7 et le Tableau 8.

On peut voir, dans la Figure 96 que l'indice est proche de celui généralement reporté dans la littérature. De plus il est plus élevé que celui du Nb_2O_5 . En revanche, c'est un matériau qui possède de moins bonne propriétés mécaniques mais une meilleure compatibilité avec les matériaux chalcogénures.

5.2 Couches de matériaux bas indice

5.2.1 Couches de SiO₂

Un des matériaux bas indice que nous avons déposé est le dioxyde de silicium ou silice. C'est un des matériaux bas indice les plus utilisés en couches minces. Il est considéré comme un matériau bas indice car son indice est de l'ordre de 1,4580 à 600 nm [168]. Au vu de la grande variabilité de l'indice en fonction de la technique de dépôt ainsi que des vitesses de dépôt, nous avons recalculé les dépendances spectrales des dispersions d'indice complexe.

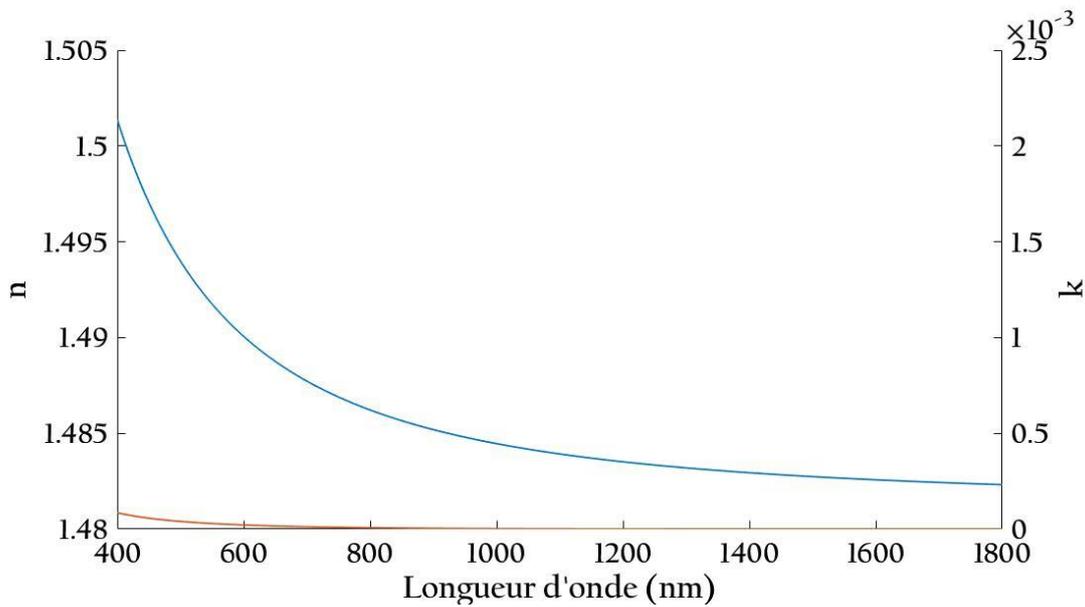


Figure 97 : Dépendance spectrale de la partie réelle n (en bleu) et la maginaire k (en rouge) de l'indice N pour une couche de SiO₂ déposée avec assistance plasma

Les dispersions spectrales de n et k sont, dans ce cas, calculées à partir des équations décrites par la suite.

Pour n on utilise une équation de type Cauchy :

$$n(\lambda) = A_1 + \frac{B_1}{\lambda^2} + \frac{B_2}{\lambda^4} \quad 0.2$$

Pour k on se base sur une expression du type exponentielle décroissante (cf. équation 2.6).

Les paramètres déterminés pour ces couches sont résumés dans le Tableau 7 et le Tableau 8.

5.2.2 Couches d'YF₃

Le fluorure d'yttrium (YF₃) est un matériau considéré comme bas indice. En effet il a un indice de l'ordre de 1,53 à 600 nm [169]. C'est un matériau qui peut être une alternative au SiO₂ surtout dans les applications entre le proche UV et l'infrarouge. De plus, sa composition

le rend a priori plus compatible avec le dépôt de couches de chalcogénures du fait de leurs compositions plus proches.

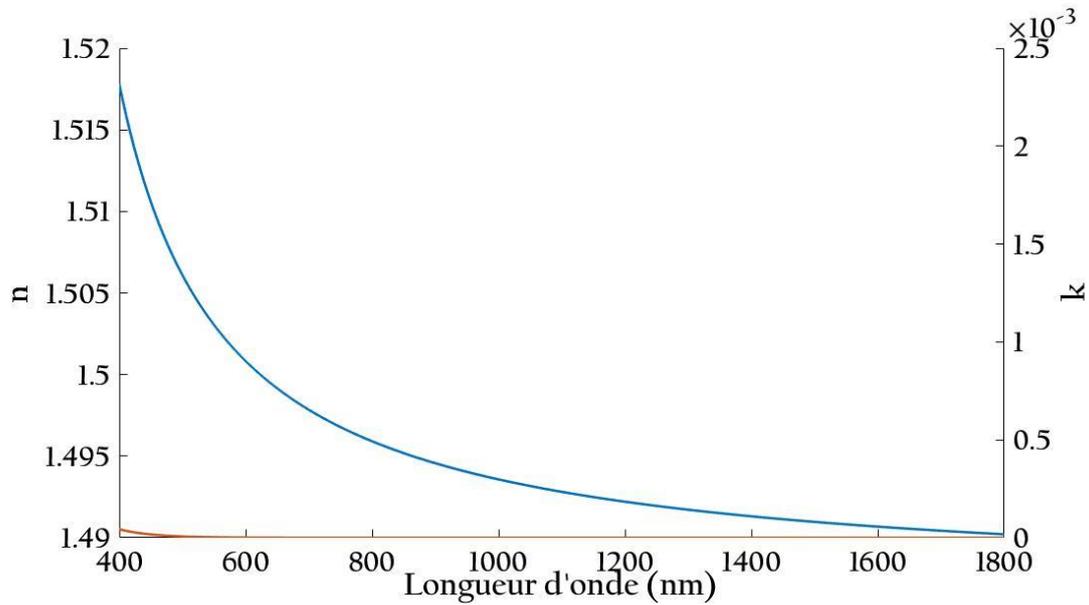


Figure 98 : Dépendance spectrale de la partie réelle n (en bleu) et la maginaire k (en rouge) de l'indice N pour une couche de YF_3 déposée sans assistance

Les paramètres de l'indice de réfraction et du coefficient d'extinction ont été calculé à partir des équations données en 0.1 et le coefficient d'extinction suit l'expression d'une exponentielle décroissante (cf. équation 2.6).

Ces paramètres déterminés pour ces couches sont résumés dans le Tableau 7 et le Tableau 8. On voit que l'on a un indice de l'ordre de 1,491 à 600 nm.