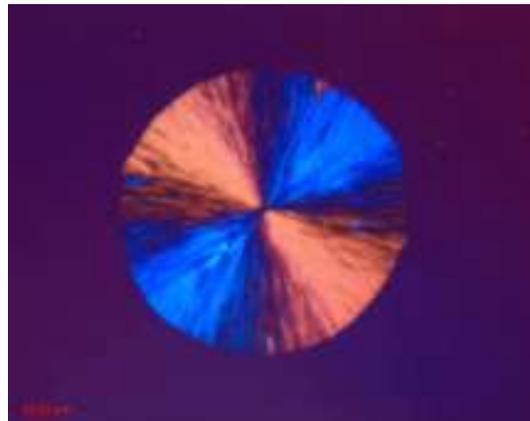




IUP Génie des Matériaux  
Université de La Rochelle  
17000 La Rochelle

VRAIN Alexandre  
18 rue des Tilleuls  
45110 Châteauneuf-sur-Loire

# Etude de guides d'ondes formés par un nanocomposite inorganique pour l'optique non-linéaire



Stage de Maîtrise IUP Génie des Matériaux  
Réalisé du 1 Février au 30 Juin 2004  
Responsable de stage : Ronan LE DANTEC, chercheur



Laboratoire d'Instrumentation et de Matériaux d'Annecy (LAIMAN)  
B.P. 806  
74016 Annecy  
site internet : <http://www.laiman.univ-savoie.fr>

# SOMMAIRE

**PREAMBULE.....5**

**CHAPITRE I : PRÉSENTATION DES GUIDES D'ONDES LAPONITE /  
IODATE DE LITHIUM.....7**

1. La Laponite
2. L'iodate de lithium
3. Méthode d'élaboration et structures

**CHAPITRE II : OPTIMISATION DU PROCÉDÉ D'ÉLABORATION...13**

1. Influence du recuit sur la formation des nanocristaux  $\text{LiIO}_3$
2. Effet du pH du sol Laponite / iodate de lithium

**CHAPITRE III : ÉTUDES DES GUIDES D'ONDES.....20**

1. Principe de la spectroscopie des lignes noires (m-lines)
2. Montage expérimental
3. Caractérisation optique des couches guidantes
4. Atténuation des guides d'ondes

**CONCLUSION.....27**

**BIBLIOGRAPHIE.....28**

**ANNEXES.....30**

# REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier Monsieur **Philippe GALEZ**, Directeur du Laboratoire d'Instrumentation et des Matériaux d'Annecy (LAIMAN), pour m'avoir permis d'effectuer ce stage au sein de ce laboratoire,

Monsieur **Ronan LE DANTEC**, responsable de stage, pour m'avoir accueilli au sein de son groupe de Recherche et qui a su me guider et me faire partager son savoir,

Monsieur **Jérémie TEYSSIER** pour sa disponibilité, son aide et ses précieux conseils tout au long de mon stage,

Mes remerciements vont également à l'ensemble de l'équipe du thème de recherche Matériaux Diélectriques et Matériaux pour l'Optique, Messieurs **Yannick MUGNIER**, **Jacques BOUILLOT**, **Dominique PACCARD**, Madame **Christine GALEZ**,

Aux autres personnes du LAIMAN, Messieurs **Jacques ALLEMAND**, **Gérard GAUTIER**, **Jean-Louis JORDA**, **Marc LOMELLO TAFFIN**, **Jean-Christophe MARTY**, **Jean-Michel MOREAU**, **Yves TEISSEYRE**, Mesdames **Christine BARTHOD**, **Sandrine BEAUQUIS**, **Christiane BERTRAND**, **Nassika LAOUICI**, **Michelle PASSARD**,

Ainsi que les thésards, **Antoine**, **Abdelouahed**, **Hoan**, **Jiasong**, et la stagiaire, **Jennifer**, pour leur accueil chaleureux et leur collaboration qui ont contribué au bon déroulement de mon stage.

# PRÉAMBULE

Le LAIMAN est organisé en deux sections de recherche. La section " matériaux " a pour objectif d'élaborer des matériaux à fort potentiel avec des propriétés d'usage optimisées et reproductibles. Les aspects thermodynamiques - équilibres entre phases, formation des phases, cinétiques de transformation - et structuraux sont privilégiés et appliqués aux matériaux intermétalliques, supraconducteurs et diélectriques. La section " instrumentation et applications des matériaux " s'attache à mettre en œuvre ces matériaux pour la réalisation de dispositifs innovants. Elle fait largement appel à la modélisation des phénomènes mécaniques, électromagnétiques et thermiques.

Les thèmes de recherche du LAIMAN sont très variés : les matériaux supraconducteurs pour les applications en électrotechnique et dans le domaine des micro-ondes, les composés intermétalliques pour les applications en catalyse et les propriétés magnétiques, la conception et la réalisation de capteurs et de l'électronique associée, l'étude des interfaces dans les multimatériaux et la mise au point de l'instrumentation appropriée. Le dernier thème, au sein duquel j'ai effectué mon stage, est les matériaux diélectriques pour des applications en optique guidée et en optique non-linéaire.

Pour cela, le LAIMAN dispose d'une salle de chimie pour la fabrication des échantillons, d'appareils assez variés pour l'élaboration (appareil de trempage-tirage, fours de traitement thermique) et la caractérisation (analyseur thermique différentiel, diffractomètre de rayon X, microscope électronique à balayage équipé d'un dispositif de microanalyse X, AFM, banc de spectroscopie, etc).

Au sein de l'équipe « matériaux diélectriques », les recherches menées au cours de ces dernières années ont principalement porté sur l'iodate de lithium. Ce cristal, qui peut être obtenu par croissance en solution aqueuse (figure 1), présente d'excellentes propriétés non linéaires quadratiques (de même ordre de grandeur que les matériaux déjà exploités comme le KTP ou le  $\text{LiNbO}_3$ ). Afin d'utiliser ces propriétés, le laboratoire a mené des études sur la réalisation de guides d'ondes dans ce matériau par implantation ionique [1] ou par échange protonique [2-3]. Un autre sujet de recherche est le dopage de ce cristal par des ions luminescents afin de conférer au matériau des propriétés d'autodoublage [4].

Depuis deux années, l'équipe a mis en place une nouvelle thématique de recherche portant sur les matériaux nanocomposites pour l'optique non linéaire. Ce sujet a commencé par l'étude d'un matériau formé par des nanocristaux de iodate de lithium encapsulés dans une matrice de  $\text{SiO}_2$  obtenue par technologie sol-gel [5-6]. L'objectif est d'obtenir un matériau présentant des propriétés non linéaires tout en bénéficiant des avantages de la technologie sol gel (mise en forme aisée, bas coût, etc.). La faible taille des nanocristaux permet de limiter la diffusion de la lumière et donc d'obtenir un matériau transparent. Cette étude initiale, qui a permis de démontrer les potentialités de ce type de matériaux, s'est poursuivie par la synthèse d'un autre composite  $\text{LiIO}_3$  / Laponite [7]. La laponite est une argile synthétique qui va jouer ici le rôle de matrice.

C'est sur ce sujet qu'a porté mon stage. Les premiers essais concernant ce composite ont commencé récemment (il y a moins d'un an) et il était nécessaire d'étudier de manière systématique l'influence de paramètres d'élaboration sur les propriétés structurales obtenues (cf chapitre II). Ce matériau nanocomposite, lorsqu'il est déposé en couche mince sur un substrat de verre, forme un guide d'onde plan. Un autre objectif de mon stage a été d'étudier

les caractéristiques optiques de ces guides, et particulièrement l'atténuation. Les résultats de ces expériences sont présentés dans le chapitre III. Enfin, je présenterais dans le chapitre I la méthode d'élaboration de ce composite ainsi que les principaux résultats obtenus avant mon arrivée.

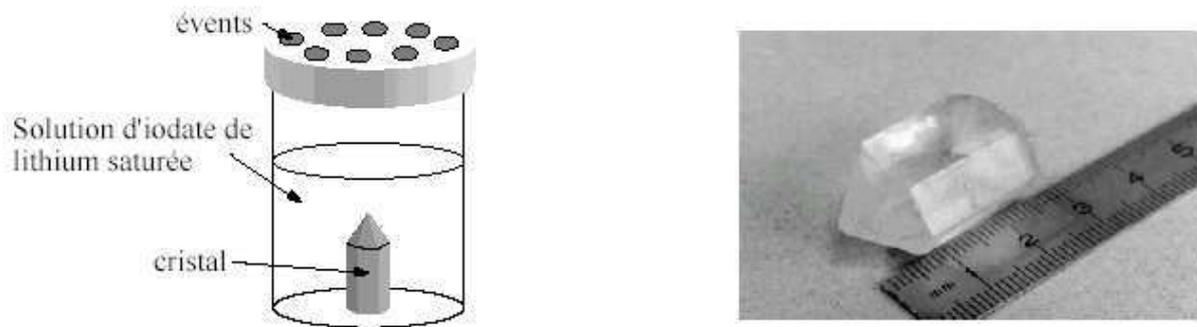


Figure 1 : dispositif de croissance des cristaux a) et photo d'un cristal b)

Mon travail a consisté à suivre une démarche scientifique complète depuis la synthèse jusqu'à la caractérisation des nanocristaux d'iodate de lithium pour des applications en optique non linéaire. La manipulation d'un diffractomètre de poudre ~~4-20~~ m'a permis de mettre en pratique les connaissances apprises lors de mon cursus à l'Université de La Rochelle. L'initiation à la spectroscopie de lignes noires m'a permis de déterminer les indices, l'épaisseur et l'atténuation du guide d'onde. La caractérisation a également nécessité l'apprentissage de nombreux logiciels d'acquisition des données, d'analyse des informations et la présentation des résultats.

Pour ma part, j'ai préparé 17 séries de 15 échantillons, lesquels ont tout d'abord été observés au microscope optique. Les caractérisations par diffraction des rayons X et par spectroscopie de lignes noires ont occupé la majeure partie de mon stage et m'ont permis d'obtenir de nombreuses informations sur l'influence de certains paramètres sur les nanocristaux d'iodate de lithium (cf Chapitre II et III).

# PRÉSENTATION DES GUIDES D'ONDES LAPONITE / IODATE DE LITHIUM

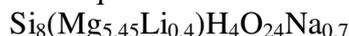
Les travaux effectués au LAIMAN avant mon arrivée ont montré la possibilité d'élaborer des guides d'ondes formés par un nanocomposite inorganique pour l'optique non-linéaire. Des cristaux de  $\text{LiIO}_3$  sont introduits dans une matrice inorganique, la Laponite.

En plus de la synthèse permettant d'obtenir des nanocomposites Laponite / iodate de lithium, nous avons étudié, avec différents techniques expérimentales (diffraction des rayons X, spectroscopie des lignes noires, AFM), l'influence de certains paramètres sur la formation des cristaux  $\square\text{LiIO}_3$ .

## I.1. La Laponite

Les applications de ce composé sont nombreuses (cosmétique, peinture, etc.). Son utilisation pour former des guides d'ondes a été récemment proposé par le LPCML de l'Université Lyon 1 avec qui le LAIMAN collabore [8].

La Laponite est une argile synthétique se présentant sous la forme de poudre composée de plaquettes élémentaires qui se dissocient dans l'eau pour former une solution colloïdale transparente. Ces plaquettes peuvent être décrites comme des disques d'1 nm d'épaisseur et de 30 nm de diamètre. Sa formule chimique est la suivante :



Sa structure se présente en couches octaédriques, dont deux sites sur trois sont occupés par un atome de magnésium et un sur trois par un atome de lithium, entourée de deux couches tétraédriques dont tous les sites sont occupés par des atomes de silicium (Figure I-1).

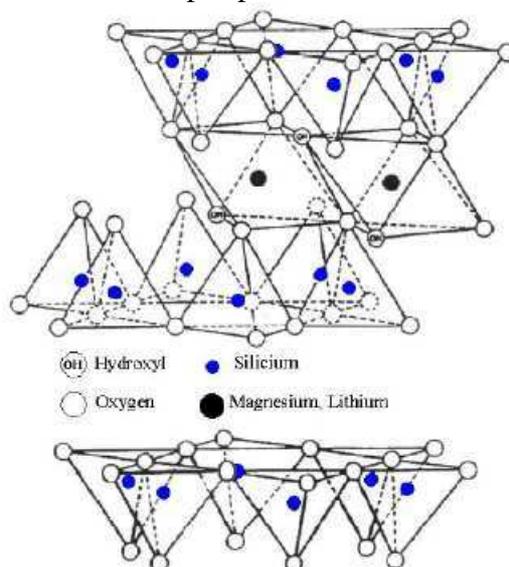


Figure I-1 : Structure cristallographique de la Laponite

## I.2. L'iodate de lithium

### I.2.1. Propriétés physiques

#### I.2.1.1. Transmission

L'iodate de lithium ( $\text{LiIO}_3$ ) présente d'excellentes propriétés optiques avec un domaine de transparence qui s'étend de l'ultraviolet à l'infrarouge (300nm à  $5\mu\text{m}$ )(figure I-2). Sous forme d'inclusion de taille nanométrique, il confère à la couche les propriétés optiques non linéaires tout en conservant sa transparence.

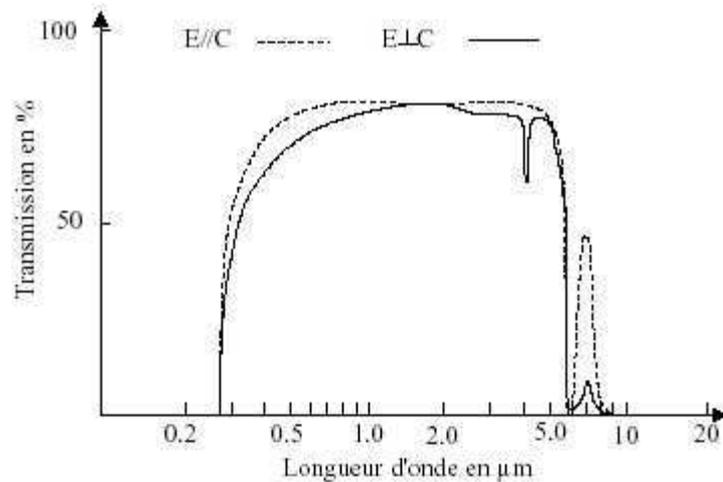


Figure I.2 – Transmission optique de  $\text{LiIO}_3$

#### I.2.1.2. Indices de réfraction

La propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu est décrite par les équations de Maxwell. Le déplacement électrique  $D$  et le champ électrique  $E$  sont reliés par la permittivité diélectrique relative  $\epsilon_r$  qui dans un milieu anisotrope est une grandeur tensorielle:

$$D_i = \epsilon_0 \epsilon_{r_{ij}} E_j$$

où  $\epsilon_r$  est relié à l'indice de réfraction par la relation suivante :

$$\epsilon_{r_{ij}} = n_{ij}^2$$

#### I.2.1.3. Propriétés structurales

L'iodate de lithium est un cristal qui peut exister sous plusieurs formes cristallines dont 3 sont parfaitement connues :  $\alpha$  et  $\beta$  sont les phases stables à température ambiante et la phase  $\gamma$  est une phase intermédiaire métastable, apparaissant dans certaines conditions autour de 520K, lors de la séquence de transitions  $\alpha \leftrightarrow \beta \Rightarrow \gamma$

La transition  $\square \Rightarrow \square$  est irréversible et se produit vers 250°C. La phase  $\square$  apparaît entre 180°C et 230°C. La première transition  $\square \Leftrightarrow \square$  est endothermique et réversible alors que la transition  $\square \Rightarrow \square$  est irréversible et  $\square\text{-LiIO}_3$  est stable jusqu'à la fusion du composé à 432°C.

La phase  $\square$  la plus intéressante pour des applications en optique non linéaire, a une structure hexagonale et appartient au groupe d'espace  $P6_3$  (figure I-3). Les paramètres de maille valent :  $a = 5.484 \pm 0.003 \text{ \AA}$  et  $c = 5.177 \pm 0.005 \text{ \AA}$  [9-12].

Selon (001) la structure comprend un empilement d'octaèdres d'oxygène dans lesquels les ions lithium sont légèrement décentrés.

La phase  $\square$  se trouve sous la forme d'une structure tétragonale appartenant au groupe d'espace  $P4_2/n$  avec comme paramètres de maille  $a = 9.7329 \pm 0.0007 \text{ \AA}$  et  $c = 6.1566 \pm 0.0007 \text{ \AA}$  [12].

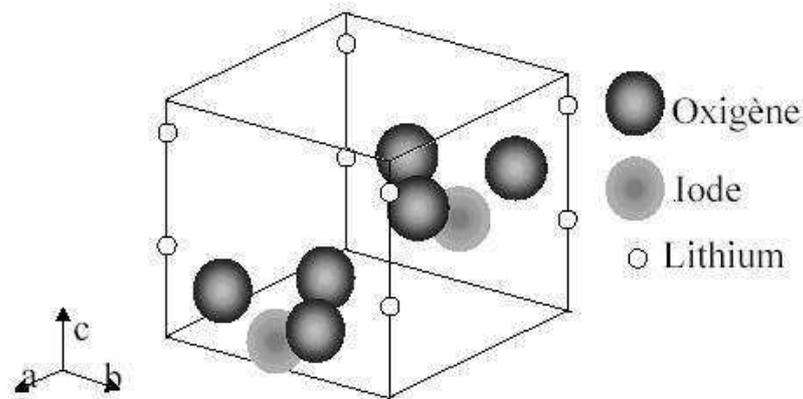


Figure I-3 : structure cristalline du  $\square\text{-LiIO}_3$

## I.2.2. Propriétés optiques non linéaires

L'utilisation de lasers de puissance permet de créer des champs électromagnétiques très intenses. Dans l'interaction matière-rayonnement, les dipôles induits par ces champs répondent alors de manière non linéaire lorsque la force du champ électrique de l'onde optique rivalise avec les forces de liaison internes aux atomes.

Aux fréquences optiques, la polarisation non linéaire engendrée dans le matériau peut s'écrire :

$$P_i = \epsilon_0 \chi_{jk}^{(2)} E_j E_k$$

$\epsilon_0$  étant la permittivité du vide

$\chi_{jk}^2$  le tenseur des susceptibilités non linéaires d'ordre 2

$E_j$  ( $E_k$ ) le champ électrique de l'onde optique

Etant donnée la symétrie cristalline de  $\text{LiIO}_3$ , le tenseur des coefficients non linéaires  $\chi_{ijk}$  ( $=2.d_{ijk}$ ) s'écrit en notation de Voigt [4]:

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & d_{15} & -d_{14} & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Il existe donc quatre coefficients indépendants qui se réduisent à trois ( $d_{15}=d_{113}=d_{311}=d_{31}$ ). Les valeurs des coefficients sont de :  $d_{33} = -4.1 \times 10^{-12}$  m/V,  $d_{31} = -7.02 \times 10^{-12}$  m/V et  $d_{14} = 0.31 \times 10^{-12}$  m/V.

Pour mesurer les caractéristiques optiques non-linéaire des guides, le laboratoire utilise la génération de seconde harmonique (GSH). Cette technique consiste à générer une lumière avec une fréquence double par rapport à l'onde incidente.

### I.3. Méthode d'élaboration et structures

La réalisation de couches minces de bonnes qualités s'effectue en 4 principales étapes :

- l'élaboration du sol de Laponite / Iodate de lithium
- la préparation du substrat sur lequel la couche va être déposée
- le dépôt de la couche par "dip-coating"
- les recuits

L'élaboration du sol de Laponite /  $\text{LiIO}_3$  consiste à mélanger une solution colloïdale de Laponite avec une solution de  $\text{LiIO}_3$ . Par exemple, pour obtenir un composite à 400% massique  $\text{LiIO}_3$  / Laponite, on peut dissoudre 1,5g de Laponite dans 40 mL d'eau distillée. Après agitation et passage aux ultra-sons, une deuxième solution contenant 6g de  $\text{LiIO}_3$  dans 10 mL d'eau distillée est préparée et incorporée dans la solution de Laponite puis à nouveau passée aux ultra-sons.

Le dépôt des couches est réalisé sur un substrat de verre. Le choix du substrat est primordial car son état de surface conditionne la qualité du dépôt. Il doit être dépourvu de graisse, de rayures et d'aspérités pour assurer une bonne adhérence du film. Nos substrats sont des lames de verres 76x26 mm, utilisées pour des observations microscopiques. Ces lames supportent les hautes températures de recuit ( $450^\circ\text{C}$ ) et leur indice optique ( $n_s = 1.495$ ), inférieur à l'indice de la couche guidante, est à prendre en compte pour l'obtention d'une structure guidante (Annexes 1).

Parmi les méthodes pouvant être utilisées pour le dépôt de couches minces optiquement guidantes, la technique du « dip-coating » (trempage-tirage) est privilégiée. L'ajustement de l'épaisseur se fait par la vitesse de tirage mais sur une faible gamme suivant la viscosité du sol. Une vitesse de tirage de 15 cm/minute avec une faible viscosité du sol peut donner une épaisseur du guide mesurée à l'AFM de 200nm et 3  $\mu\text{m}$ . Un séchage à  $80^\circ\text{C}$  est nécessaire après le tirage pour densifier la couche.

On réalise ensuite un recuit entre  $150^\circ\text{C}$  et  $210^\circ\text{C}$  pour amorcer la nucléation des cristaux de  $\square\text{-LiIO}_3$ . Ces cristaux vont s'organiser autour d'un centre de cristallisation de façon radiale avec l'axe c parallèlement à la surface du substrat pour former une sphérulite comme le montre la figure I-4, image au microscope polarisé.

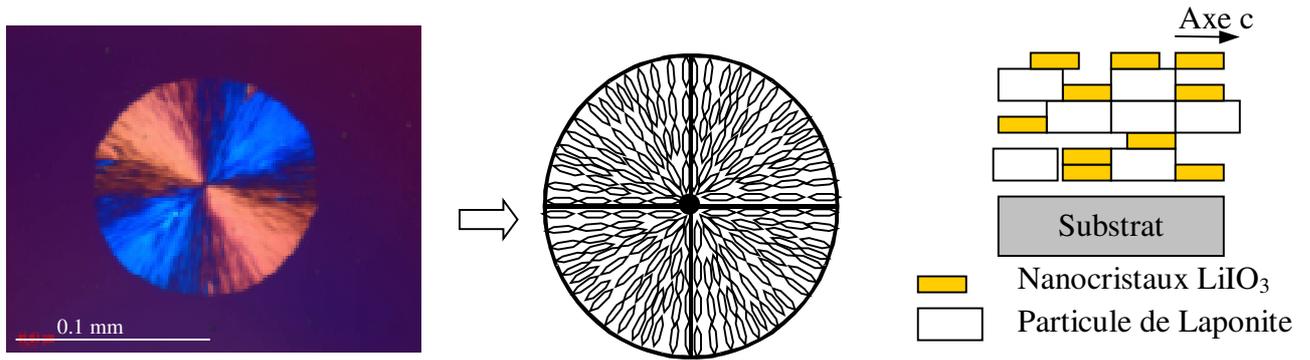


Figure I-4 : image polarisée et schéma d'une sphérullite

Cette structure particulière a été confirmée par des observations en diffraction des rayons X (figure I-5) qui confirment l'orientation des cristaux et qui nous permettent d'estimer leur taille d'après la relation de Scherrer :

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos(\theta)}$$

avec L la taille des particules

$\lambda$  la longueur d'onde

K constante comprise entre 0.89 et 1.34, dépend de la source de rayons X

$\beta$  la largeur du pic de diffraction (100) à mi-hauteur

$\theta$  l'angle du pic 100

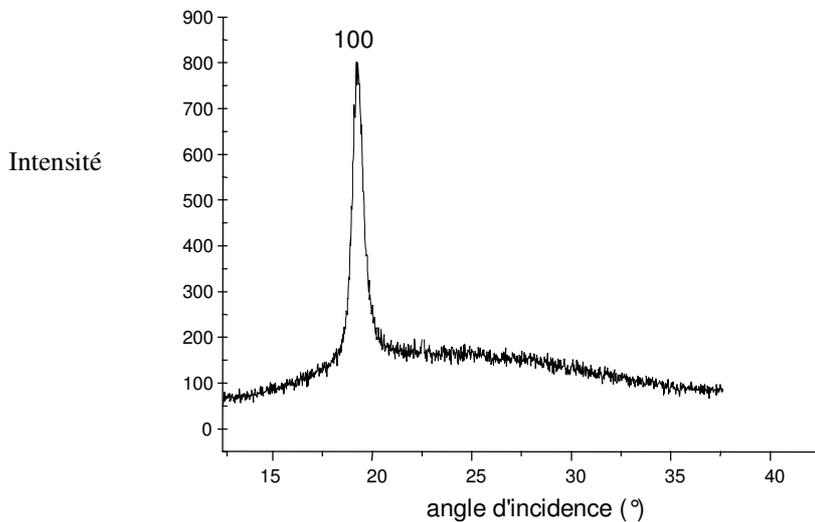


Figure I-5 : spectre de diffraction d'un guide d'onde. Le plan 100 indique l'orientation de l'axe c des cristaux de  $\square$ -LiIO<sub>3</sub> dans le plan de la couche

D'après le spectre de diffraction, la taille moyenne des cristaux est d'une dizaine de nanomètre.

Les sphérulites finissent par se rencontrer pour former des domaines joints, terminant le processus de cristallisation (figure I-6).

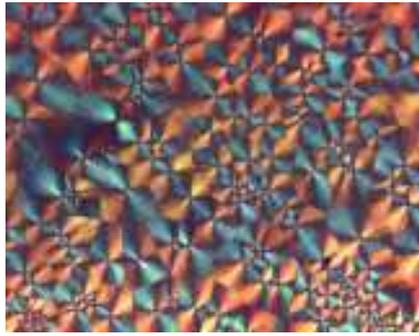


Figure I-6 : cristallisation complète du guide d'ondes

Le mode opératoire et les résultats présentés dans ce chapitre correspondent aux travaux amorcés au laboratoire avant mon arrivée. Dans ce cadre, les objectifs de mon stage étaient d'une manière générale d'explorer les différents paramètres du procédé afin d'améliorer la reproductibilité. En particulier, j'ai dans un premier temps étudié la structure du composite (cf chapitre II) en fonction des conditions de recuit. Puis dans la seconde partie de mon stage, à partir des conditions optimales déterminées, j'ai optimisé la réponse optique des guides élaborés (cf chapitre III).

## OPTIMISATION DU PROCÉDÉ D'ÉLABORATION

Afin d'optimiser les propriétés optiques du matériau, il faut tout d'abord contrôler les paramètres d'élaboration des guides d'ondes Laponite/LiIO<sub>3</sub>. Les principaux paramètres à étudier sont les durées et les températures du recuit des couches, le pH de la solution dans le but de former un guide de bonne qualité.

### II.1. Influence du recuit sur la formation des nanocristaux LiIO<sub>3</sub>

#### II.1.1. Effet de la température de recuit

Le recuit est nécessaire à la formation des nanocristaux de  $\square$ -LiIO<sub>3</sub>. Notre hypothèse est que la cristallisation est provoquée par l'évaporation de l'eau lors de ce recuit.

Les premières études au LAIMAN ont permis d'obtenir des cristaux de  $\square$ -LiIO<sub>3</sub> pour une température de recuit de 180°C avec une concentration de LiIO<sub>3</sub> de 400% massique et un pH avoisinant 8. Pour voir l'effet de la température sur la cristallisation des couches, elles ont été recuites pendant 4 jours à 150°C, 180°C et 210°C, gamme de températures correspondant au domaine de stabilité de la phase  $\square$  du LiIO<sub>3</sub>, phase la plus intéressante pour l'optique non-linéaire.

D'après les observations microscopiques en lumière polarisée, une température de recuit de 150°C n'est pas assez élevée pour amorcer un début de cristallisation du iodate de lithium (figure II-1). Lorsque celle-ci est de 180°C (figure II-2), l'iodate de lithium commence à cristalliser en formant des domaines, appelés également sphérulites, pouvant aller jusqu'à 200  $\mu$ m. A 210°C, les domaines, de l'ordre de quelques millimètres, couvrent toute la couche et on peut considérer que la cristallisation est terminée (figure II-3).



Figure II-1 : pas de nanocristaux visible à 150°C

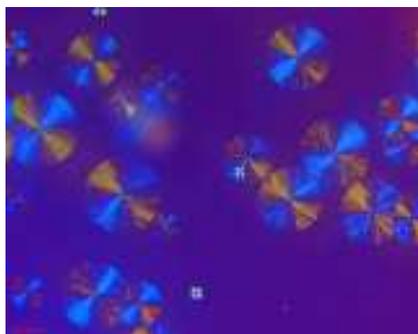


Figure II-2 : croissance des sphérulites à 180°C



Figure II-3 : continuité des domaines à 210°C

La cinétique de croissance des cristaux est donc influencée par la température. Un recuit à 210°C semble être idéal car il permet de cristalliser plus rapidement la couche.

Seulement, au bout de 3 jours, d'après la diffraction des RX, aucun pic de la phase  $\alpha$  n'apparaît sur la figure II-4. Lors d'une première approche, les principaux pics d'intensités correspondraient à  $P_2O_5$  (1) et  $HIO_3$  (2).

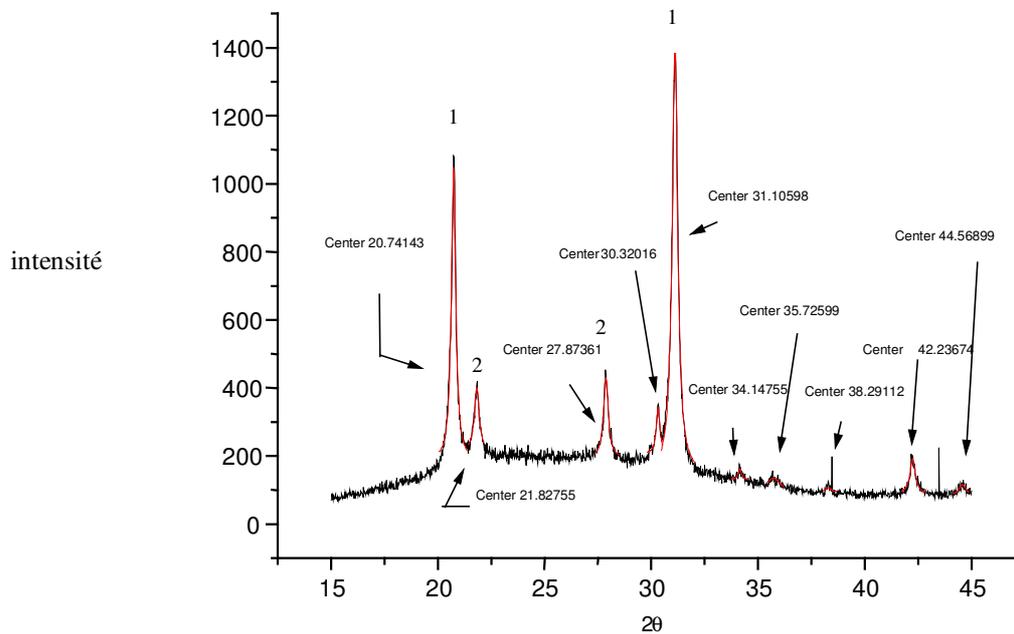


figure II-4 : spectre de diffraction d'un guide recuit à 210°C

Dans notre cas, un recuit de 3 jours à 210°C n'est pas intéressant car la phase  $\beta$  essentielle pour des applications en optique non-linéaire, n'est pas présente dans la structure du guide. De plus, la couche perd sa transparence car elle a parfois tendance à blanchir.

### II.1.2. Influence du temps de recuit

En fixant une température, on peut supposer que le temps de recuit va influencer le taux de cristallisation du guide d'ondes.

A la température de 150°C, l'iodate de lithium n'a pas le temps de cristalliser sur toute la surface de la couche. Au bout d'une semaine, on peut estimer que les petits domaines de cristallisation s'étendent sur une faible zone du guide.

A 180°C, la cinétique de croissance des cristaux de  $\beta$ -LiIO<sub>3</sub> est lente. La taille des sphérulites a quadruplé en 4 jours mais la couche n'est pas totalement cristallisée. D'après les spectres de diffraction, seul le plan (100) de la phase  $\alpha$  est présent et les cristaux mesurent une dizaine de nanomètre.

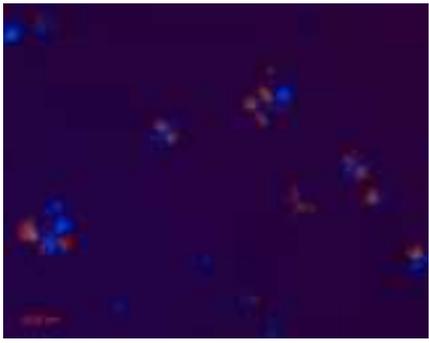
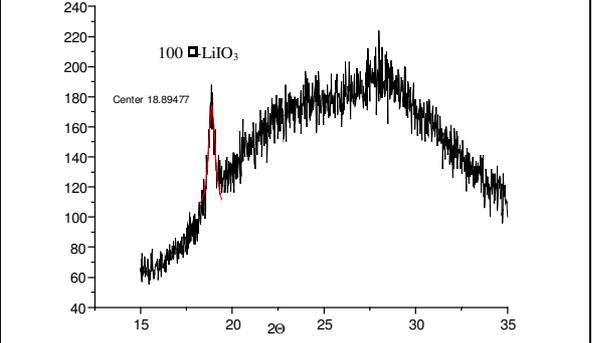
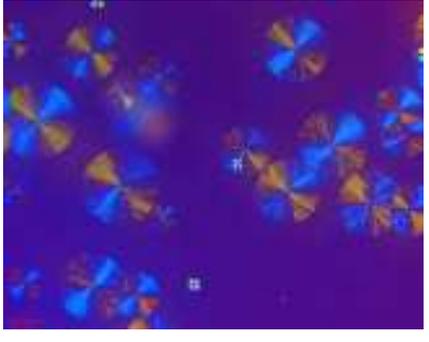
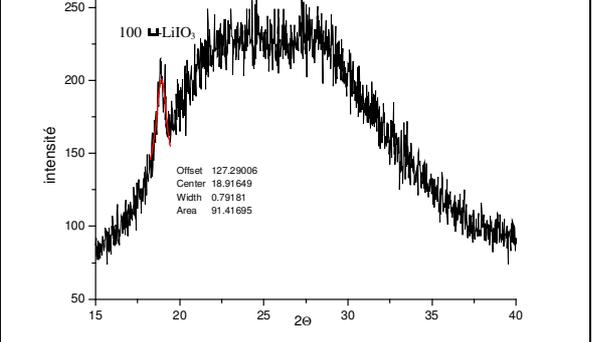
Durée	Image polarisée au microscope (x5)	Spectre de diffraction
24 heures		
4 jours		

Tableau II-5 : Evolution de la couche à 180°C en fonction du temps et spectre de diffraction correspondant

A 210°C, l'effet du temps de recuit est visible. Au bout de 30 minutes, des sphérulites de petites tailles, environ 0.1mm, commencent à apparaître. Au bout de 2 heures, la couche n'est pas entièrement cristallisée. Après 24 heures à 210°C, des grands domaines de 3 à 5 mm recouvrent entièrement le guide d'onde. Ensuite, la croissance n'a plus l'air d'avoir lieu car les domaines gardent leur forme (figure II-6).

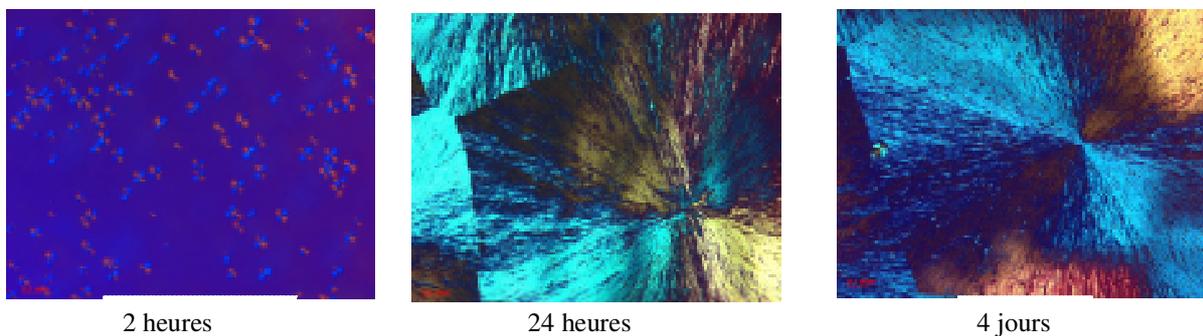


Figure II-6 : Evolution de la cristallisation sur le guide d'onde en fonction du temps de recuit à 210°C

Un recuit pendant 24 heures à 210°C est intéressant car toute la couche est cristallisée par de grands domaines et reste transparente avec la formation de cristaux de  $\text{LiIO}_3$ , contrairement à un recuit de 4 jours (cf résultats 1.1).

Ainsi, à une température fixée, le temps de recuit permet une augmentation du nombre et de la taille des sphérulites, permettant la cristallisation complète des couches.

Cependant, le mode opératoire, n'étant pas totalement maîtrisé, d'autres paramètres (temps aux ultra-sons, agitation, vitesse de tirage, etc.) influent sur cette cinétique de croissance des cristaux.

### II.1.3. Recuit par la méthode RTA

Le recuit par RTA (Rapid Thermal Annealing) permet de cristalliser plus vite la couche car la montée en température est rapide (450°C en 2 secondes). Les couches ont été recuites à différentes températures pendant 3 minutes au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée et Nanostructures (LPMCN), à l'Université Lyon 1.

Dans ce paragraphe, nous nous intéresserons à une des propriétés optiques du guide, la transmission car ce laboratoire dispose d'un spectromètre UV-Visible Perkin-Helmer. La transmission optique a été mesurée dans le domaine de longueurs d'onde 200-1500 nm à des températures de recuit différentes.

A une température de 200°C, les couches ont été totalement cristallisées. Ce résultat est étonnant car il est contraire à nos précédentes observations (à cette température, quelques heures sont nécessaires typiquement pour cristalliser complètement la couche). C'est un exemple des problèmes de reproductibilité que nous avons rencontrés. Ici, les sphérulites sont assez petites, environ 0.2  $\mu$ m. On observe sur le spectre RX les plans (100), (101) et (110) de la phase  $\alpha$ . Le passage de la couche au spectromètre UV-Visible indique que le guide d'onde possède a priori de bonnes propriétés optiques grâce à un pourcentage de transmission élevé.

A 300°C, les plans (201) ( $2\theta = 42^\circ$ ) et (112) ( $2\theta = 48^\circ$ ) apparaissent en plus des autres plans déjà mentionnés. Les sphérulites sont de même taille quelque soit la température. Cependant le pourcentage de transmission diminue, d'où une possible dégradation des propriétés optiques du guide.

A partir de 450°C, le pic de diffraction du plan 100 est faible, donc les cristaux de  $\alpha$ -LiIO<sub>3</sub> sont peu orientés suivant l'axe c. La couche à tout de même cristallisée mais le spectre nous indique la présence d'un autre composé, non défini, pour  $2\theta = 26^\circ$  et  $33^\circ$ .

Le recuit par RTA permet une cristallisation rapide sans pour autant faire apparaître la phase  $\beta$  du LiIO<sub>3</sub>, qui ne possède pas les propriétés optiques non-linéaires souhaitées. Pour des températures supérieures à 200°C, les spectres de diffraction de la figure II-7 montrent que les cristaux de LiIO<sub>3</sub> sont de moins en moins orientés car le pic de diffraction du plan (100) ( $2\theta = 18^\circ$ ) de la phase  $\alpha$  diminue lorsque la température s'élève.

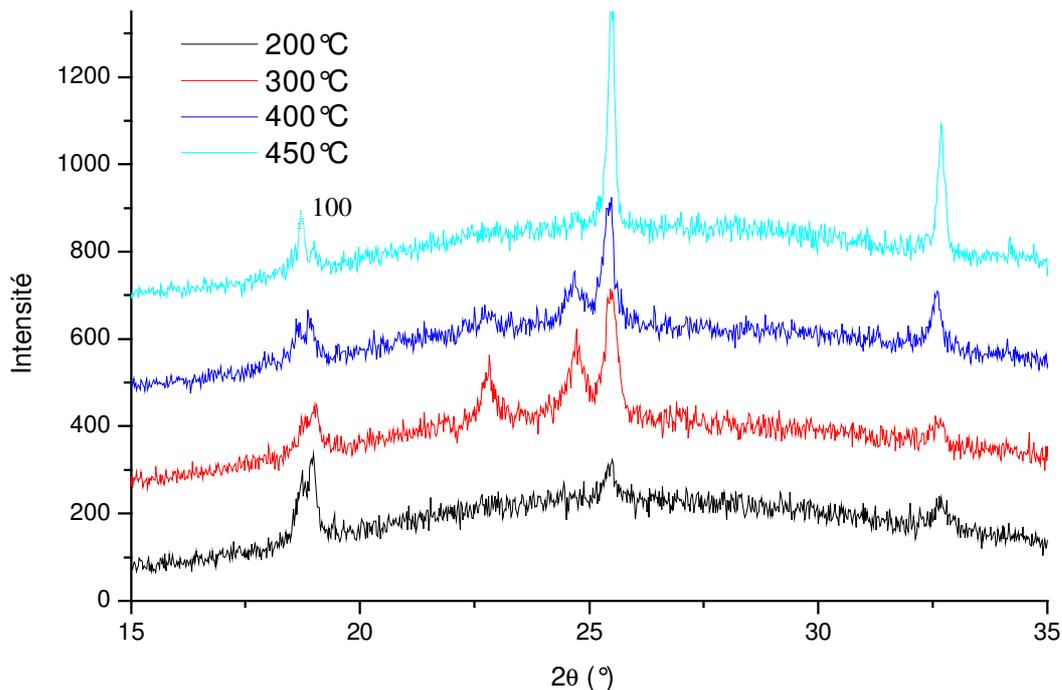


Figure II-7 : Spectres de diffraction X des couches recuites à différentes températures par RTA

De plus nous avons observé une diminution du pourcentage de transmission optique (Figure II-8). En conclusion, nous ne pensons pas que cette méthode soit adaptée à notre procédé. On peut noter l'absence de la phase  $\square$  apparaissant normalement pour une température supérieure à  $230^\circ\text{C}$ .

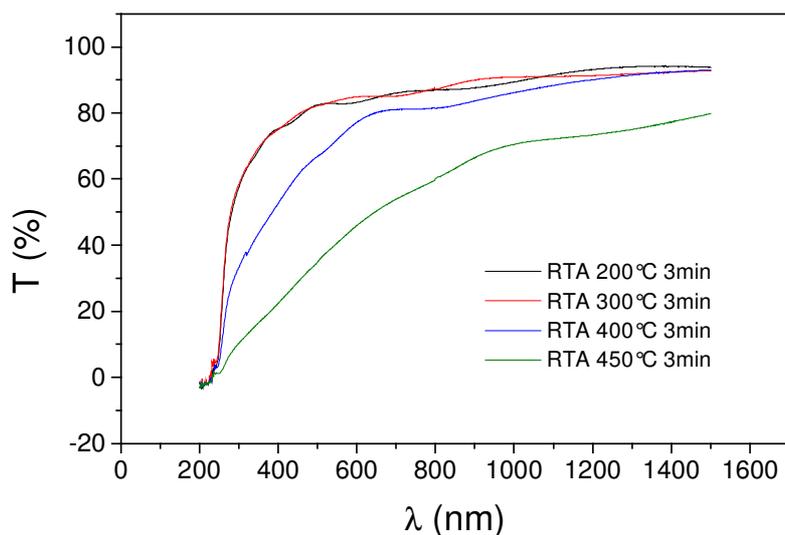


Figure II-8 : Transmission des couches à différentes températures de recuit

### II.3. Effet du pH du sol Laponite / iodate de lithium

Le sol de Laponite /  $\text{LiIO}_3$  a un pH normalement de 7-8. L'objectif est de savoir si le pH a une influence sur la formation des nanocristaux de  $\alpha\text{-LiIO}_3$ . Pour cela de l'acide iodique ou de l'hydroxyde de lithium est rajouté lors de la synthèse afin d'obtenir des solutions à pH acide et basique. Nous avons fixé :  $\text{pH} \cong 3$  ,  $\text{pH} \cong 5$  ,  $\text{pH} \cong 7$  et  $\text{pH} \cong 11$   
Les couches (400% massique  $\text{LiIO}_3$  / Laponite) ainsi réalisées ont été recuites à  $180^\circ\text{C}$  pendant 3 jours.

Lorsque le pH est de 3, il est difficile de filtrer la solution car elle est assez visqueuse. L'utilisation d'un filtre  $1.2 \mu\text{m}$  est alors nécessaire. L'observation au microscope optique en lumière polarisée montre que la couche n'est pas totalement recouverte de domaines. De plus, une analyse plus fine de ces domaines laisse supposer une désorganisation des cristaux car il n'y a pas de croissance radiale. Cette hypothèse est confirmée par l'absence de pics sur le spectre de diffraction de la figure II.9.

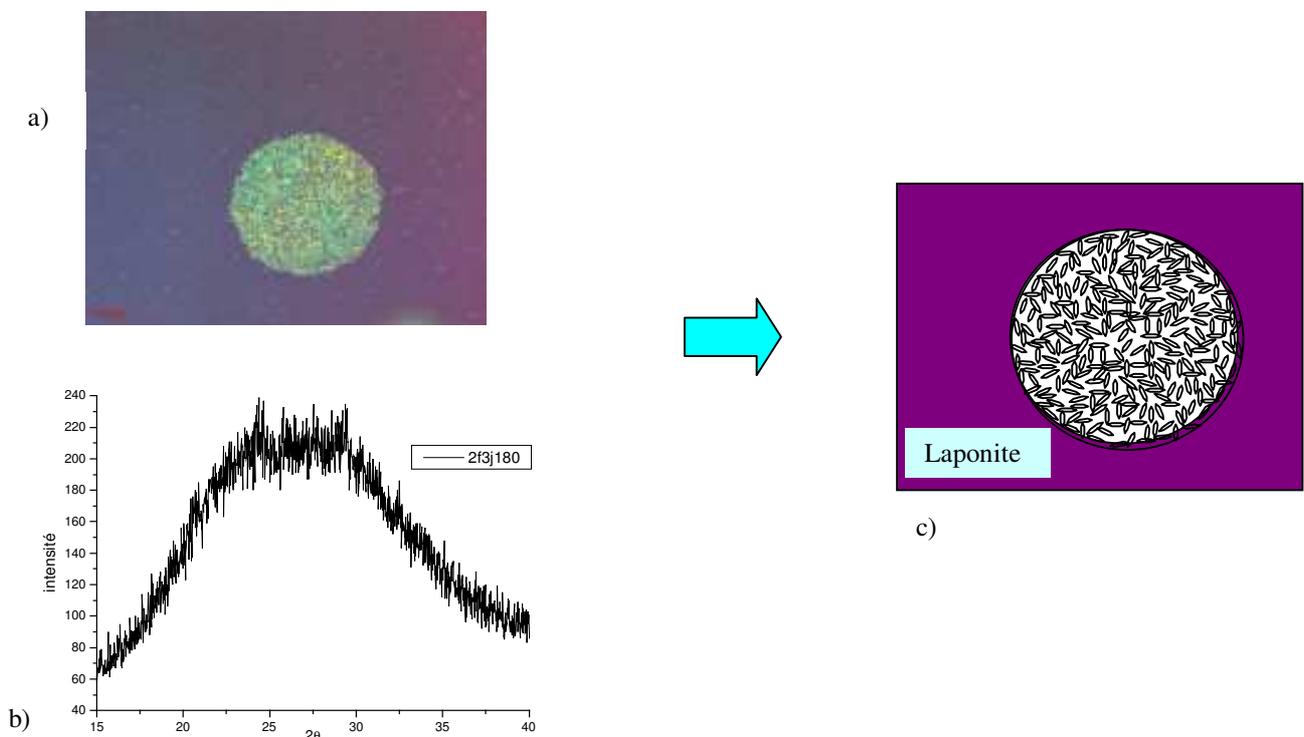


Figure II-9 : cliché microscopique polarisé d'une sphérullite (x5) (a). Le spectre de diffraction (b) indique une orientation non privilégiée des cristaux de  $\text{LiIO}_3$  (c) car aucun pic de diffraction est intense

Pour un pH de 5, les sphérullites sont de petites tailles, environ  $40\mu\text{m}$ , et recouvrent toute la couche. Seul un pic est apparu au RX dont le centre se situe à  $2\theta = 21.75^\circ$ . Ce pic ne correspond ni à la phase  $\alpha$  ni à la phase  $\beta$  du iodate de lithium.

Lorsque le pH est de 8, c'est à dire sans ajout d'une base ou d'un acide, on a vu précédemment que le guide possédait quelques sphérullites isolées de  $0.2 \text{ mm}$  et les cristaux mesurent une dizaine de nanomètre (cf résultats 1.1).

Pour un pH de 11, la couche n'est pas entièrement recouverte. On observe des domaines joints, dont les plus gros ne dépassent pas 0.1mm avec des cristaux de  $\alpha$ -LiIO<sub>3</sub> d'une dizaine de nanomètre.

D'après l'étude sur l'influence du pH de la solution Laponite / iodate de lithium, il est préférable de travailler sans ajouter d'acide iodique ou d'hydroxyde de lithium. En effet, un acide désoriente la croissance des cristaux de LiIO<sub>3</sub>. De plus, la phase  $\alpha$  du iodate de lithium, primordiale pour l'optique non linéaire, n'apparaît pas pour tous les pH et un autre composé peut se former.

#### **II.4. Conclusion**

D'après les résultats des paramètres dans ce chapitre, les propriétés optiques du guide d'ondes vont dépendre de son élaboration. Dans un premier temps, aucun acide ni aucune base ne doit être ajouté à la solution Laponite / Iodate de lithium car les cristaux de LiIO<sub>3</sub> se désorientent et un autre composé peut se former. Ensuite le recuit, nécessaire à la croissance des cristaux de LiIO<sub>3</sub>, doit être réalisé à une température comprise entre 200°C et 210°C pendant une durée d'une dizaine de minutes à quelques heures. Nous avons, par nos mesures, montré la non reproductibilité du temps de cristallisation des couches, d'autres paramètres intervenant probablement dans ce processus. Un temps idéal de recuit correspond à la cristallisation de la couche, mais un temps prolongé dégrade les qualités optiques (transparence, formation d'autres phases). Un compromis doit être à chaque fois réalisé et les perspectives d'un travail ultérieur sont l'étude d'autres paramètres.

## ETUDES DES GUIDES D'ONDES

Après cette première étude exploratoire qui nous a permis de définir les paramètres typiques du procédé, nous souhaitons étudier plus spécifiquement les propriétés des guides d'ondes, et en particulier corrélérer l'atténuation aux conditions d'élaboration.

Il existe différentes techniques de caractérisation optique d'une couche guidante (épaisseur et profil d'indice) telles que les méthodes interférométriques, ellipsométriques ou la mesure en champ proche des rayons réfractés. Le laboratoire dispose d'une autre méthode de caractérisation, la spectroscopie des lignes noires.

### III.1. Principe de la spectroscopie des lignes noires (m-lines)

La spectroscopie des lignes noires est une méthode d'analyse optique qui permet de déterminer l'indice effectif d'un mode guidé. Le principe consiste à exciter les modes du guide à caractériser par l'intermédiaire d'un prisme de couplage. Le LAIMAN dispose d'un montage, dont la configuration est détaillée sur la figure III-1. Le faisceau incident est focalisé sur la base du prisme avec un angle  $j$  directement lié par la loi de Descartes à l'angle d'incidence  $i$ . Ainsi pour certaines valeurs discrètes de l'angle  $i$ , on aura un couplage par onde évanescente correspondant à un mode d'indice effectif  $n_m$  dans le guide. Ceci entraîne l'apparition d'une ligne noire en réflexion. La mesure de l'angle d'incidence correspondant à une ligne noire permet de déterminer l'indice effectif du mode par la relation:

$$n_m = n_{prisme} \sin \left[ A_{prisme} + \arcsin \left( \frac{\sin i}{n_{prisme}} \right) \right] \quad (1)$$

A partir des mesures des indices effectifs  $n_m$ , on peut déterminer l'épaisseur et l'indice du guide analysé.

### III.2. Montage expérimental

Le banc optique, non automatisé, comprend :

- un laser hélium-néon (543.5 nm) polarisé de puissance maximale de 5mW.
- une lame quart d'onde pour obtenir une polarisation circulaire.
- un objectif de microscope pour défocaliser le faisceau.
- un disque plastique rotatif en guise de filtre spatial.
- une lentille ( $f=100\text{mm}$ ) pour avoir un faisceau parallèle.
- un polariseur pour pouvoir sélectionner les modes TE et TM.
- un réticule en forme de croix pour le repérage de l'incidence normale et la mesure des angles correspondant aux lignes noires.
- une lentille ( $f=100\text{mm}$ ) qui focalise le faisceau sur la base du prisme.
- un porte-échantillon comprenant un montage à 3 translations, un goniomètre avec compteur digital (résolution à  $0.001^\circ$ ) et le support du prisme.
- le prisme de couplage d'indice 2.015 pour une réflexion totale et l'échantillon à analyser.

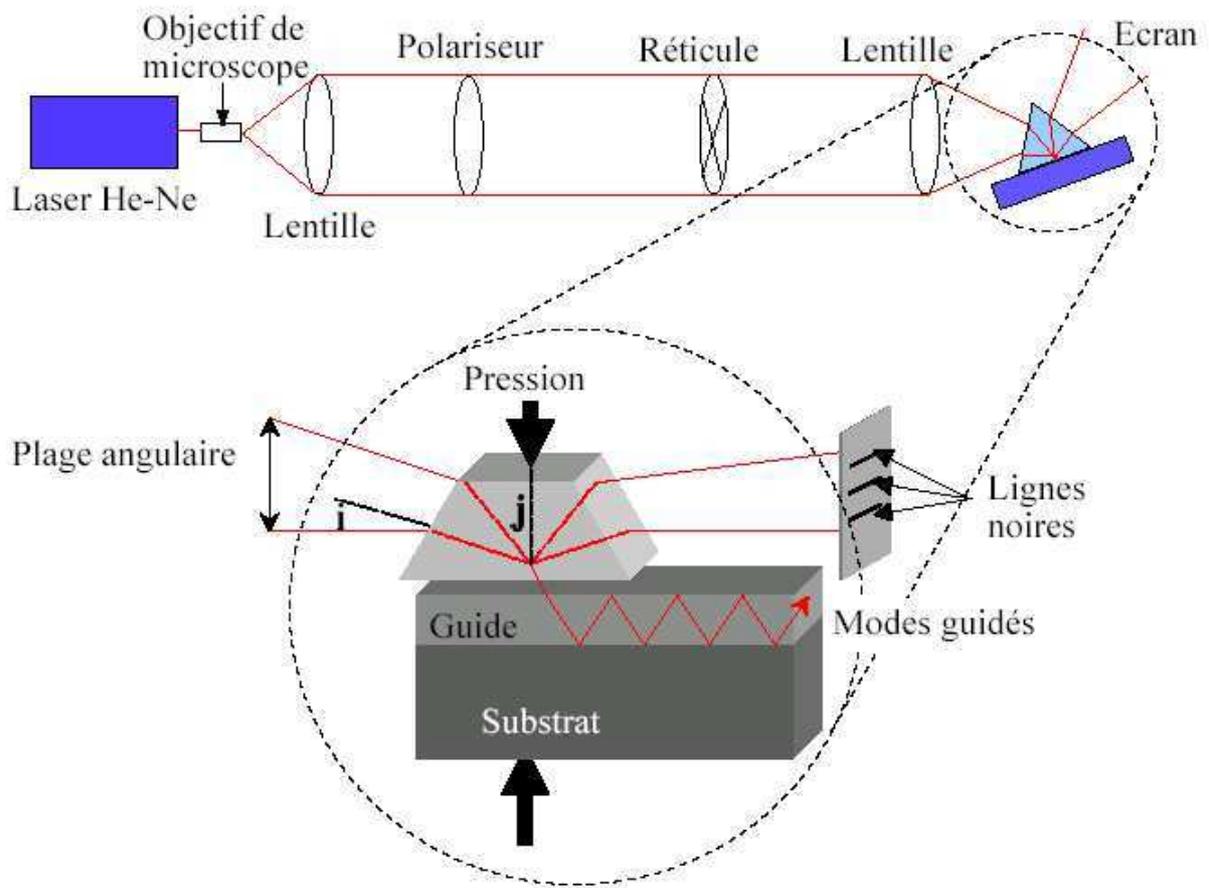


Figure III-1 : Principe du banc de mesure des lignes noires

### III.3. Caractérisation optique des couches guidantes

L'obtention de mesures des indices demande un très bon alignement du banc optique pour chaque guide à analyser. On vérifie d'abord l'horizontalité du faisceau laser. On insère ensuite les deux lentilles munies de translations pour garder le faisceau sur sa position initiale. Lorsque la face d'entrée du prisme est perpendiculaire au faisceau incident on insère le réticule de manière à ce que son image, réfléchi par le prisme, se superpose à elle même. C'est la position de référence où  $i=0^\circ$ . La position du réticule est ajustée à l'aide de mouvements micrométriques, ce qui permet d'obtenir une erreur absolue inférieure à  $0.001^\circ$  pour la position de référence.

Pour déterminer l'épaisseur et l'indice du guide d'onde, il suffit alors de tourner l'ensemble échantillon - prisme jusqu'à l'apparition des lignes noires. Les modes guidés sont alors repérés en superposant l'image du réticule aux lignes noires successives.

Dans le cas d'un guide d'onde à saut d'indice formé par une couche d'épaisseur  $e$  et d'indice  $n_{couche}$ , on utilise les relations suivantes :

$$\rightarrow n_{couche} = \sqrt{\left[ \frac{4 * n_{m_{haut}}^2 - n_{m_{bas}}^2}{3} \right]}$$

$$\rightarrow e = \sqrt{\left[ \frac{\lambda^2}{n_{couche}^2 - n_{m_{bas}}^2} \right]}$$

Dans l'exemple suivant (couche à 400% massique  $LiIO_3$  / Laponite), deux lignes noires sont repérées en mode TE. On note les deux valeurs de l'angle  $i$  et l'on obtient une épaisseur de 0.821  $\mu m$  et un indice de 1.681.

échantillon	$i$ (TE)	$n_p$	A	$n_m$ (TE)	$n_m$ haut (TE)	$n_m$ bas (TE)	$n_{couche}$ (TE)	épaisseur (TE)
6	-10,301	2,015	60	1,648	1,648	1,545	1,681	0,821 $\mu m$
	-20,26			1,545				

Plusieurs couches ont été analysées. Une étude sur un grand nombre d'échantillon (dont certains sont mentionnés dans le tableau III-2) montre qu'aucun paramètre (température et temps de recuit, pH de la solution Laponite / iodate de lithium) influence de façon considérable l'épaisseur du guide d'onde qui est de l'ordre de 0.8  $\mu m$ .

Température de recuit ( $^{\circ}C$ )	Temps de recuit (jours)	pH Laponite / $LiIO_3$	Epaisseur ( $\mu m$ )
150	3	8	0.716
0	0	8	0.858
180	3	8	0.802
180	3	11	0.961

Tableau III-2 : Epaisseur du guide d'ondes en fonction des paramètres d'élaboration

### III.4. Atténuation des guides d'ondes

L'atténuation est un paramètre très important de point de vue des applications. Les valeurs obtenues sur les guides pour l'optique non-linéaire sur d'autres matériaux et/ou technologies sont de l'ordre du dB/cm.

#### III.4.1. Principe

La technique que nous avons utilisé pour caractériser l'atténuation de la lumière dans nos guides est la mesure de l'atténuation de la lumière diffusée par la surface. L'injection de la lumière est réalisée sur le banc de spectroscopie des lignes noires décrit précédemment. Dans un premier temps, on repère les lignes noires sur l'écran. Puis on utilise un laser hélium-néon (632.8 nm) polarisé de puissance maximale de 30mW dont le faisceau est focalisé sur la base du prisme ( figure III-3).



Figure III-3 : Photographie de la spectroscopie des lignes noires et dispositifs de mesures d'atténuation

Pour mesurer précisément l'atténuation du guide, la lumière diffusée est imagée à l'aide d'une caméra CCD haute résolution équipée d'un objectif. La surface de la zone imagée est de quelques  $\text{cm}^2$ .

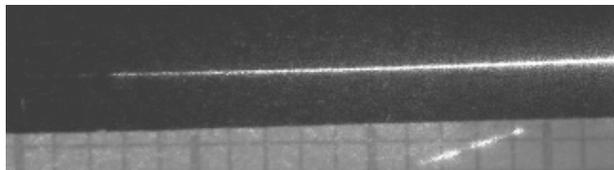


Figure III-4 : image de l'atténuation d'un guide

A partir de l'image de l'atténuation du guide (figure III-4), on utilise un programme MATLAB qui permet de tracer le profil du faisceau atténué (figure III-5). On obtient généralement une exponentielle.

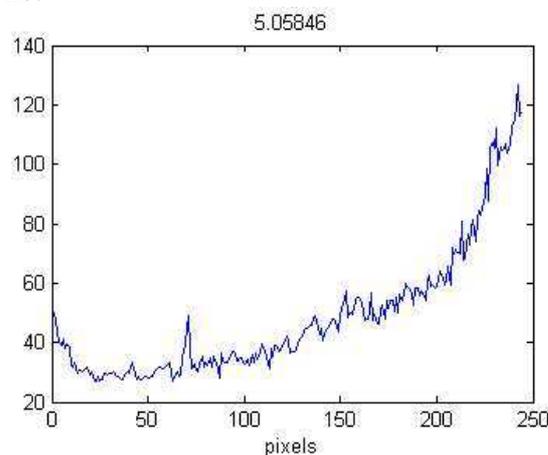


Figure III-5 : profil du faisceau atténué

La décroissance de l'intensité lumineuse en fonction de la distance parcourue s'écrit :

$$\frac{I(x)}{I_0} = e^{-\alpha x} \quad \text{avec } \alpha \text{ en cm}^{-1}$$

D'où l'atténuation :

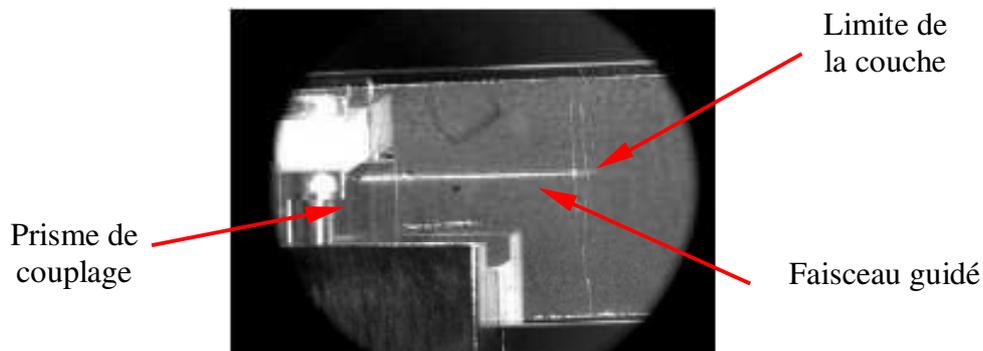
$$\alpha = 10 \log_{10} \left( \frac{I(x)}{I_0} \right) \quad \text{avec } \alpha \text{ en dB/cm}$$

### III.4.2. Atténuation des guides d'ondes

L'atténuation a été mesurée sur des couches guidantes (400% massique de  $\text{LiIO}_3$  et filtrées à 0.45  $\mu\text{m}$ ) en fonction de la température, du temps de recuit et du pourcentage massique de iodate de lithium.

Les valeurs sont présentées dans le tableau III-6.

- Sans recuit des couches



L'atténuation est quasiment nulle, de l'ordre du dB/cm lorsque la couche n'a pas subi de recuit.

➤ Pour une température de recuit de 180°C :

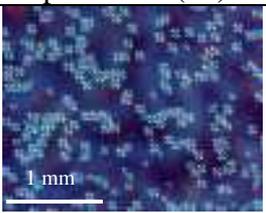
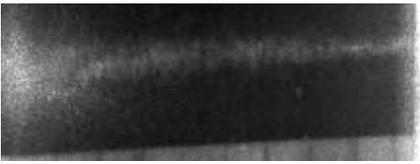
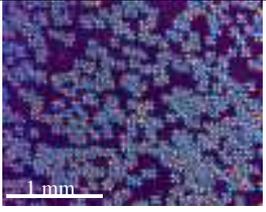
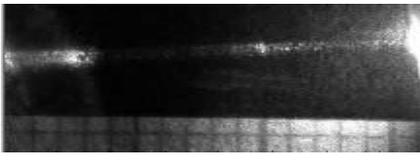
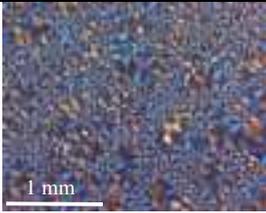
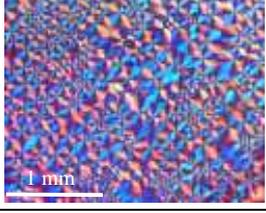
Temps de recuit	Atténuation en dB/cm	Image correspondante	Image en lumière polarisée (x5)
30 minutes	0.7		
1 heure	4		
5 heures	10		
1 jour	Non mesurable		

Tableau III-6 : Mesure d'atténuation des guides en fonction du temps de recuit à 180°C

A cette température (180°C), la cinétique de croissance des sphérulites est suffisamment lente pour observer l'atténuation du faisceau en fonction de la quantité des domaines cristallisés. Au bout de 30 minutes, l'atténuation du guide est relativement faible, de l'ordre de 0.7 dB/cm. Après 1 heure, elle est approximativement de 4 dB/cm. Cette perte est probablement provoquée par une cristallisation plus avancée de la couche. Ce phénomène se confirme lorsque celle-ci est restée 5 heures à 180°C. Pratiquement toute la surface du guide est cristallisée et on mesure une forte atténuation, d'environ de 10 dB/cm.

On peut donc affirmer que l'augmentation de la proportion de la surface cristallisée, en relation avec le temps de recuit, conduit à une forte atténuation du guide d'onde. Cette augmentation est sûrement liée à la diffusion des nanocristaux et/ou à la formation de défauts dans la couche telles que des fissures. Pour un recuit d'une journée, l'atténuation n'est pas mesurable car la couche est dégradée. Cela confirme la nécessité de limiter le temps de recuit à la seule cristallisation de la couche.

➤ Pour une température de recuit de 200°C :

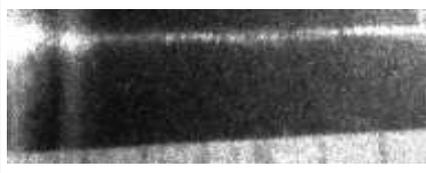
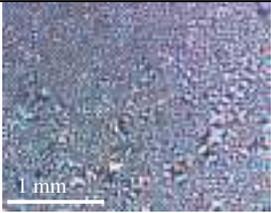
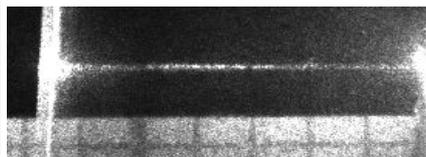
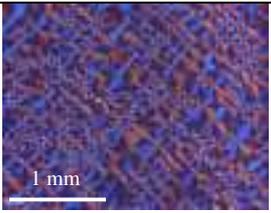
Temps de recuit	Atténuation en dB/cm	Image correspondante	Image en lumière polarisée (x5)
30 minutes	9		
5 heures	9		

Tableau III-8 : Mesure d'atténuation des guides en fonction du temps de recuit à 200°C

On remarque que l'atténuation est identique (9 dB /cm) à 30 minutes et à 5 heures à la température de 200°C. En effet, la couche guidante cristallise rapidement sur toute sa surface. La taille des domaines (0.1 mm) n'évolue plus dès que le processus de cristallisation est terminé. Cette mesure d'atténuation reste compliquée car les lignes noires sont difficiles à observer, parfois non visibles, sans doute à cause d'une forte cristallisation sur la couche qui empêche la lumière de se propager dans le guide.

Les résultats des mesures d'atténuation dépendent de l'élaboration du guide d'onde. En effet, on constate que la propagation du faisceau diminue lorsque la proportion de la surface cristallisée est importante, c'est à dire lorsque la température de recuit est élevée. Mais dans notre étude, la taille des domaines ne dépassaient pas 0.2 mm. Le faisceau est sûrement atténué par la présence de nombreuses interfaces des domaines dans le guide. Pour cela, une mesure d'atténuation sur des domaines de 4 à 5mm serait nécessaire pour mieux comprendre ce phénomène de propagation.

### III.5. Conclusion

L'étude par la spectroscopie des lignes noires nous permet d'obtenir une multitude d'informations sur les propriétés optiques des guides d'ondes. Une couche guidante dont l'épaisseur est de l'ordre de 0.8  $\mu$ m est idéal pour connaître expérimentalement les caractéristiques du guide. Les mesures d'atténuation nous ont permis d'affiner le procédé d'élaboration du procédé. En effet, une température ou un temps de recuit trop élevée, conduisant à des petits domaines, ne donne pas à priori des atténuations faibles, c'est-à-dire de l'ordre du dB/cm.

# CONCLUSION

Le LAIMAN s'est orienté sur les matériaux nanocomposites pour l'optique non linéaire. L'iodate de lithium ( $\text{LiIO}_3$ ), un cristal connu pour ses propriétés optiques non linéaires, est inséré dans une matrice inorganique, la Laponite, afin de réaliser des guides d'ondes. Les objectifs de ce travail ont été d'étudier systématiquement les différents paramètres du procédé d'élaboration afin d'améliorer la reproductibilité ainsi que les propriétés optiques des guides réalisés.

Les premiers résultats d'une longue étude montrent que l'ajout d'un acide ou d'une base à la solution Laponite / Iodate lithium désoriente les cristaux de  $\text{LiIO}_3$  dans les domaines cristallisés et/ou provoque la formation d'autres composés peu intéressants pour l'optique non linéaire. Au point de vue du recuit, nécessaire à la cristallisation et à la croissance des cristaux de  $\text{LiIO}_3$ , une durée prolongée ou bien une température trop élevée conduit à la dégradation des qualités optiques du guide (transparence). Une température comprise entre 200 et 210°C pendant une durée de quelques minutes permet d'obtenir des guides avec des bonnes qualités optiques.

La spectroscopie des lignes noires (m-lines) nous a permis de déterminer l'épaisseur d'une monocouche, environ 0.8  $\mu\text{m}$ , et son indice, de l'ordre de 1.68. De plus, cette méthode donne une indication sur l'atténuation des guides, paramètre très important pour des applications. Nous avons remarqué que l'augmentation de la température ou du temps de recuit favorise la cristallisation de petits domaines (0.02mm) et une forte atténuation, de l'ordre de 10dB/cm à cause des nombreuses interfaces. L'objectif des prochaines analyses sera de poursuivre la caractérisation sur des guides d'ondes dont la taille des domaines cristallisés serait de l'ordre du mm afin de mieux limiter l'atténuation.

D'un point de vue général, ce stage m'a permis de découvrir le monde de la Recherche où coopèrent chercheurs, techniciens, stagiaires, etc ; mais aussi les différentes méthodes d'analyse et de raisonnement. Pendant ces 5 mois, j'ai pu mettre en application les connaissances apprises lors de mon cursus à l'Université de La Rochelle et apprendre des techniques nouvelles telles que la spectroscopie des lignes noires. Ainsi ce stage m'a permis de compléter ma formation et de renforcer mon intérêt dans le domaine des matériaux.

# BIBLIOGRAPHIE

- [1] C. Rosso Giraud-sauveur, Elaboration et caractérisation de l'iodate de lithium ( $\text{LiIO}_3$ ) pour l'optique guidée, Thèse, Université de Savoie.
- [2] J. Teyssier, Elaboration de guides d'ondes pour des applications en optique non-linéaire : développement de nanocomposites inorganiques, Thèse, Université de Savoie, 2004.
- [3] J. Teyssier, R. Le Dantec, C. Galez, J. Bouillot, Characterization of planar waveguides obtained by proton exchange in lithium iodate, *Optical Materials*, 22, 2003, p.391–396
- [4] Y. Mugnier, Caractérisation des phénomènes de transport dans les cristaux d'iodate de lithium ( $\text{LiIO}_3$ ) pour la modification de leurs propriétés optiques, Thèse, Université de Savoie, 2000.
- [5] J. Teyssier, R. Le Dantec, C. Galez, Y. Mugnier, J. Bouillot, J-C. Plenet,  $\text{LiIO}_3$  nanocrystals in  $\text{SiO}_2$  xerogels, a new material for non-linear optics, *Proceedings of the SPIE, The International Society for Optical Engineering*. vol. 5222, 2003, p.26-34.
- [6] J. Teyssier, R. Le Dantec, C. Galez, J. Bouillot, Y. Mugnier, J-C. Plenet,  $\text{LiIO}_3/\text{SiO}_2$  nanocomposite for quadratic non-linear optical applications, *Journal of Non-crystalline solids*, 2004.
- [7] J. Teyssier, R. Le Dantec, C. Galez, J. Bouillot, Y. Mugnier, J-C. Plenet, Lithium iodate nanocrystals in Laponite matrix for non-linear optical applications, *Applied physics letters*, 2004
- [8] C. Le Luyer et al., A thick sol-gel inorganic layer for optical planar waveguides applications, *Optical materials* 18, 2001, p.211-217.
- [9] J. Crettez, E. Coquet, J. Pannetier, J. bouillot, M. D. L. Floch, Neutron structure refinement of gamma- an beta-lithium iodate : comparison between  $\alpha$ ,  $\gamma$  and  $\beta$  phases, *Journal of Solid State Chemistry* 56 (2), 1985, p.133–147.
- [10] E. Coquet, J. Crettez, J. Pannetier, J. Bouillot, J. Damien, Effect of temperature on interatomic distances in pyroelectric  $\alpha$ - $\text{LiIO}_3$ , *Acta. Cryst.* B39, 1983, p.408–413.
- [11] S. Kutolin, L. Belova, R. Samoiloa, O. Kotenko, I. Dokuchaeva, Optical and physiochemical properties of single crystals of  $\alpha$ - $\text{LiIO}_3$ , *Izv Akad. Nauk SSSR* 11 (5), 1973, p.862–865.
- [12] C. Svensson, J. Albertsson, R. Liminga, A. Kvik, S. Abrahams, Structural temperature dependance in  $\alpha$ - $\text{LiIO}_3$  : Neutron and x-ray study between 20 and 500k, *J.Chem. Physics* 78 (12), 1983, p.7343–7352.
- [13] Schulz H., the structure of beta- $\text{LiIO}_3$ , *Acta Cryst.* B29, 1973, p.2285.



# ANNEXES

Annexes 1 : Théorie des guides d'ondes planaires

Annexes 2 : Température et temps de recuit

Annexes 3 : pH du sol de Laponite / Iodate de lithium

Annexes 4 : Diffraction des RX sur les couches guidantes

# Annexes 1

## Théorie des guides d'ondes planaires

### 1. Définition d'un guide d'ondes

Le guide d'ondes plan en couche est un film diélectrique. Ce guide optique va permettre de confiner et de guider la lumière. On suppose ici que la lumière guidée est cohérente et monochromatique et que les guides d'ondes sont des milieux diélectriques isotropes et sans perte. Le guide, couche mince d'indice  $n_f$ , est inséré entre un substrat d'indice  $n_s < n_f$  et un revêtement supérieur d'indice  $n_c < n_f$  ( $n_f > n_s > n_c$ ). Parfois l'air joue le rôle du revêtement supérieur et  $n_c = 1$ . Cette différence d'indices permet d'expliquer la propagation de la lumière dans le guide.

Différents types de guides sont présentés sur la figure I-1.

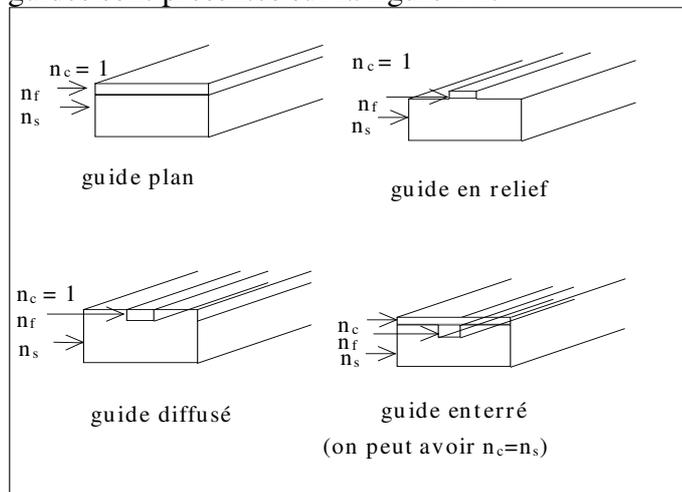


Figure I-1 : Différents types de guides d'ondes

### 2. Caractéristiques des guides à saut d'indice

Pour comprendre simplement la propagation de la lumière dans un guide, prenons le cas du rayon lumineux dans un guide à deux dimensions comme illustré sur la figure I-2 :

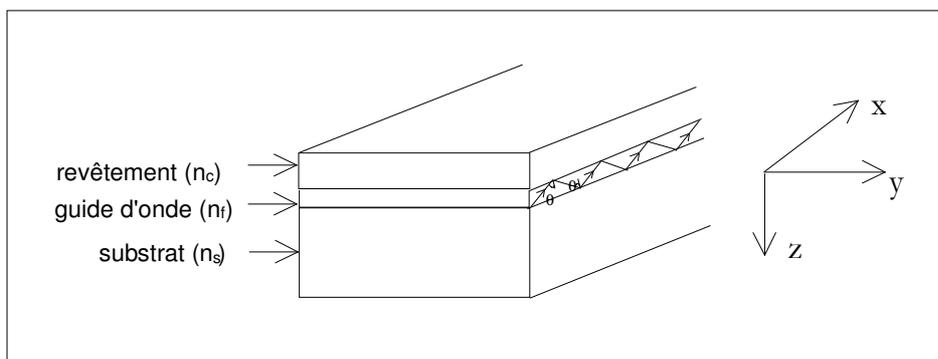


Figure I-2 : Structure générale d'un guide d'ondes

Soit une onde se propageant dans le guide et faisant un angle  $\theta$  avec la normale à l'interface du guide. Les angles de réflexion critiques donnés par la relation de Descartes aux interfaces supérieure et inférieure sont :

$$\theta_c = \text{Arc sin}\left(\frac{n_c}{n_f}\right)$$

$$\theta_s = \text{Arc sin}\left(\frac{n_s}{n_f}\right)$$

La lumière est représentée comme se propageant en zigzag dans la couche guidante, avec des réflexions totales aux interfaces de la couche.

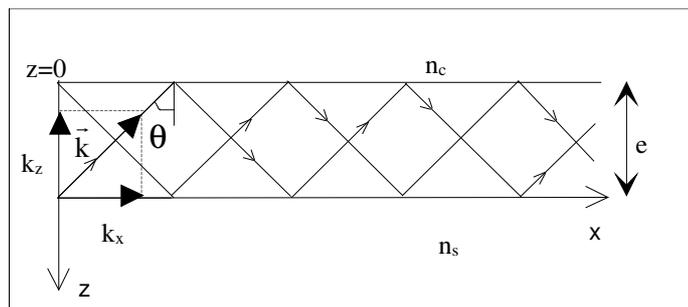


Figure I-3: Schéma de propagation dans un guide à deux dimensions

Les ondes qui se propagent dans le guide sont monochromatiques et cohérentes, de pulsation  $\omega$ , de longueur d'onde dans le vide  $\lambda_0$ , et de vecteur d'onde  $\vec{k}$  dans la direction normale à la surface d'onde et dont la valeur absolue est :

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_f = k_0 n_f = \frac{\omega}{v_f}$$

avec  $\vec{k}_0$  vecteur d'onde dans le vide  
 $\lambda$  longueur d'onde dans le guide  
 $v_f$  vitesse de propagation dans le guide

### 3. Modèle simplifié des guides

Si  $e$  désigne l'épaisseur du guide, on peut écrire dans l'hypothèse, en général incorrecte, où le déphasage à la réflexion est égale à 0 ou  $\pi$  :

$$e = (m + 1) \frac{\lambda_z}{2} \quad \text{avec } m \text{ entier}$$

et 
$$k_z = \frac{2\pi}{\lambda_z}$$

On obtient alors :

$$ek_z = (m+1)\pi$$

soit 
$$\cos \theta = (m+1) \frac{\pi}{e.k_0.n_f} = (m+1) \frac{\lambda_0}{2.e.n_f}$$

Les indices effectifs  $n_m$  des modes sont définis par :

$$n_m = n_f \sin \theta = n_f \sqrt{1 - (m+1)^2 \left( \frac{\pi}{k_0 \cdot e \cdot n_f} \right)^2} = n_f \sqrt{1 - (m+1)^2 \left( \frac{\lambda}{2en_f} \right)^2}$$

où  $m=0$  correspond au premier guidé.

## **Annexes 2**

## Annexes 2

### TEMPERATURE ET TEMPS DE RECUIT

400% m  $\text{LiIO}_3$   
pH = 7-8

30 minutes



X 5

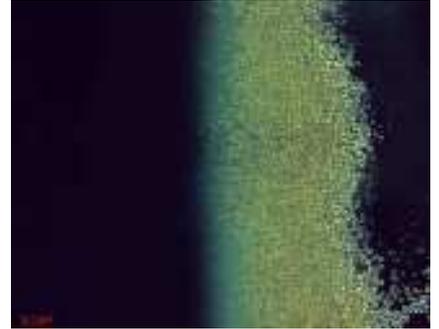
150°C

4 jours



X 5

1 semaine



X 5

180°C

2 heures



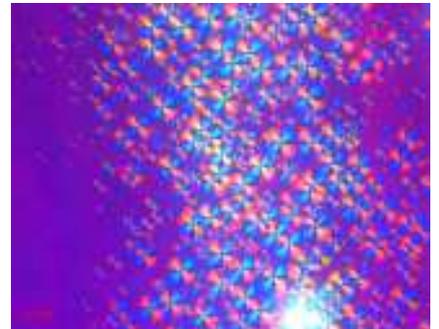
X 20

24 heures



X 5

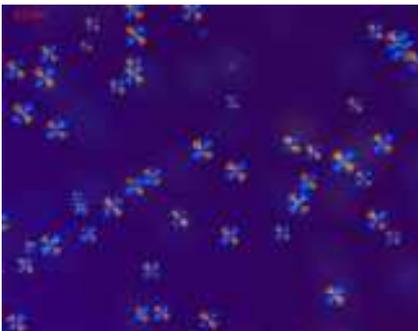
4 jours



X 5

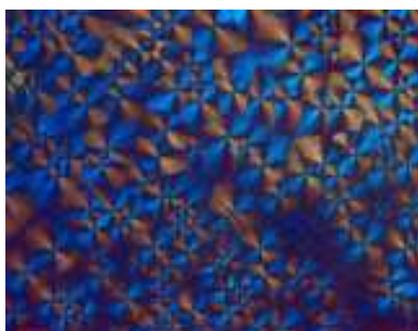
210°C

30 minutes



X 5

2 heures



X 5

4 jours



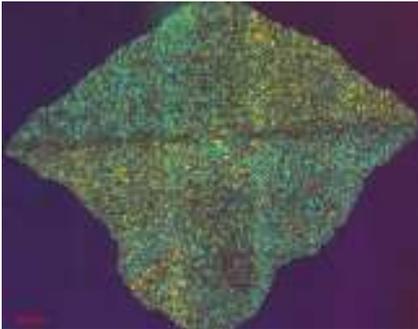
X 5 taille 2 à 3 mm

# Annexes 3

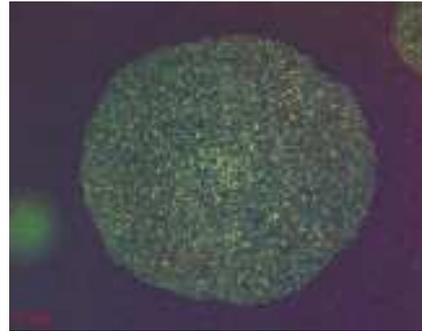
## pH de la solution Laponite / Iodate de lithium

400% LiIO<sub>3</sub>  
3 jours  
Filtre 1,2 μm

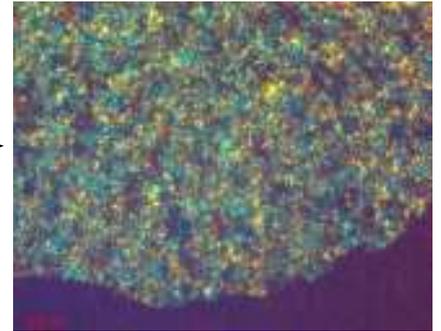
pH = 3.8



X 5



X5

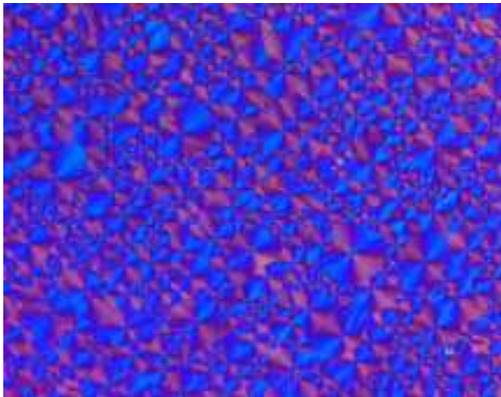


X 20

pH = 5,05

Filtre 0,45 μm

X 5



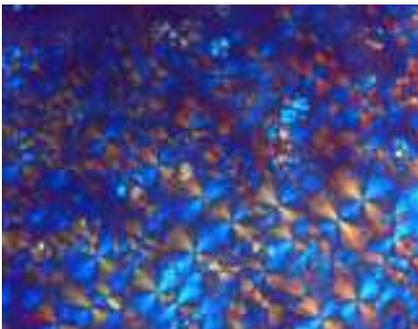
X 50



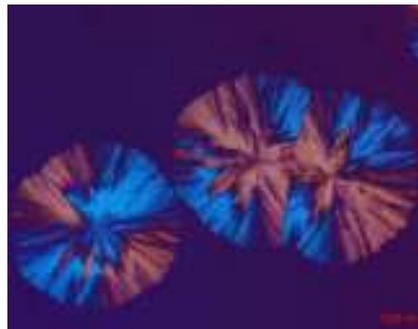
pH = 11,7

Filtre 0,45 μm

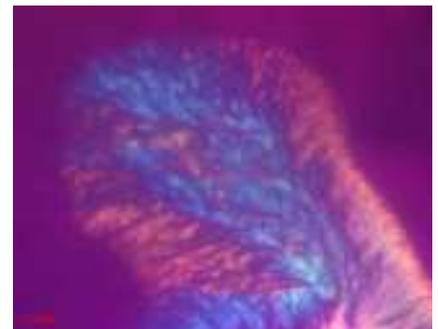
X 5



X 20



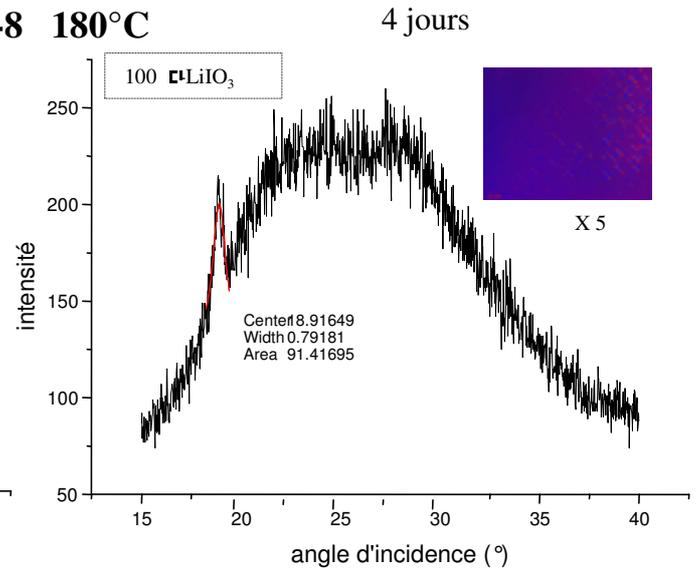
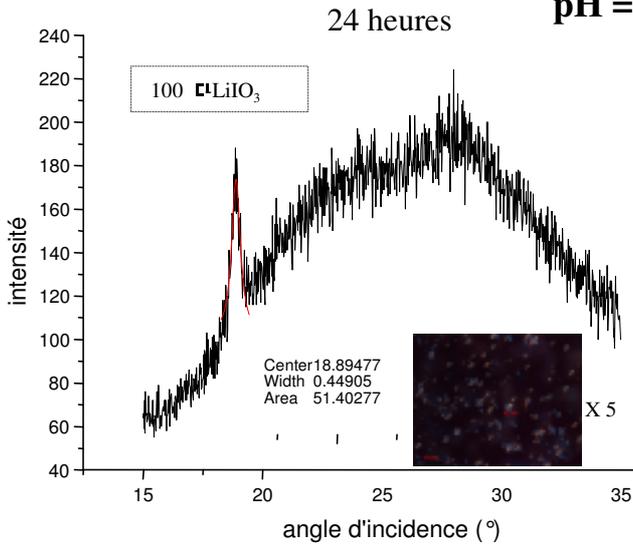
X 5



# Annexes 4

## Diffraction des RX sur les couches guidantes

Temps de recuit à  
pH = 7-8 180°C



pH à 180°C durant 3 jours

