



Mise en œuvre et étude des techniques d'intégration de matériaux organiques en vue de la réalisation d'un modulateur électro-optique

Sylvain LE TACON

30 novembre 2007

Membres du jury :

André MOLITON, Université de Limoges

Didier DECOSTER, Université de Lille 1

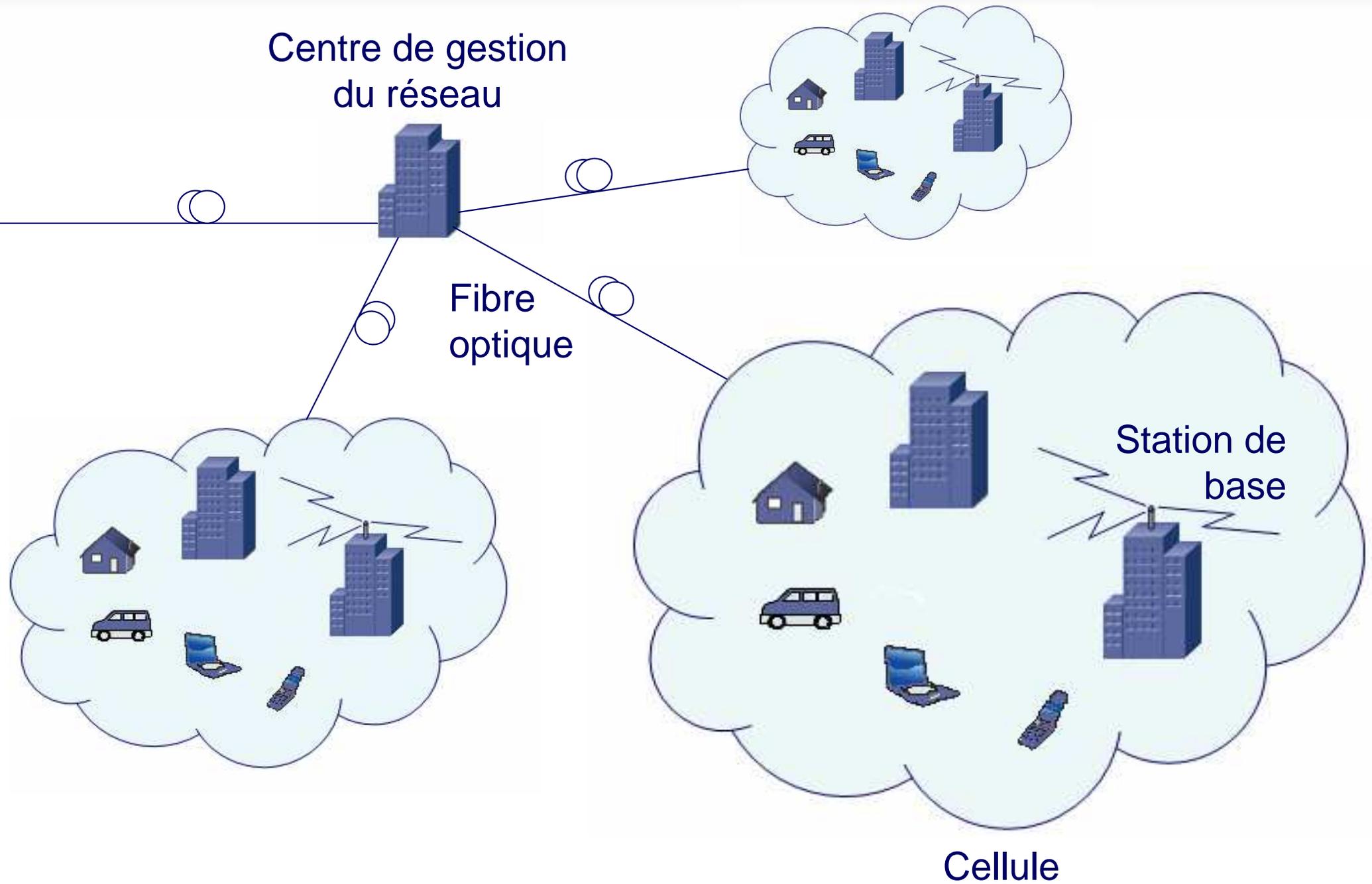
Christian BERGAUD, Université de Toulouse 3

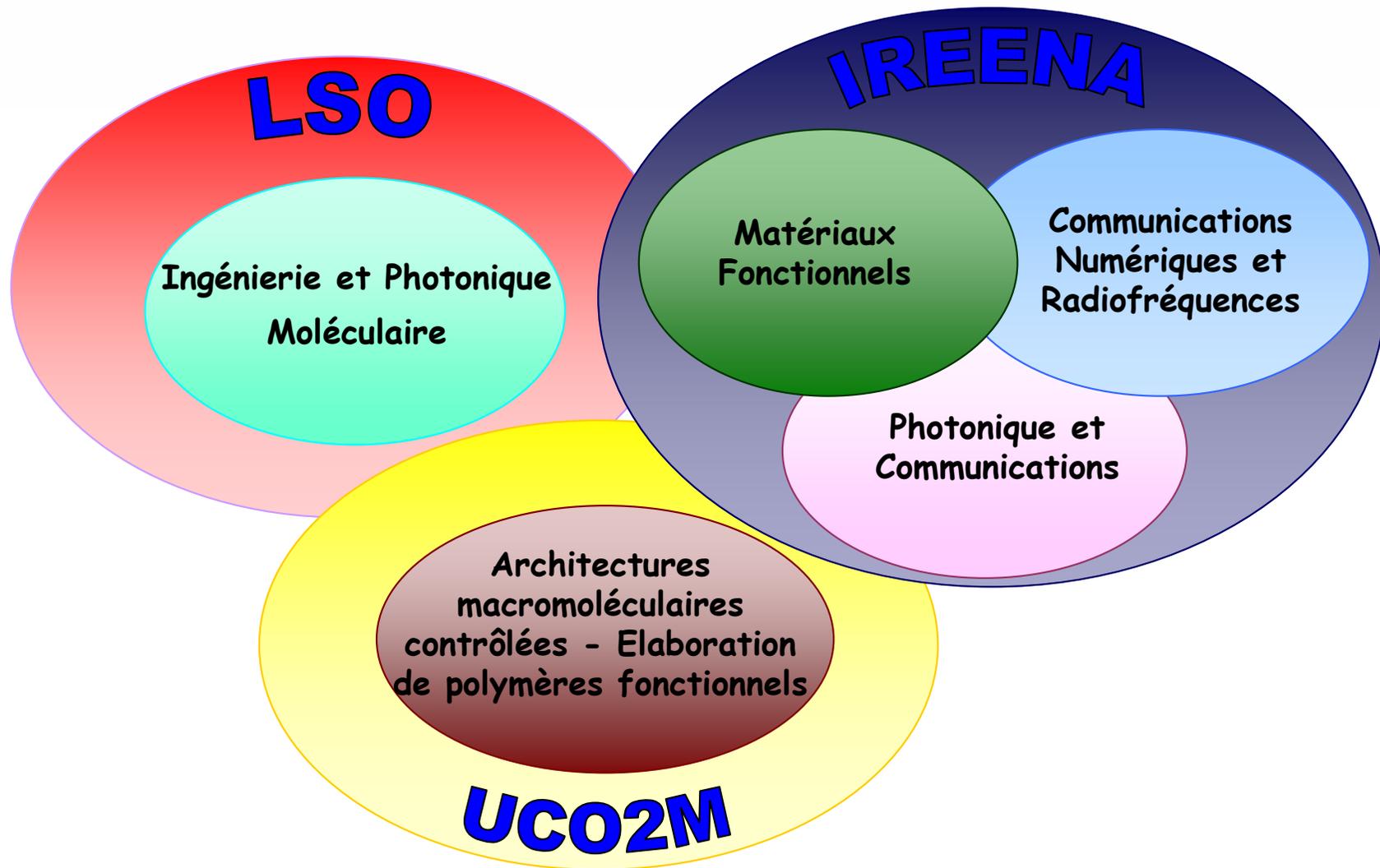
Dominique BOSCH, Université de Rennes 1

Fabrice ODOBEL, Université de Nantes

Hartmut GUNDEL, Université de Nantes

Réseaux Télécoms Hybrides Fibre Radio

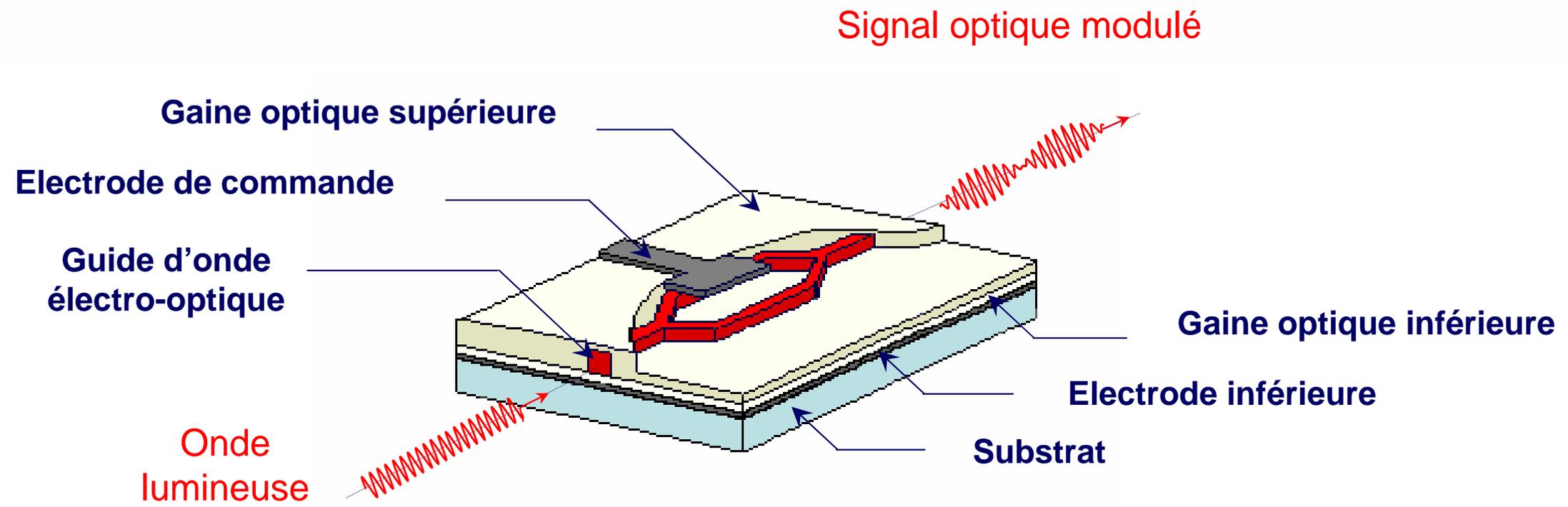




Objectif :

Développer des matériaux organiques aux propriétés électro-optiques stables visant des applications de conversion d'un signal hyperfréquence en signal optique guidé

Modulateur électro-optique d'amplitude



Effet Pockels

$$\Delta n = \frac{n^3}{2} r_{33} \frac{V(t)}{d} \Gamma$$

Déphasage

$$\Delta \phi = \frac{2\pi L}{\lambda_0} \Delta n = \frac{\pi}{V_\pi} V(t)$$

Tension demi-onde

$$V_\pi = \frac{\lambda_0 d}{n^3 r_{33} L \Gamma}$$

Caractéristiques à 1,3 μm [2]	Niobate de Lithium	Polymères électro-optiques
Coefficient électro-optique r_{33} (pm/V)	30	> 100
Bande passante (GHz)	40	> 100
Tension demi-onde V_{π} (V/cm)	5 – 6	1 – 2

Avantages des polymères :

Coefficients électro-optiques élevés, large bande passante, faible température de mise en œuvre.

Inconvénients des polymères :

Mauvaise stabilité dans le temps des propriétés électro-optiques, intégration délicate à maîtriser.

- I. Mise en forme et caractérisations du polymère**
- II. Intégration par photolithogravure**
- III. Intégration par lithographie d'impression**
- IV. Conclusion & Perspectives**

I. Mise en forme et caractérisations du polymère

I.1 Description du matériau

I.2 Dépôt en couches minces

I.3 Orientation et réticulation du matériau

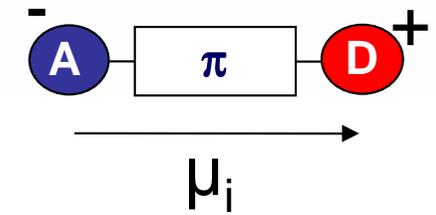
I.4 Génération de seconde harmonique

II. Intégration par photolithogravure

III. Intégration par lithographie d'impression

IV. Conclusion & Perspectives

Chromophore : Molécule à transfert de charge intramoléculaire



$$\mu_i = \epsilon_0 (\alpha E_j + \beta E_j \cdot E_k + \gamma E_j \cdot E_k \cdot E_l + \dots)$$

Moment dipolaire induit d'une molécule sous un champ électrique E de **FORTE** intensité



Modification de l'indice de réfraction (Pockels, Kerr)

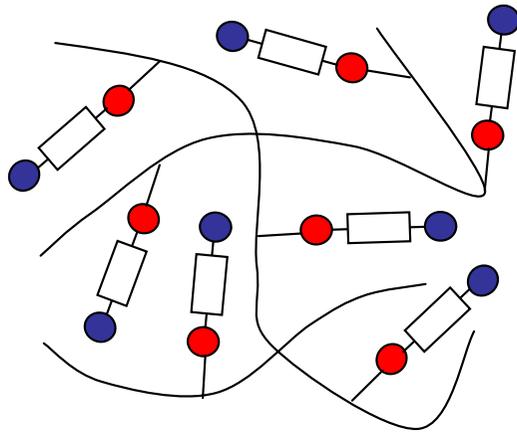
Génération d'harmoniques (SHG, THG)

$$P_i = \epsilon_0 (\chi^{(1)} E_j + \chi^{(2)} E_j \cdot E_k + \chi^{(3)} E_j \cdot E_k \cdot E_l + \dots)$$

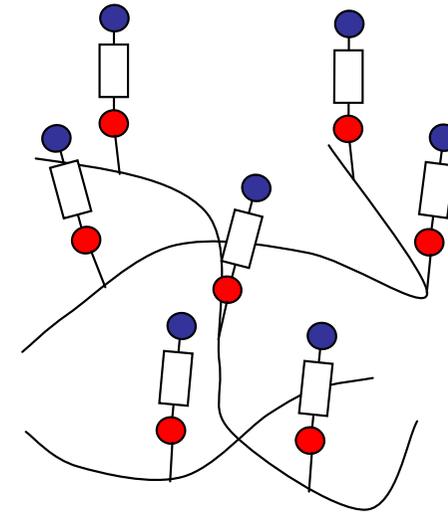
Polarisation induite d'un matériau actif en ONL



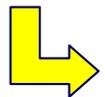
Chromophores greffés à une matrice amorphe



Orientation aléatoire des chromophores
 $\chi^{(2)} = 0$

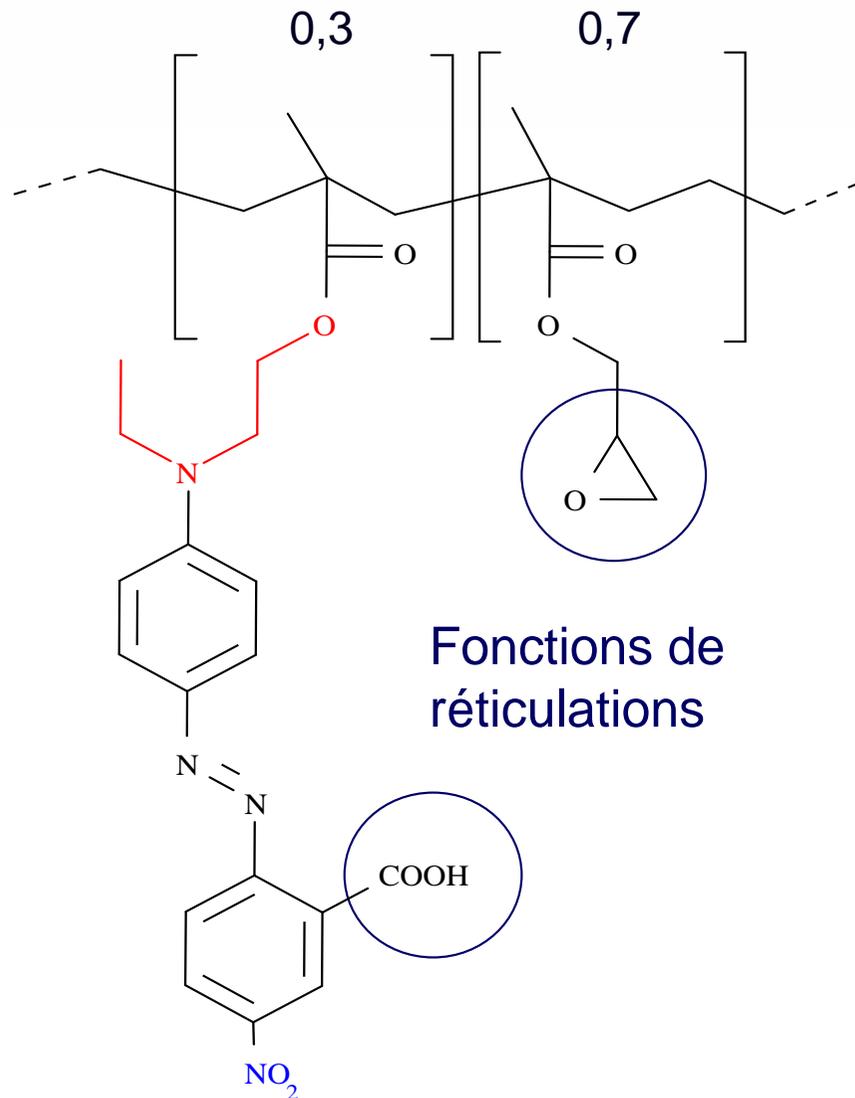


Chromophores orientés
 $\chi^{(2)} \neq 0$



Stabilisation de l'orientation :

- Matrice à haute température de transition vitreuse
- Matrice et chromophores avec des fonctions de réticulations



Polymère (PIII) à chromophores greffés et réticulables [3][4] :

Matrice : méthacrylate de glycidyle (GMA)

Chromophores : *disperse red one* (DR1)

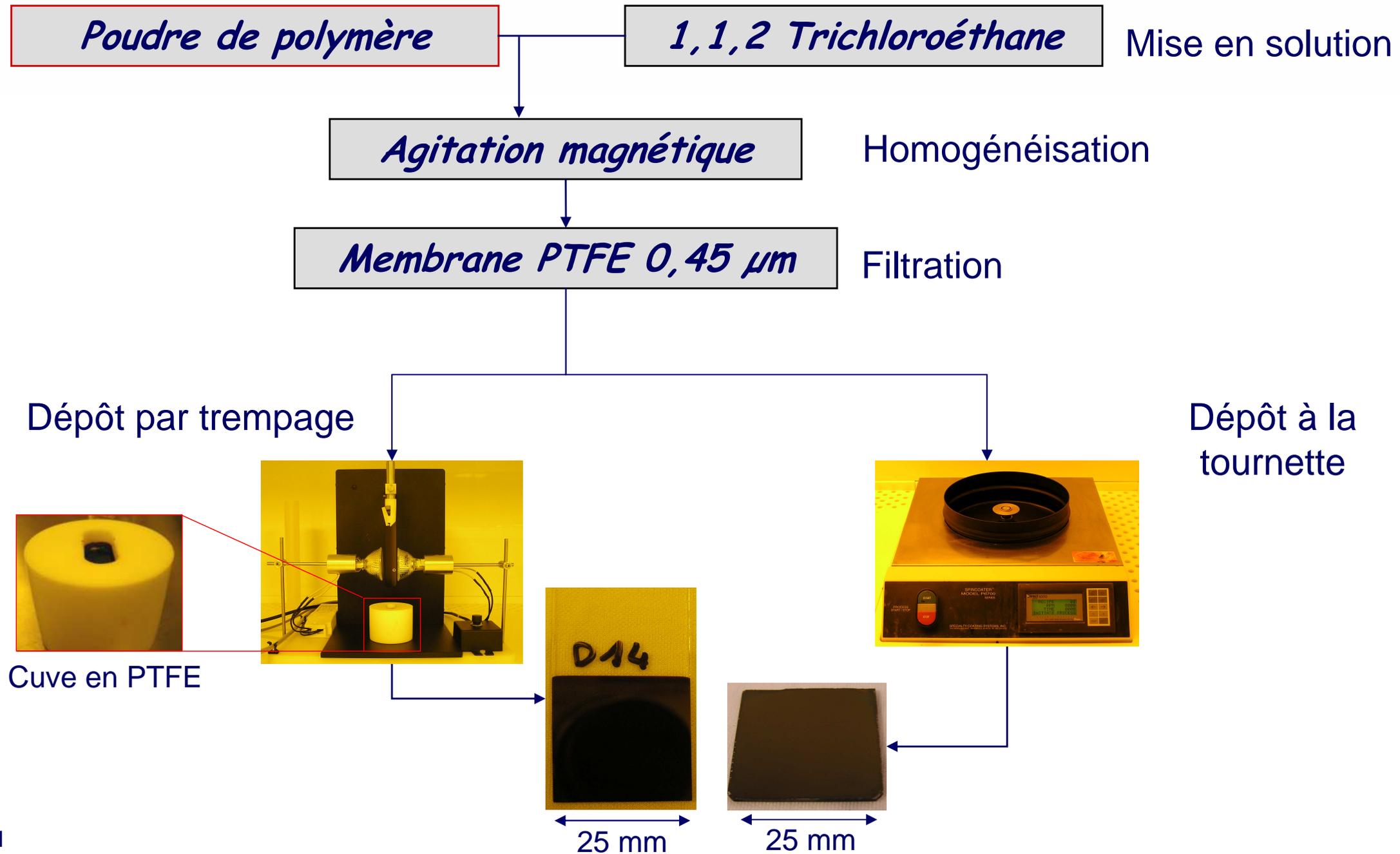
Température de transition vitreuse (T_g) :
T_g ~ 80°C

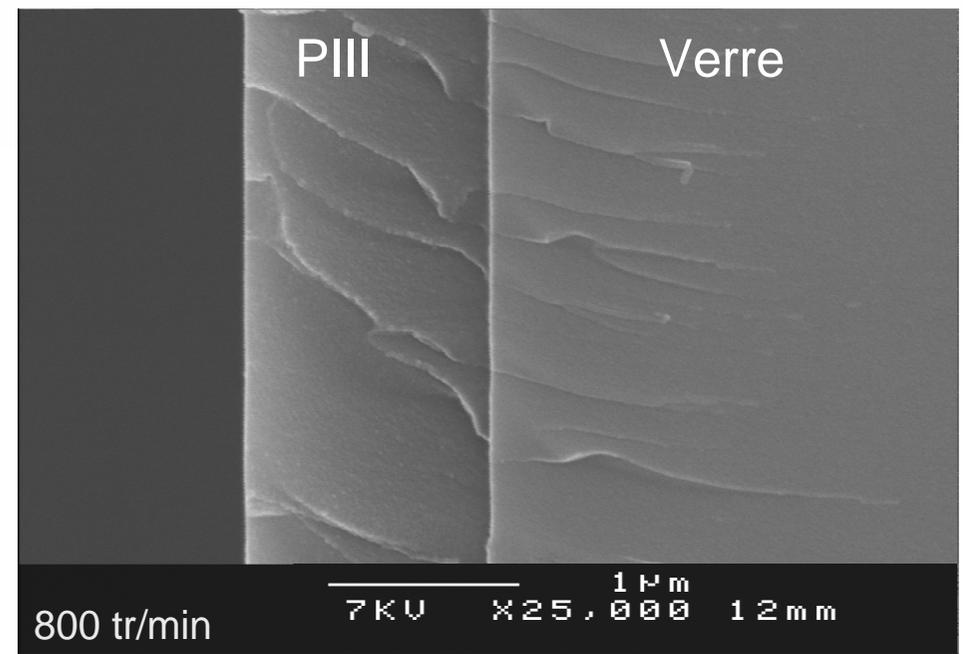
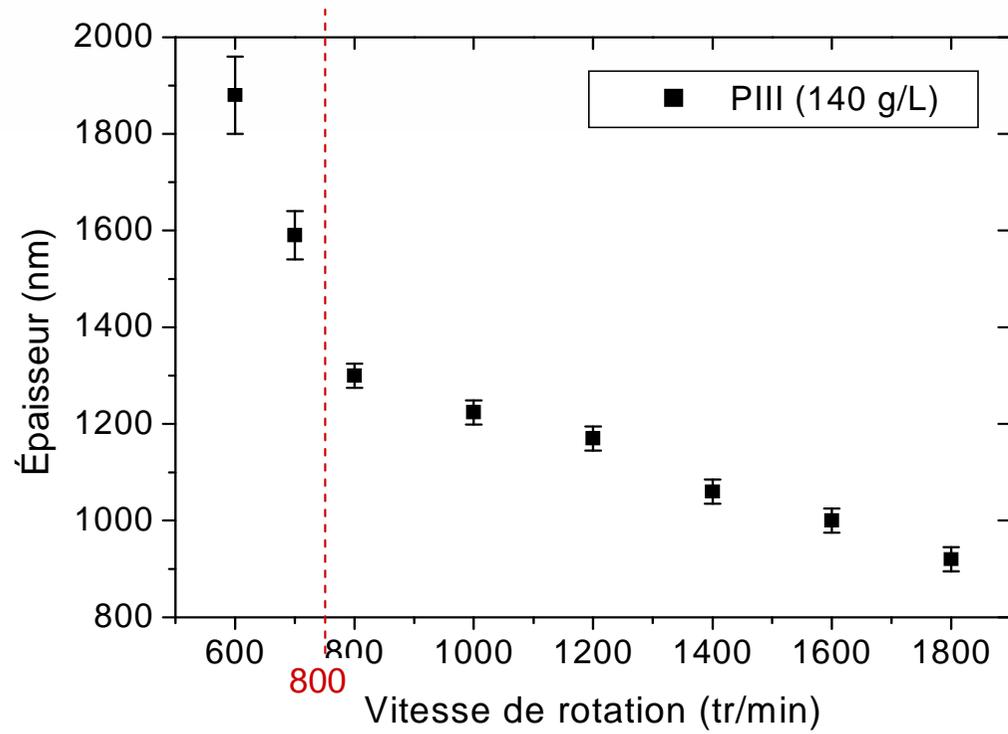
Température de réticulation (T_r) :
T_r ~ 140°C

Coefficient électro-optique :
r₃₃ ~ 12 pm/V à 1320 nm [3]

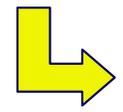
* Synthétisé au LSO

[3] D. Bosc, *Optical Materials*, 13(2), 205-209, 1999
[4] C. Monnereau, thèse de doctorat, Université de Nantes 2005

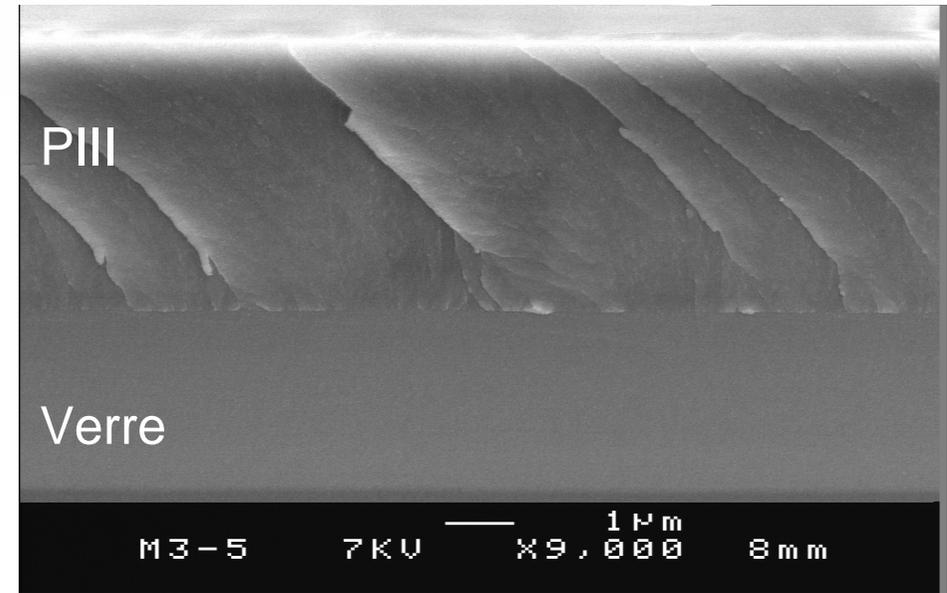
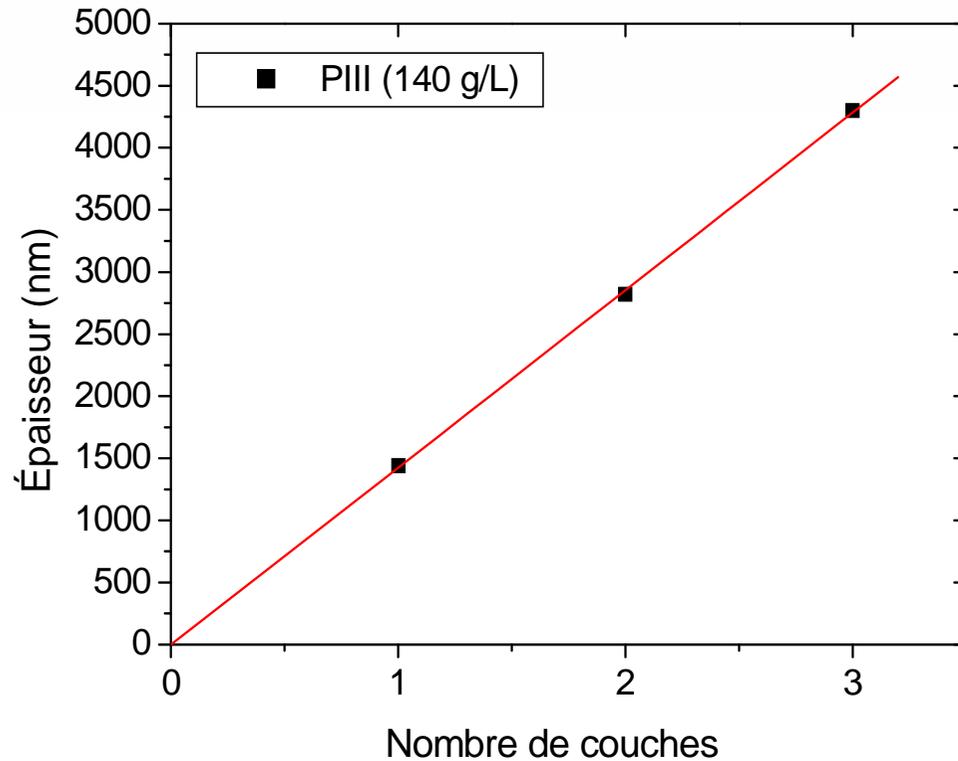




Monocouche d'épaisseur uniforme maximale de l'ordre de 1,3 µm



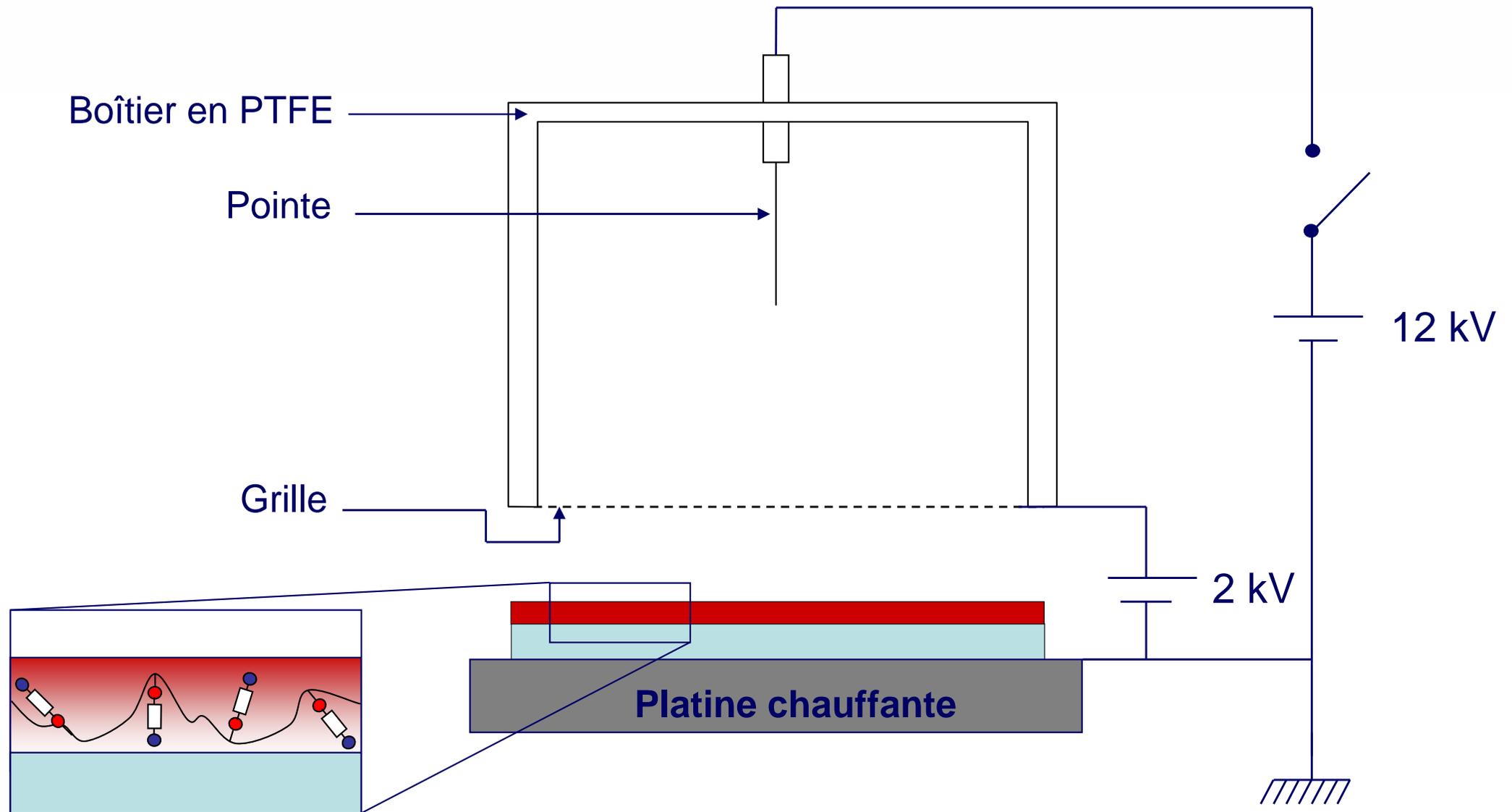
Multicouches d'épaisseur non uniforme

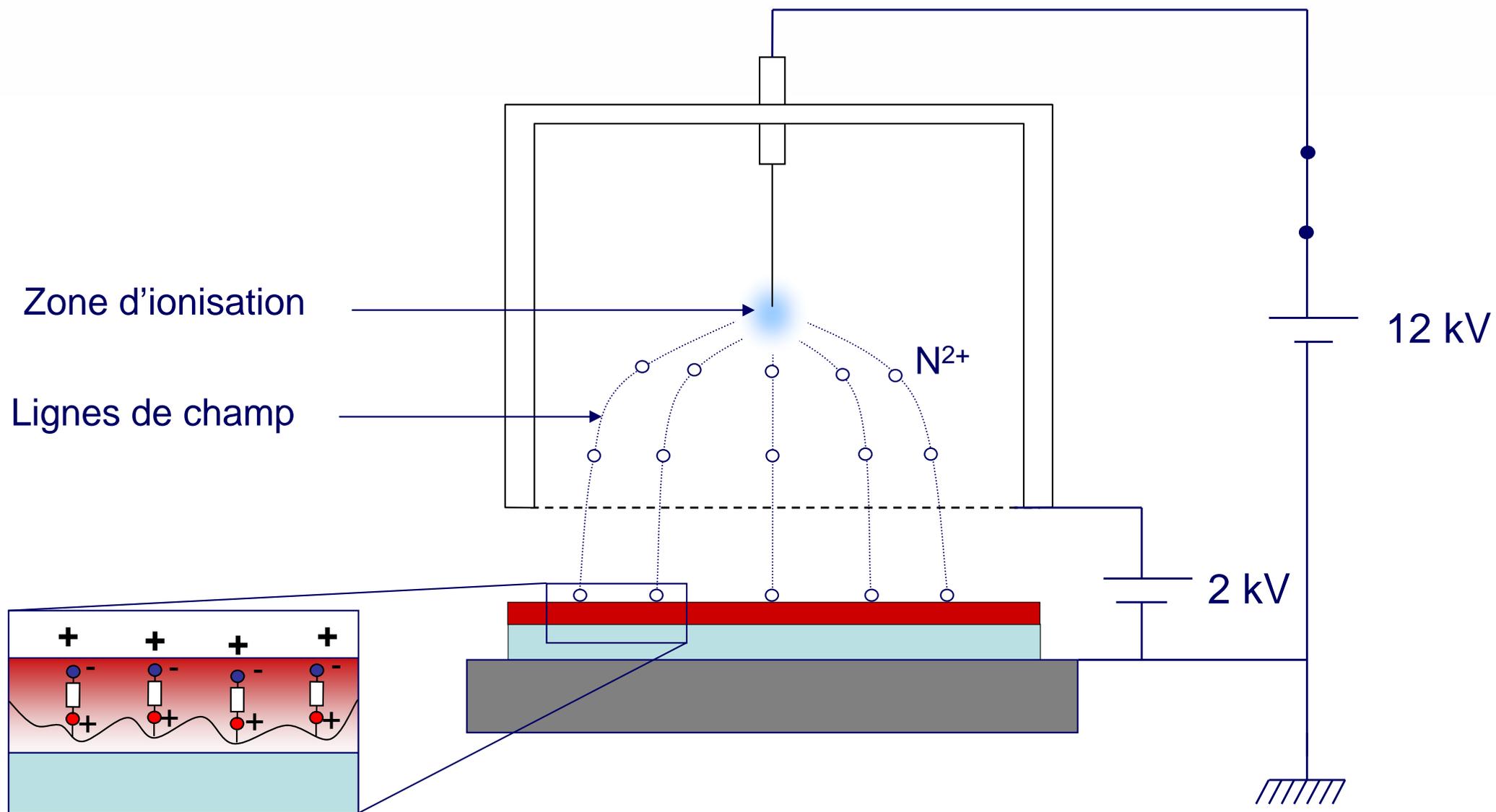


Tricouche PIII/Verre

↳ L'épaisseur des films est le multiple de celle d'un dépôt monocouche

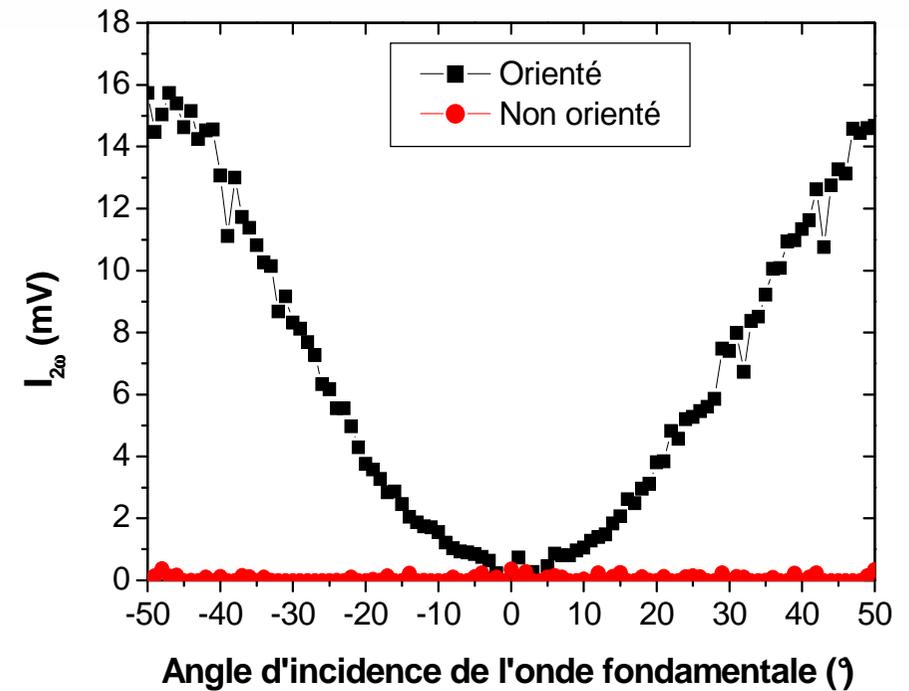
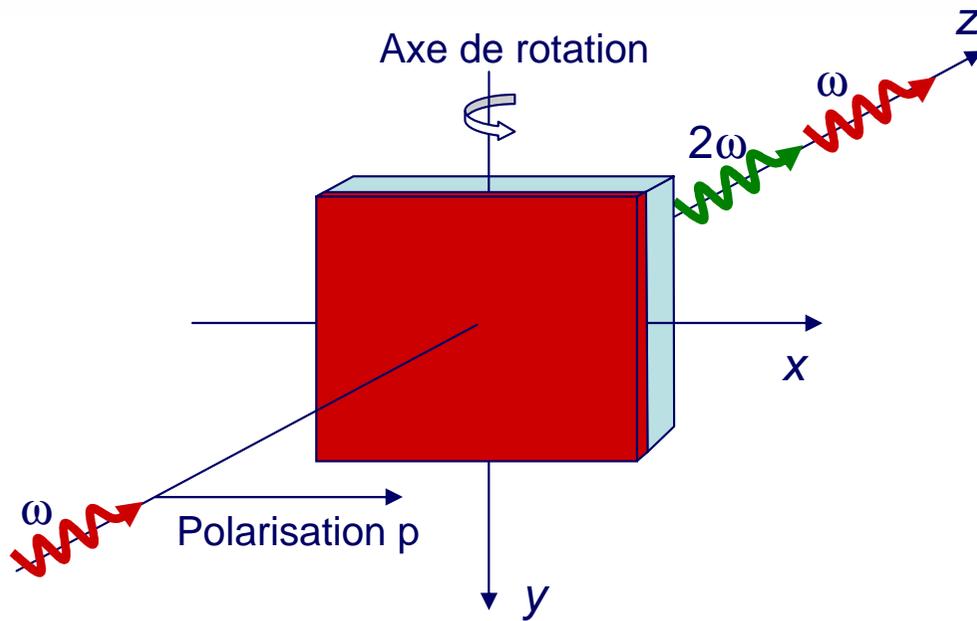
↳ Pas d'interface visible entre les couches de PIII



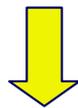
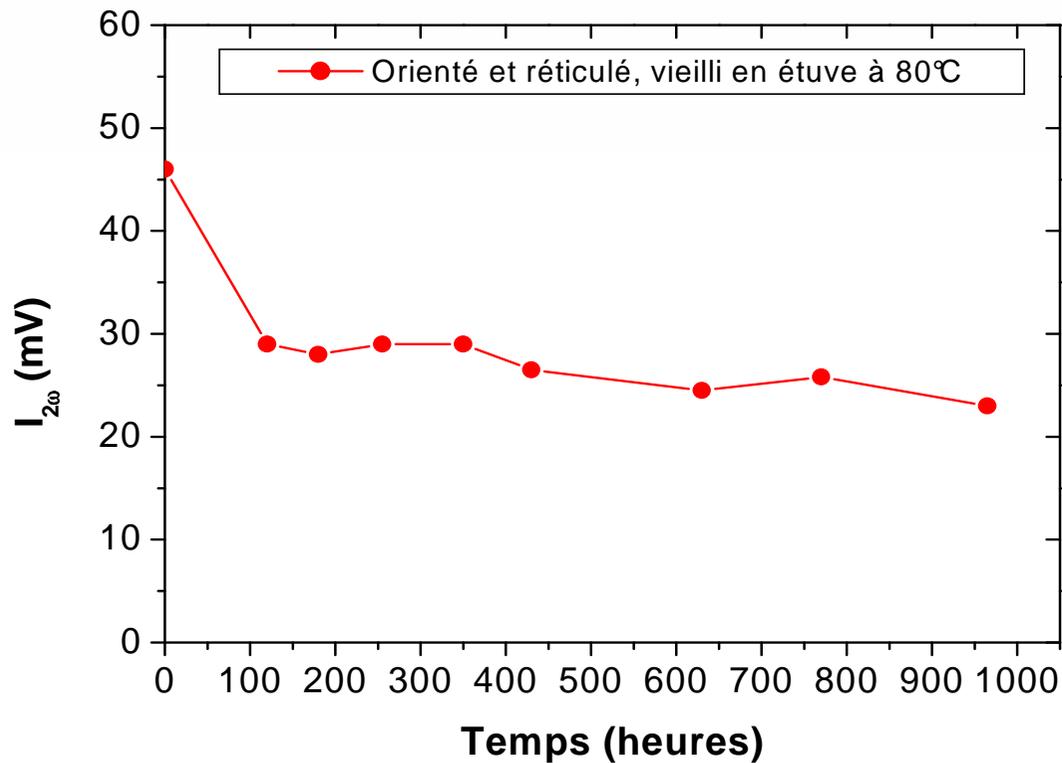


Orientation pendant 20 min à 100°C

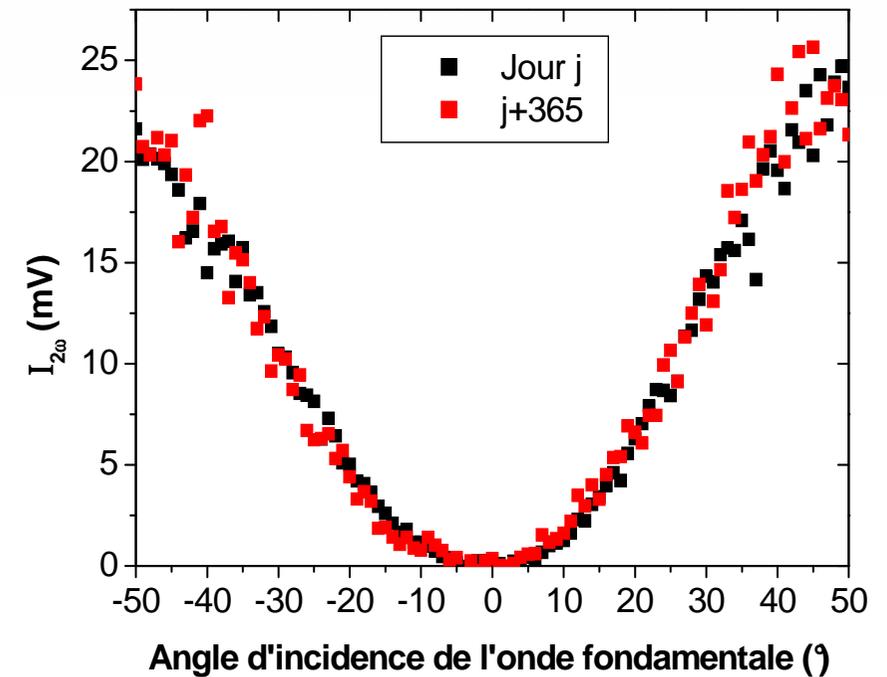
Réticulation pendant 10 min à 180°C



$$I_{2\omega} \propto \frac{2}{c\epsilon_0} \frac{AT}{n_2^2 \cos^2(\theta_2)} \left(\frac{2\pi d}{\lambda} \right)^2 I_{\omega} \chi_{33}^{(2)}$$



Conservation d'environ 60% du signal de SHG quand le matériau est réticulé



Tenue du signal de SHG sur un an

I. Mise en forme et caractérisations du polymère

II. **Intégration par photolithogravure**

II.1 Design d'une structure monomode

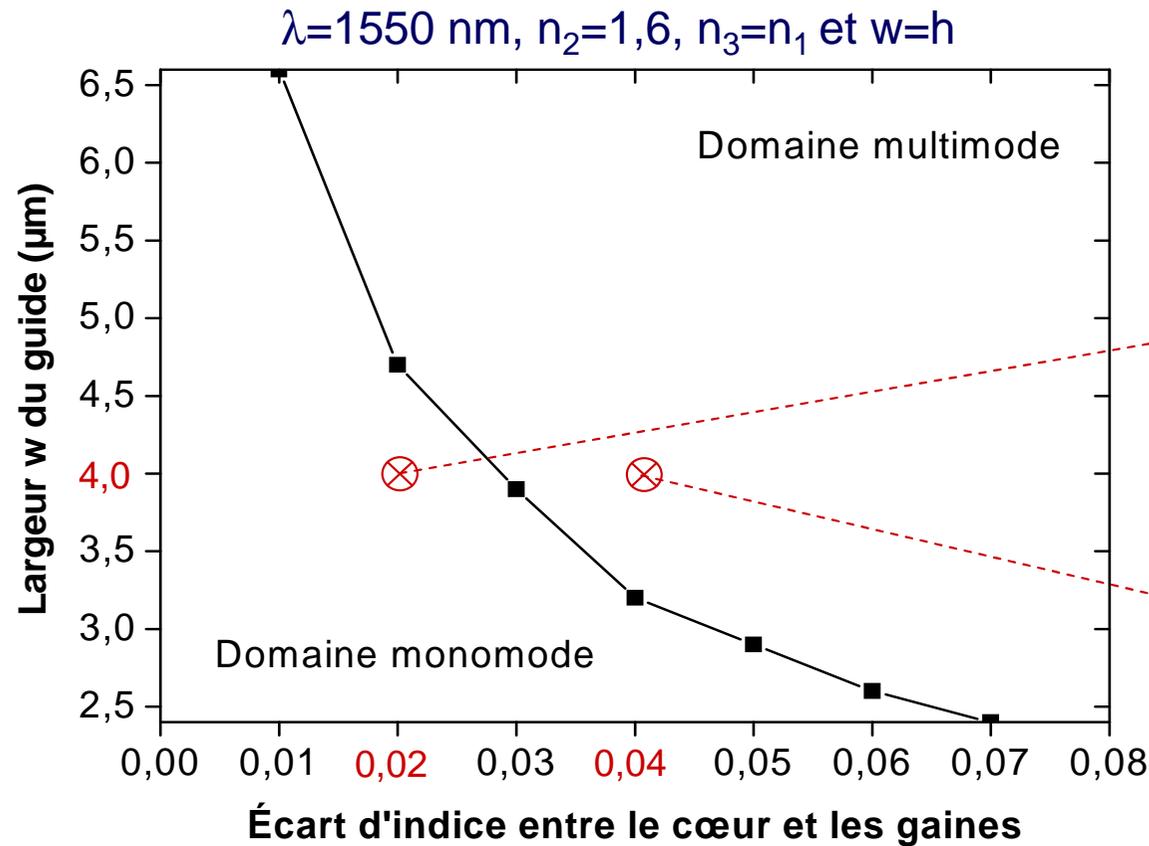
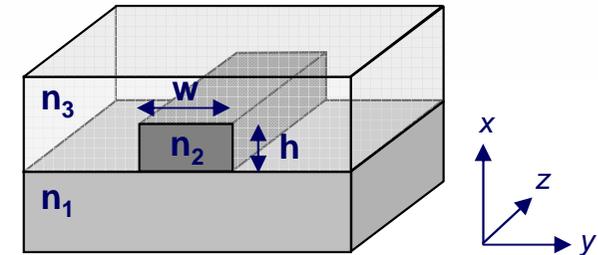
II.2 Structuration par gravure sèche

II.3 Caractérisations optiques

III. Intégration par lithographie d'impression

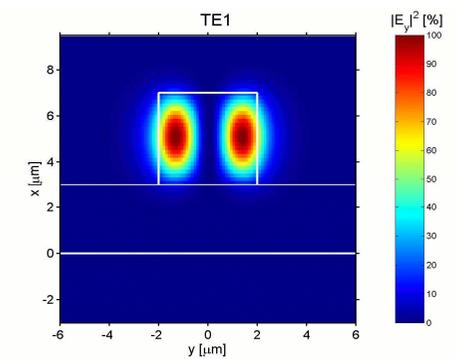
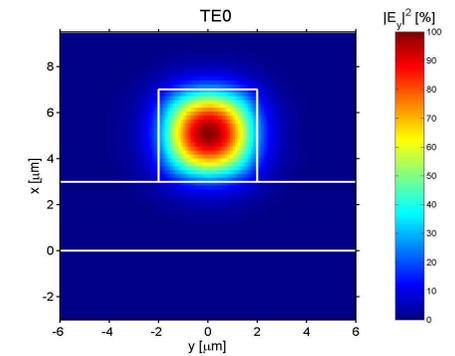
IV. Conclusion & Perspectives

Propagation lumineuse par réflexion totale aux interfaces ($n_2 > n_1$ et n_3)

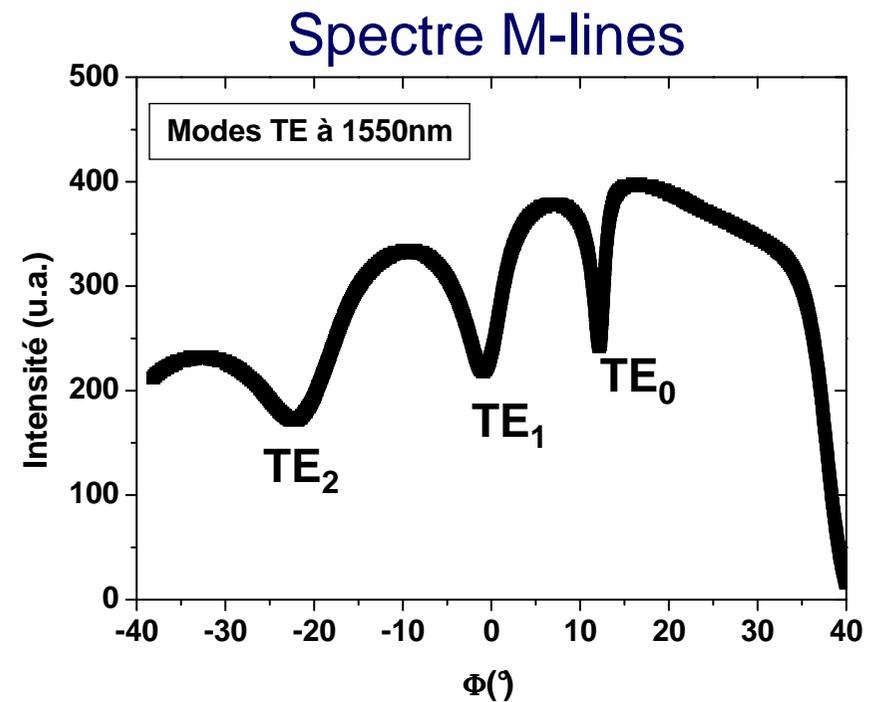
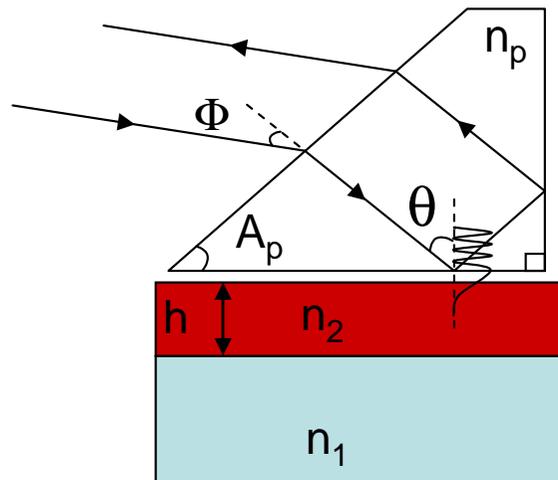


monomode

multimode



Excitation sélective des modes guidés par couplage à l'aide d'un prisme



Indice effectif du mode guidé :

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

λ (nm)	n_{TE}	n_{TM}	Biréfringence
1300	1,603	1,639	0,04
1550	1,599	1,627	0,03

* Collaboration avec J. Cardin (KTH)

Critères de choix :

- Ecart d'indice avec le PIII (Δn de quelques 10^{-2})
- Transparent dans l'infrarouge
- Epaisseur de l'ordre de $3 \mu\text{m}$ pour éviter les fuites du mode
- Compatibilité avec le procédé de mise en forme et d'intégration du PIII

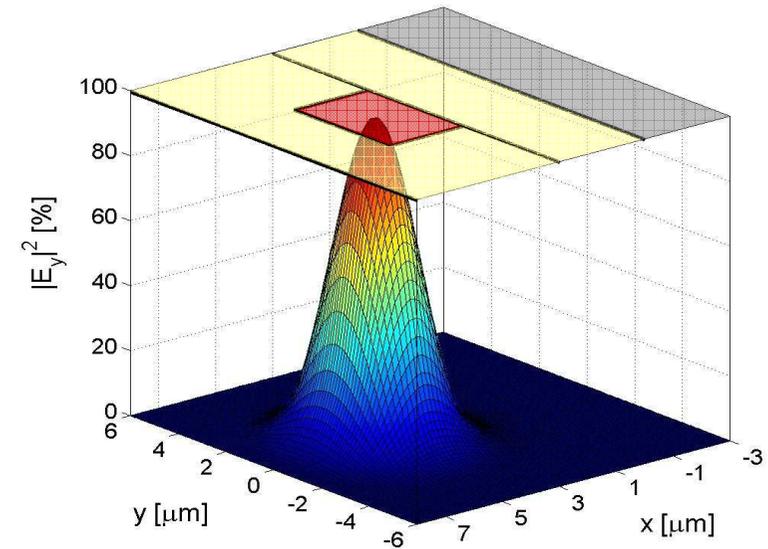
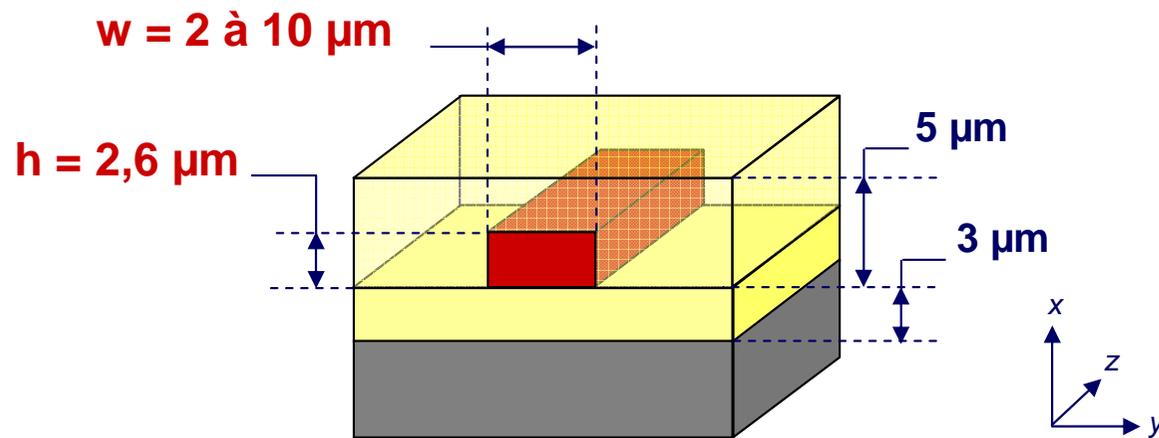
Résine SU-8

$n=1,575$ à 1550 nm , réticulable sous UV, stabilité thermique $> 200^\circ\text{C}$

Résine S1818

$n=1,61$ à 1550 nm , thermodurcissable, stabilité thermique $> 180^\circ\text{C}$

Simulations numériques avec h fixe et w variable



$W = 4 \mu\text{m}$

PIII $n_{\text{TE}} = 1,60$
 $n_{\text{TM}} = 1,63$

Guidage monomode à 1550 nm

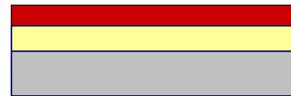
SU-8

Mode	$\Delta n (10^{-2})$	$W_{\text{MAX}} (\mu\text{m})$
TE	2,5	5
TM	5,5	2

S1818

Mode	$\Delta n (10^{-2})$	$W_{\text{MAX}} (\mu\text{m})$
TE	-0,1	-
TM	2	6

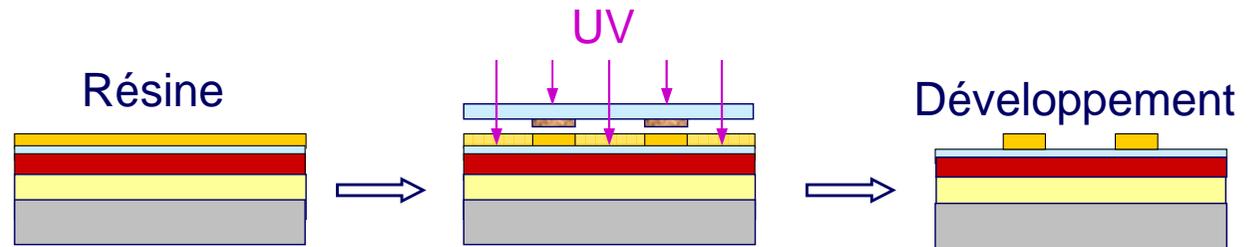
Gaine inférieure et PIII



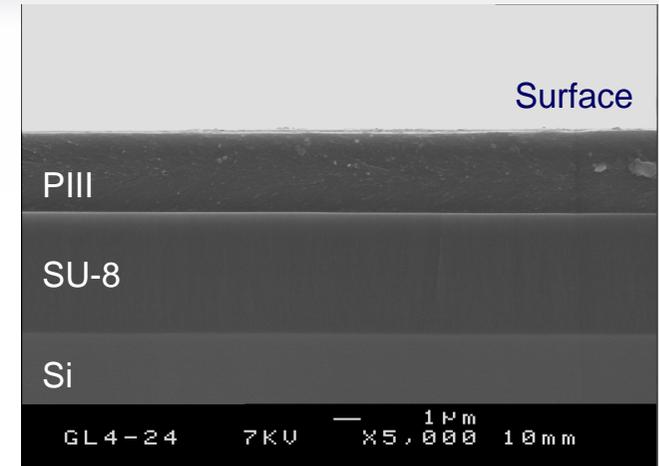
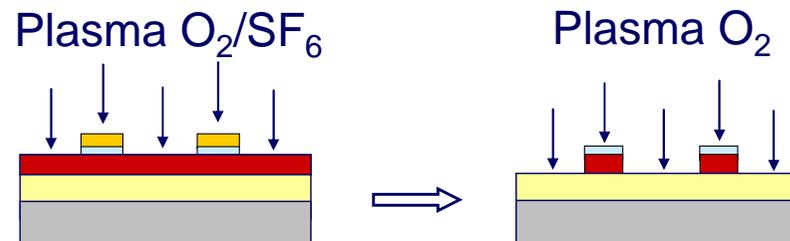
Masquage



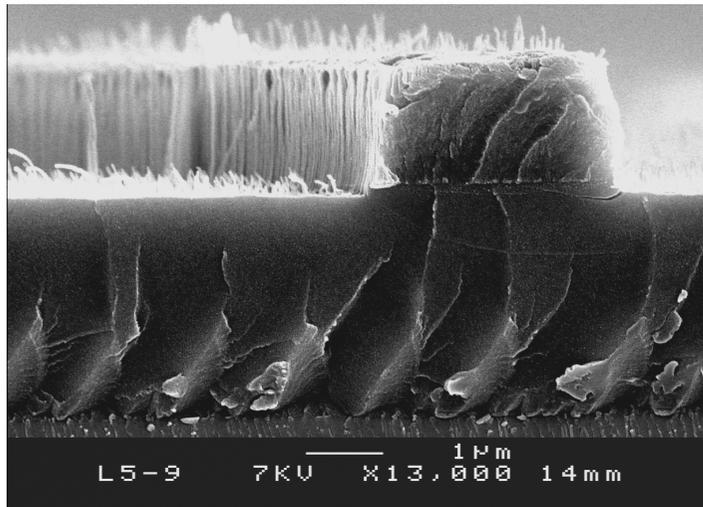
Photolithographie



Gravure ionique réactive



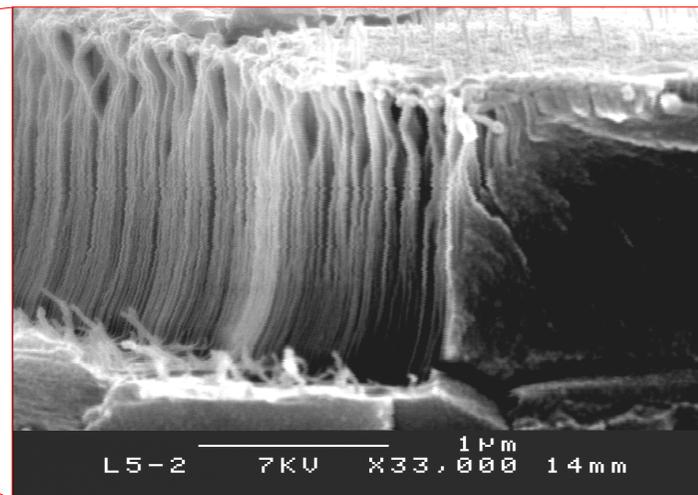
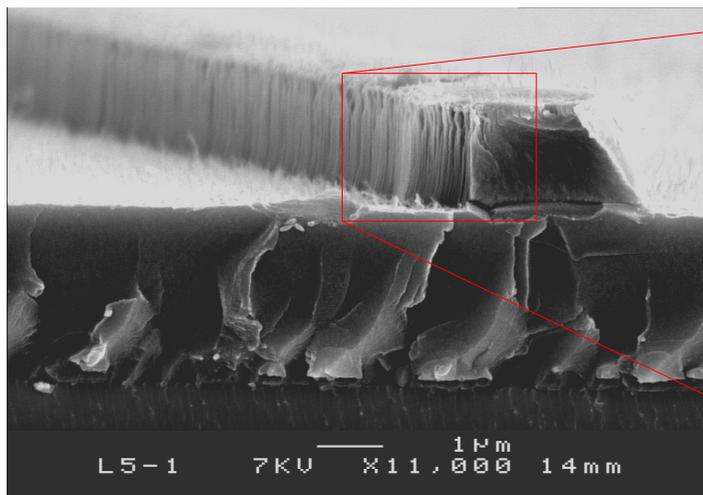
Gravure à une étape



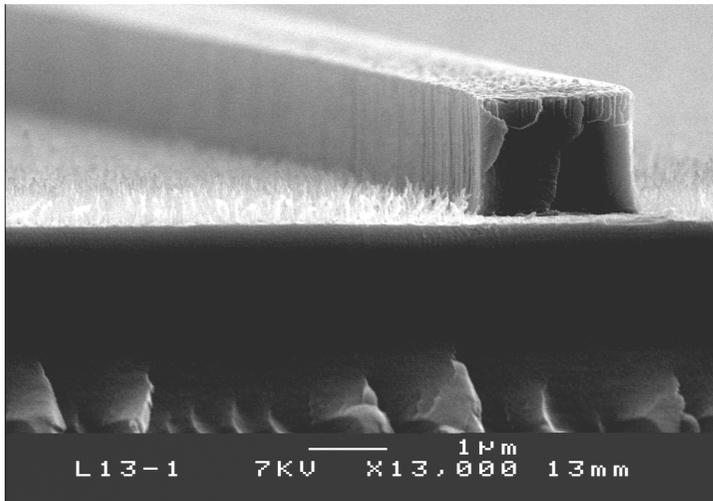
Gravure anisotrope

Vitesse de gravure $\sim 0,3 \mu\text{m}/\text{min}$

Rugosité importante sur les flancs des guides



Gravure en plusieurs étapes de 2 min

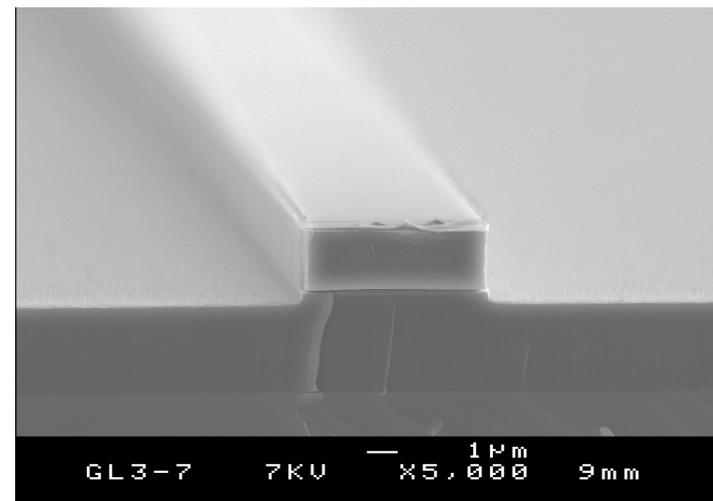
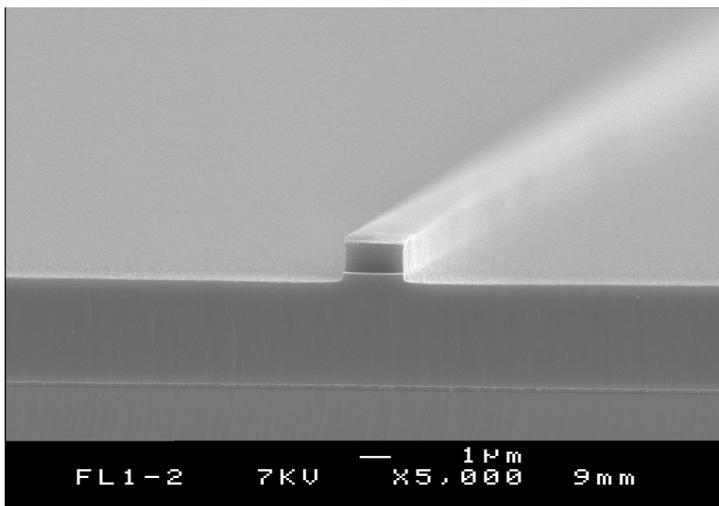


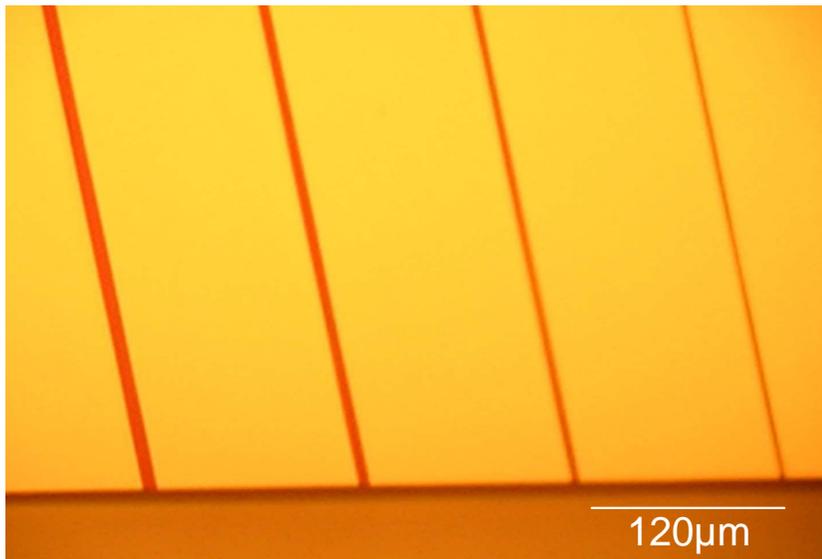
Gravure anisotrope

Vitesse de gravure $\sim 0,2 \mu\text{m}/\text{min}$

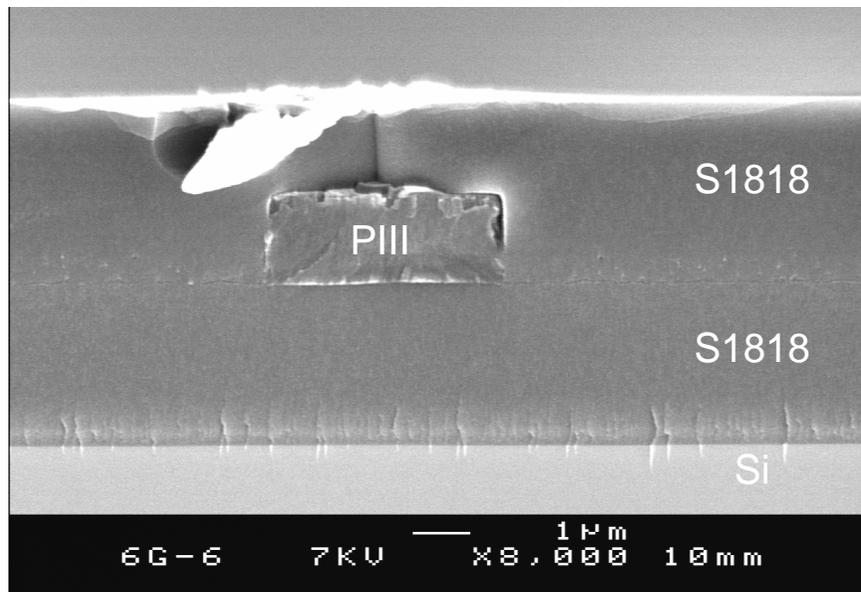
Profils rectilignes des guides

Faible rugosité sur les flancs de guides

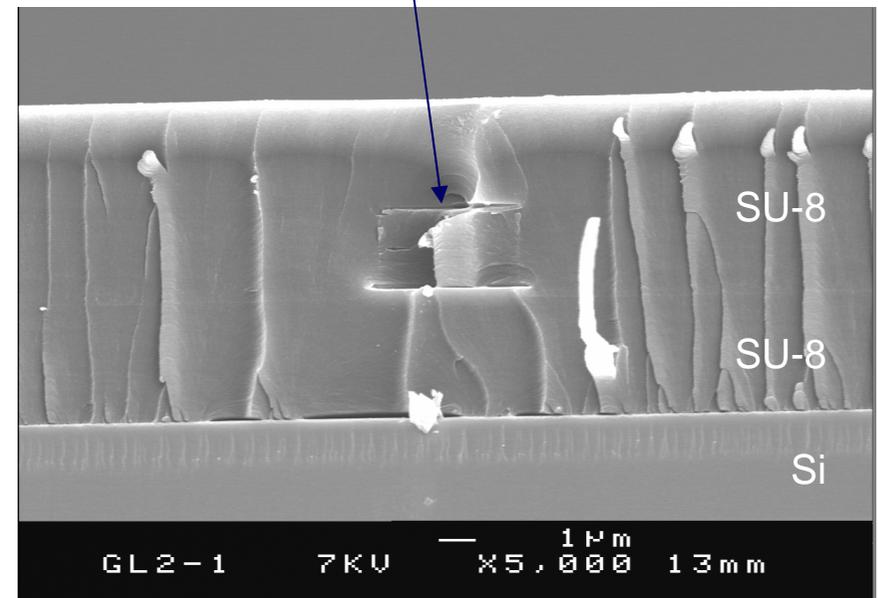


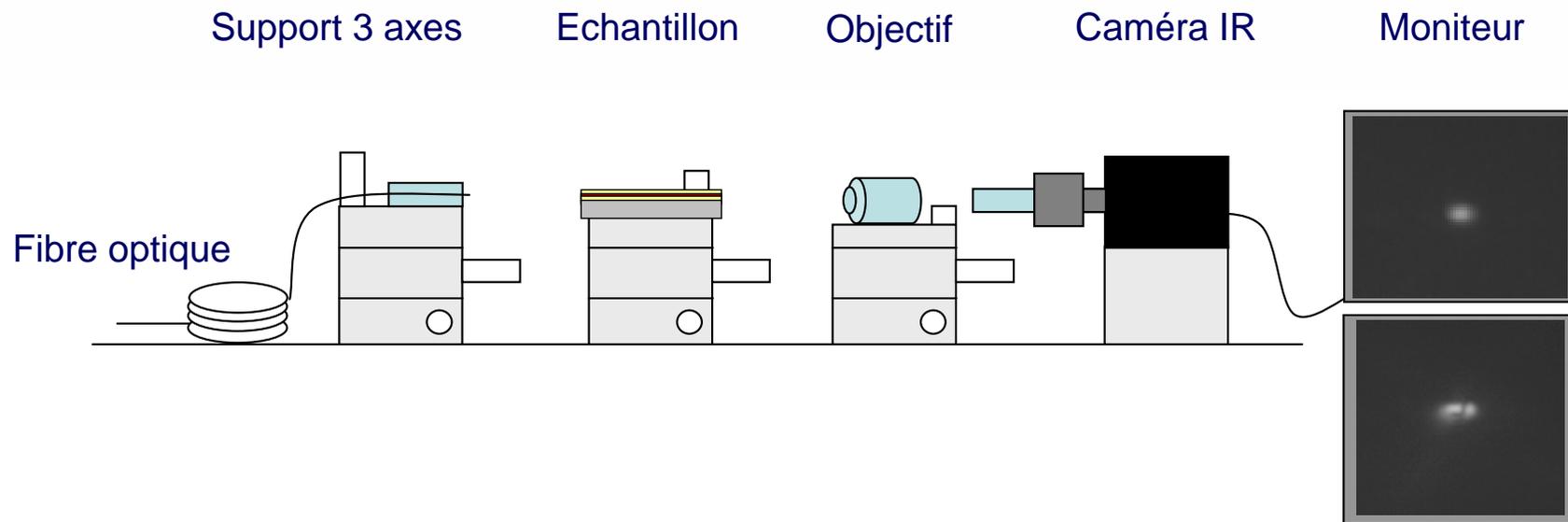


Motifs rectilignes de guides d'onde de 50 mm de longueur présentant une largeur de 2, 4, 6, 8 et 10 µm

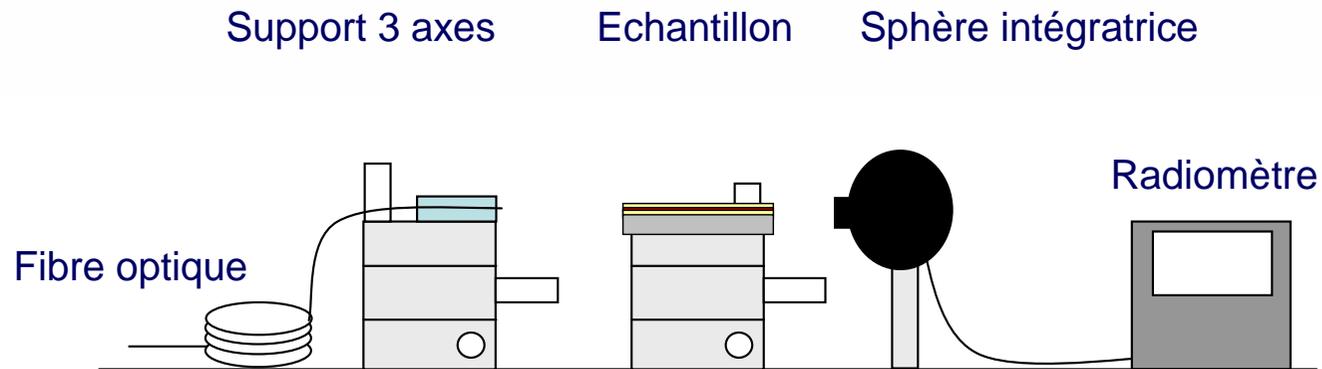


Défaut de clivage

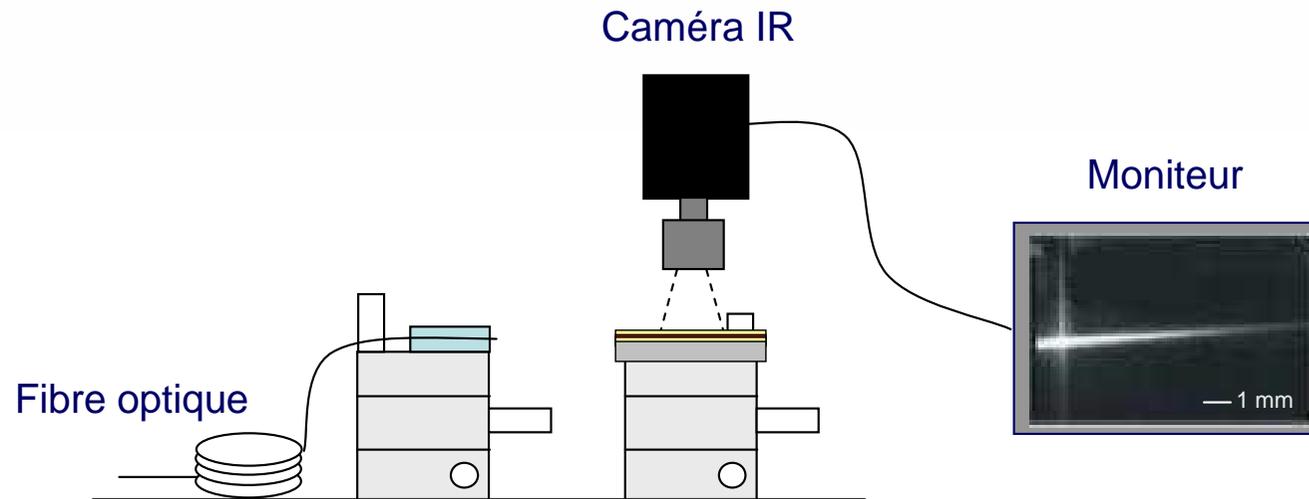




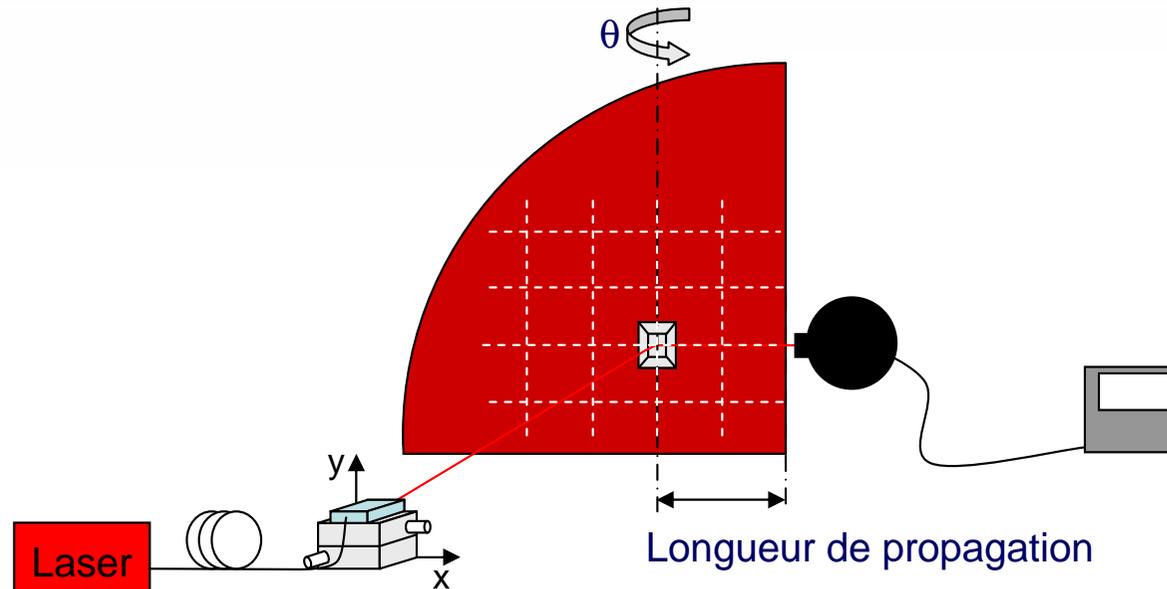
- **Guidage monomode à 1550 nm : SU-8, section de 2,5 x 4 μm**
- Pertes optiques en propagation ~ 10 dB/cm à 1550 nm
- Pertes optiques par diffusion ~ 8 dB/cm à 1550 nm
- Pertes optiques en propagation sur guide plan ~ 3 dB/cm à 1550 nm



- Guidage monomode à 1550 nm : SU-8, section de $2,5 \times 4 \mu\text{m}$
- Pertes optiques en propagation $\sim 10 \text{ dB/cm}$ à 1550 nm
- Pertes optiques par diffusion $\sim 8 \text{ dB/cm}$ à 1550 nm
- Pertes optiques en propagation sur guide plan $\sim 3 \text{ dB/cm}$ à 1550 nm



- Guidage monomode à 1550 nm : SU-8, section de 2,5 x 4 μm
- Pertes optiques en propagation ~ 10 dB/cm à 1550 nm
- **Pertes optiques par diffusion ~ 8 dB/cm à 1550 nm**
- Pertes optiques en propagation sur guide plan ~ 3 dB/cm à 1550 nm



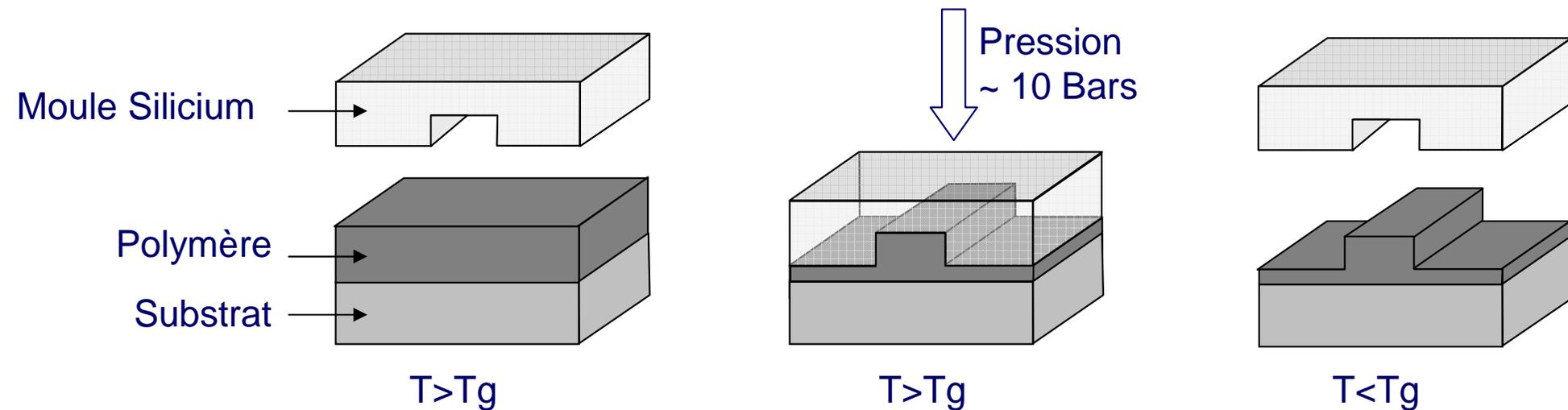
- Guidage monomode à 1550 nm : SU-8, section de $2,5 \times 4 \mu\text{m}$
- Pertes optiques en propagation $\sim 10 \text{ dB/cm}$ à 1550 nm
- Pertes optiques par diffusion $\sim 8 \text{ dB/cm}$ à 1550 nm
- Pertes optiques en propagation sur guide plan $\sim 3 \text{ dB/cm}$ à 1550 nm

- I. Mise en forme et caractérisations du polymère
- II. Intégration par photolithogravure
- III. Intégration par lithographie d'impression**
 - III.1 Emboutissage à chaud (*Hot Embossing*)
 - III.2 Réplique par moulage (*Replica Molding*)
 - III.3 Orientation des chromophores in situ
- IV. Conclusion & Perspectives

Avant impression

Impression

Retrait du moule



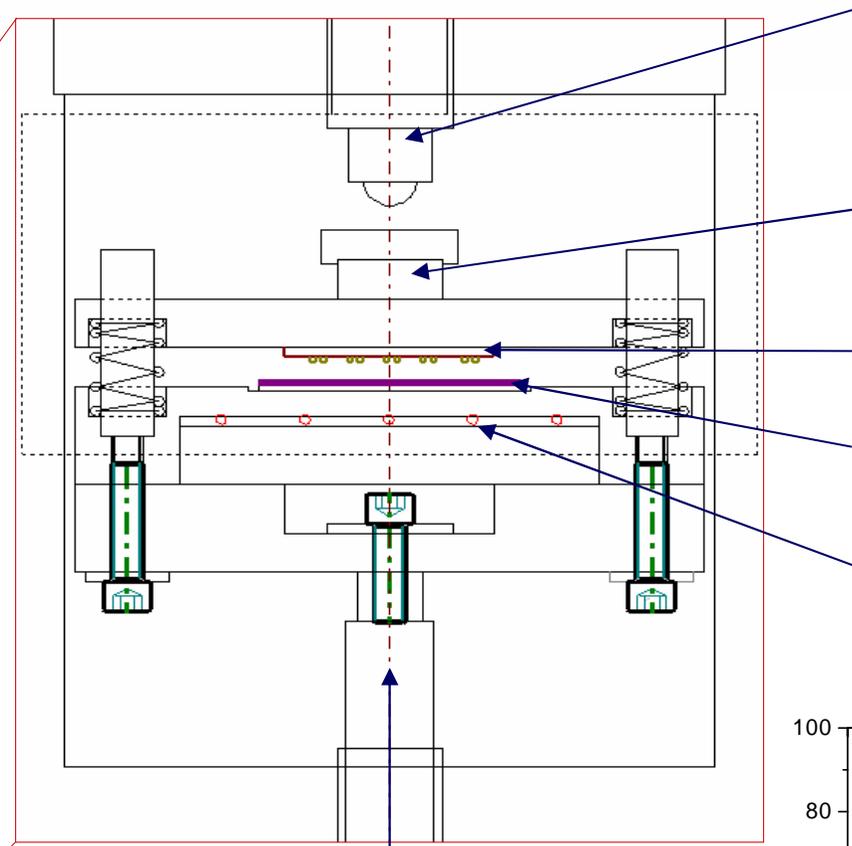
Paramètres du procédé :

Température, force, temps

Propriétés du moule :

Qualité des motifs, propriétés d'adhésion

Pression : 10 Bars
Surface utile: 10 cm²
Température : 140°C



Vérin motorisé
Charge : 120 N
Résolution : 50 nm

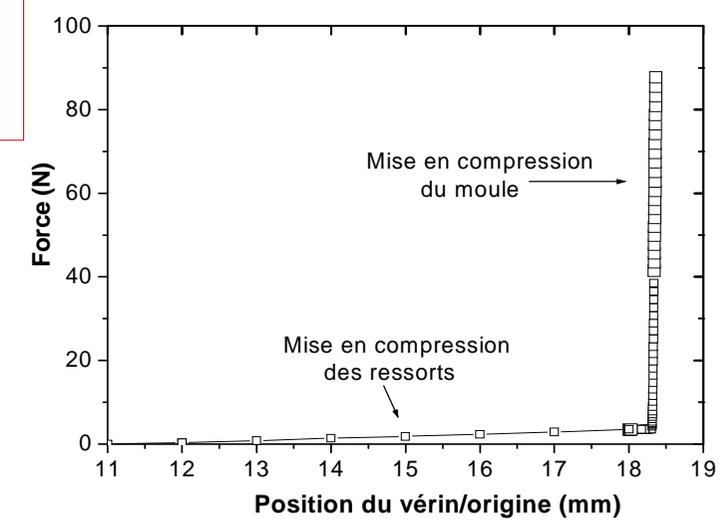
Céramique d'isolation thermique

Moule

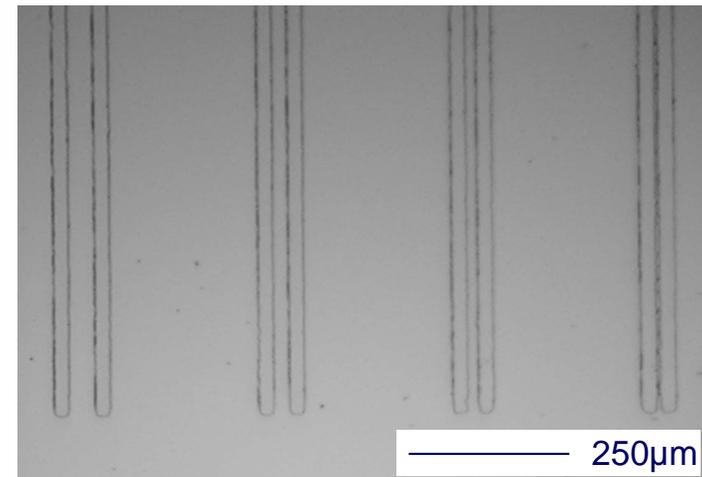
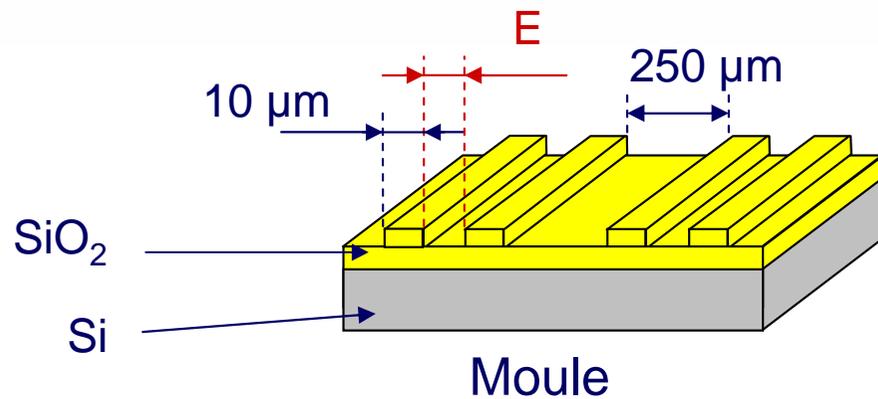
Echantillon

Porte substrat chauffant

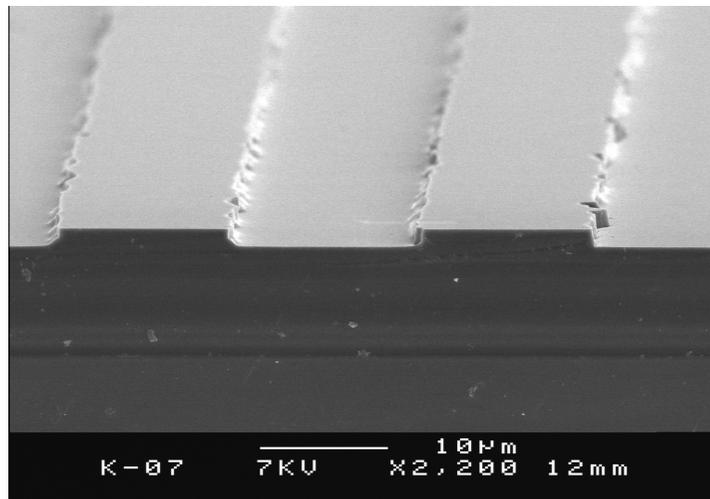
Capteur de force piézoélectrique
Résolution : 45 pC/N



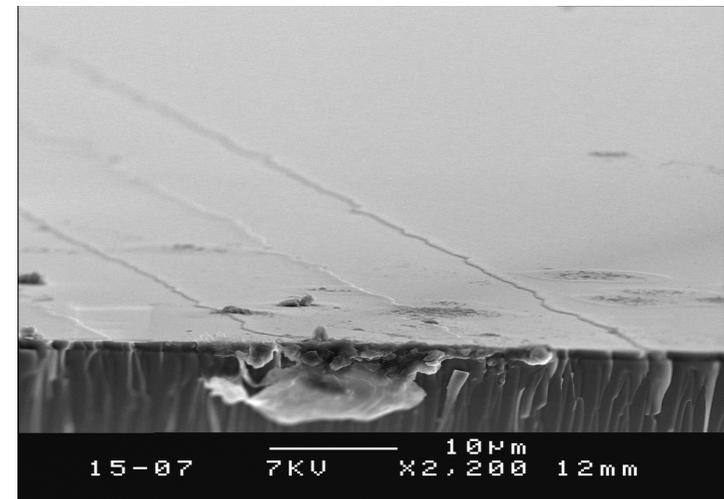
Écartement (E) de 5 à 20 μm



Surface d'un moule à rubans de Silice

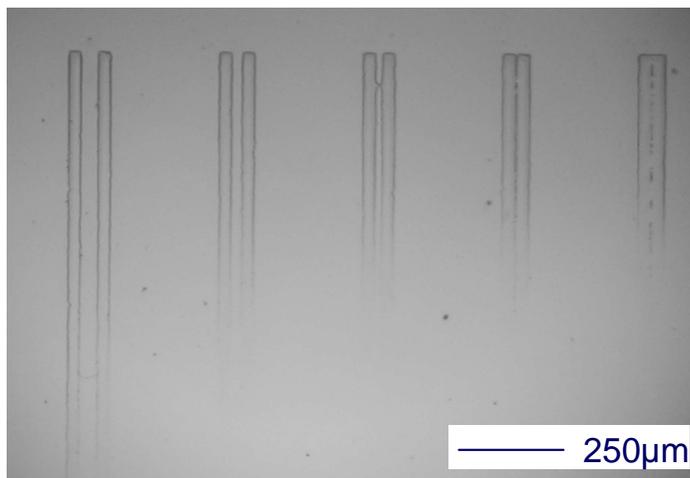
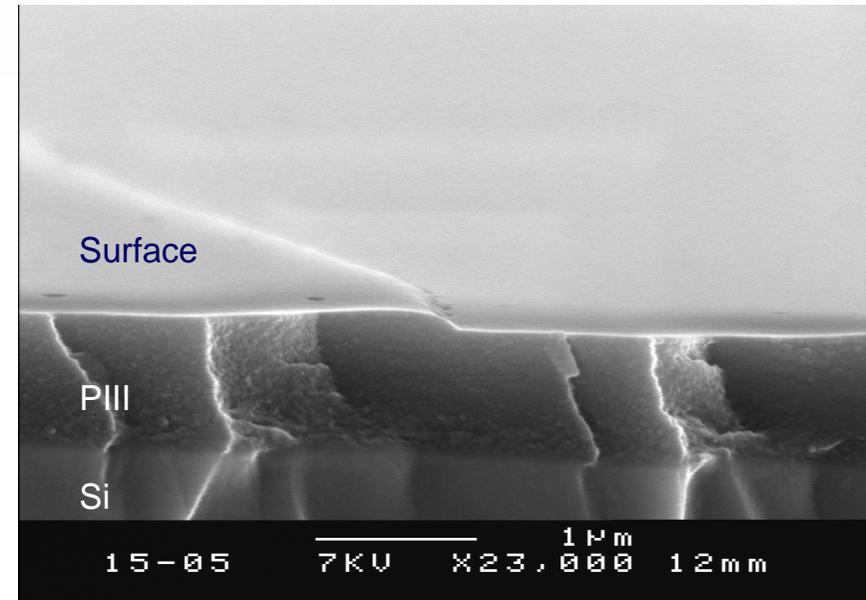


Hauteur des motifs du moule $\sim 1,3\ \mu\text{m}$

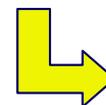


Surface d'un film de PIII après une impression

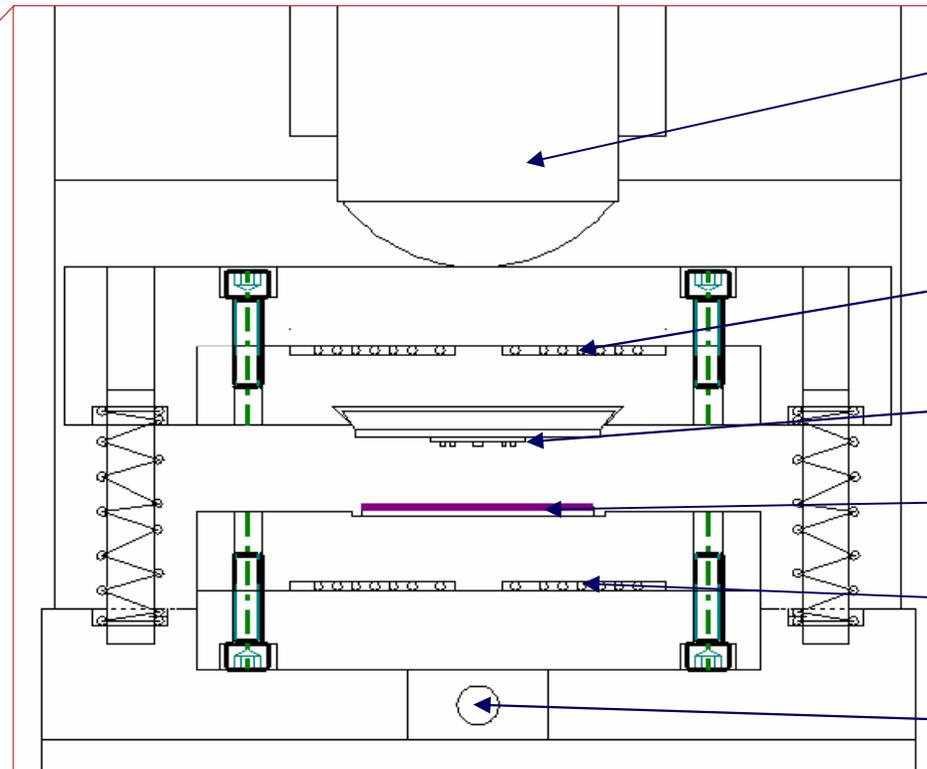
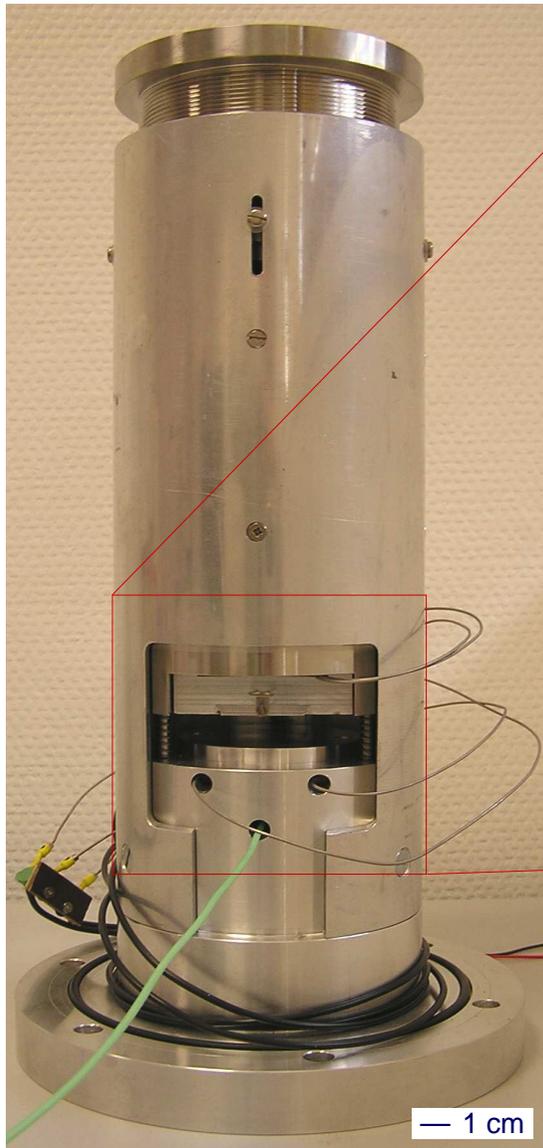
140°C – 120 N – 30 min



- Reproduction des motifs possible
- Faible profondeur d'impression
- Transfert incomplet



Force pas assez élevée



Actuateur piézoélectrique
Charge : 14 kN

Chauffage

Moule

Echantillon

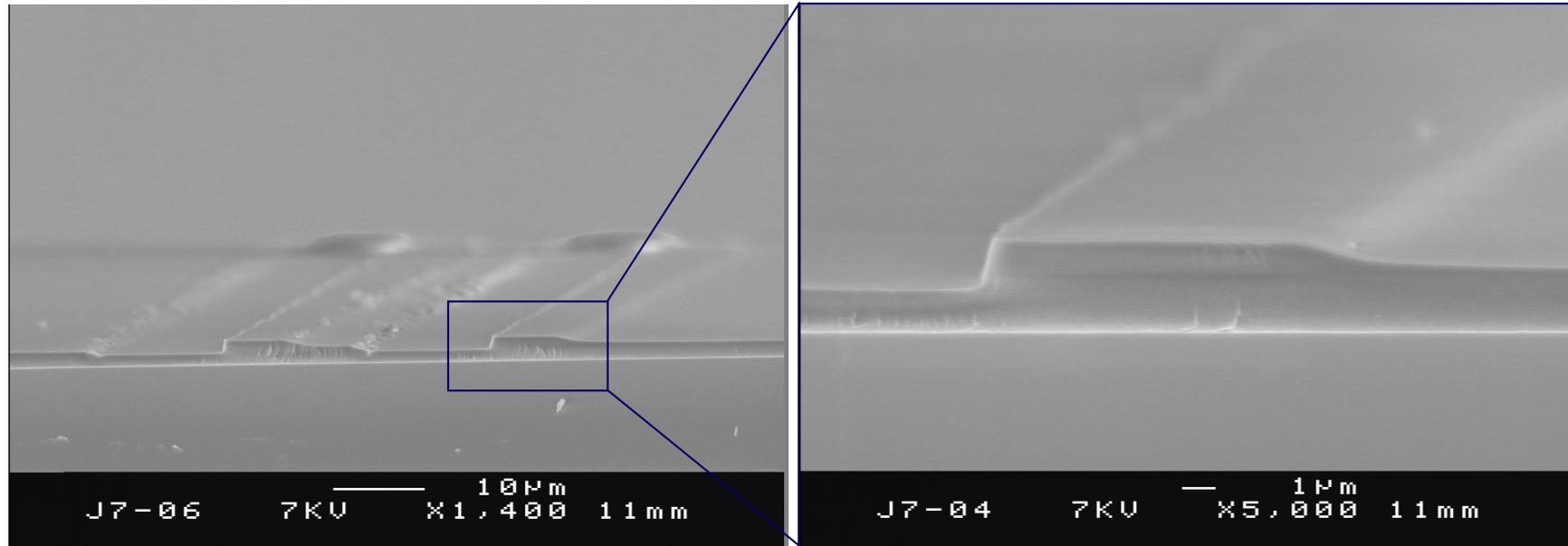
Chauffage

Capteur de force
Résolution 4,5 pC/N

Pression : 50 Bars
Surface utile: 10 cm²
Température : 140°C

— 1 cm

250 N (~ 25 Bars) – 100°C – 20 min

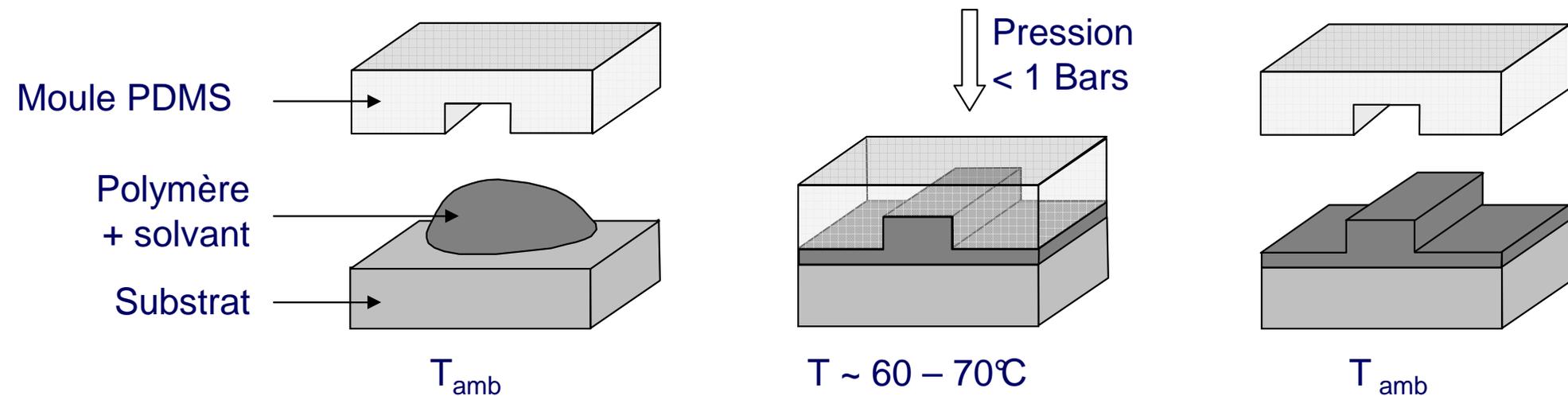


- ↳ Profondeur d'impression de l'ordre de 1 μm
- ↳ Faible uniformité de l'impression sur de grandes surfaces
- ↳ Arrachement de matériau lors du retrait du moule

Avant impression

Impression

Retrait du moule



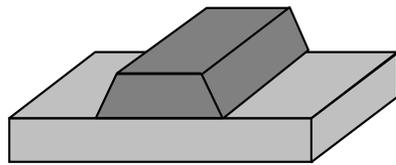
Paramètre du procédé :

Concentration du polymère

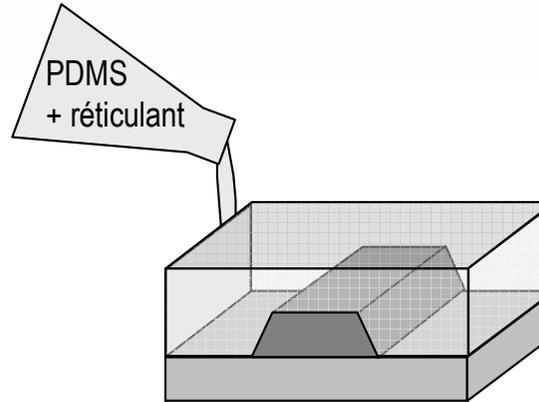
Propriétés du moule :

Qualité des motifs, propriétés d'adhésion

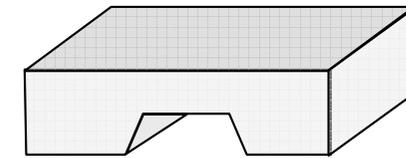
Photolithographie



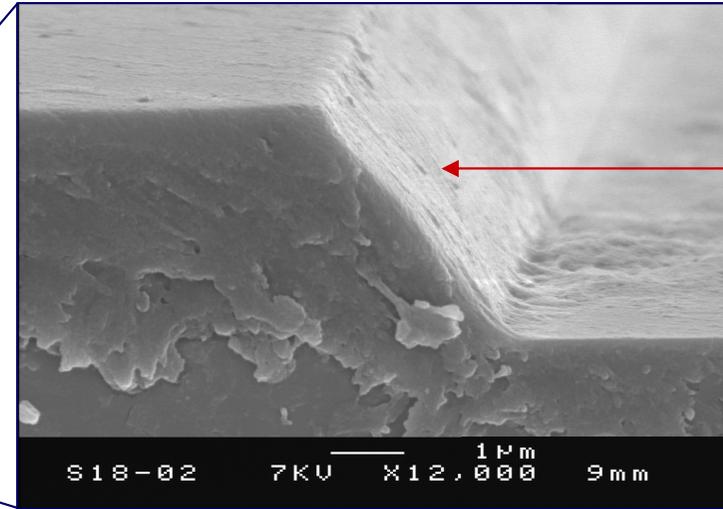
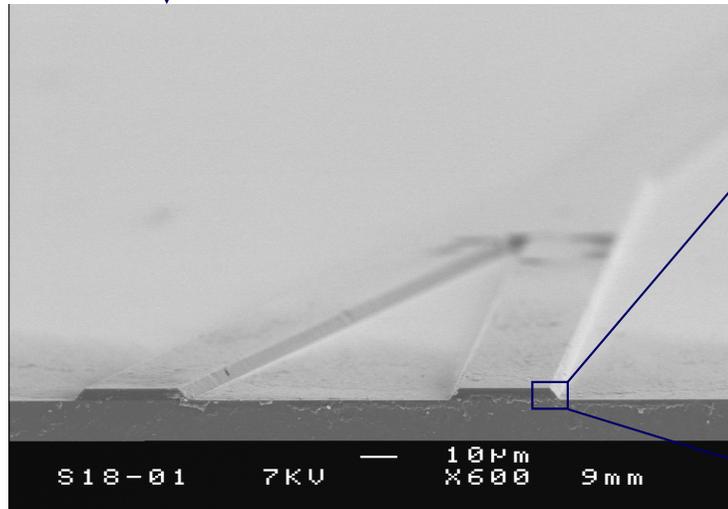
Enrobage



Démoulage

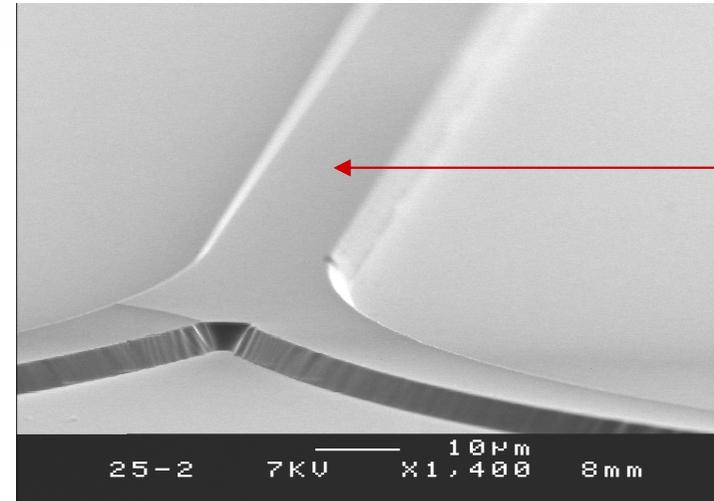
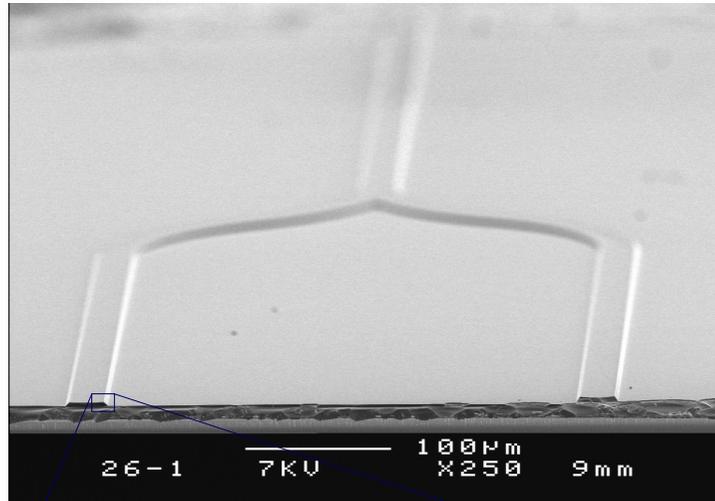


Surface
(10 cm²)

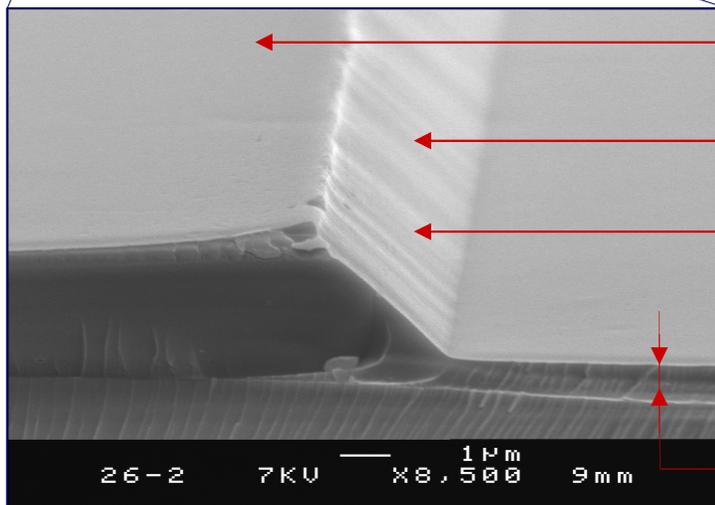


Motif en résine photosensible de 20 x 3 µm à section trapézoïdale

70 g/L – 80 N (~0,8 Bars) – 70°C



Guides multimodes

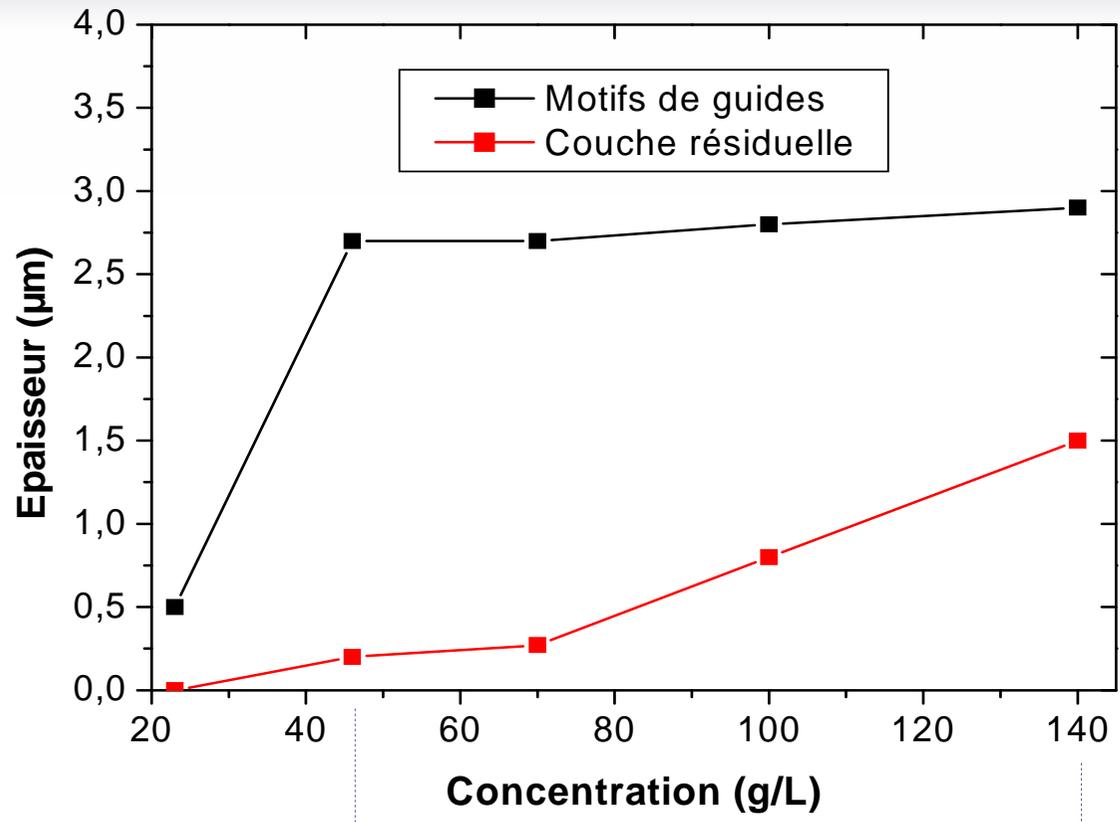


Surface lisse

Profil à 45° (identique au moule)

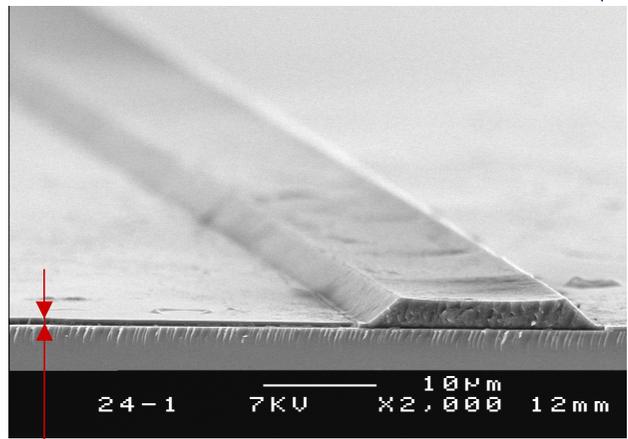
Flanc légèrement rugueux

Couche résiduelle



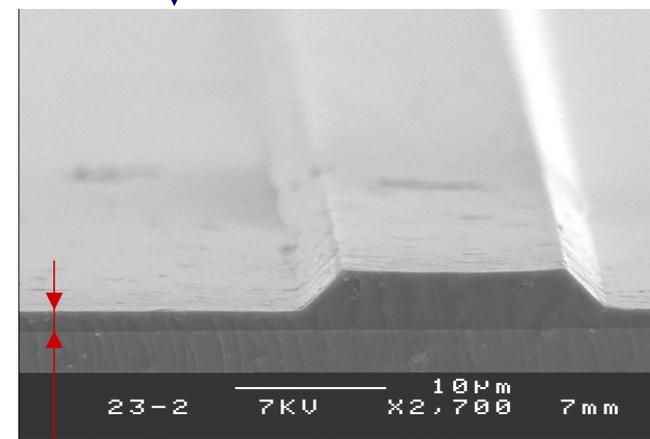
Paramètres fixes :
Volume (0,150 mL)
Moule (10 cm²)
Force (50 N)
Temps (15 min)
Température (60°C)

46 g/L



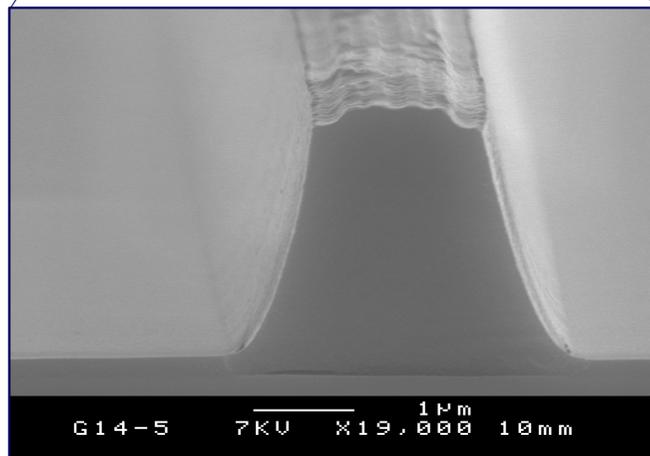
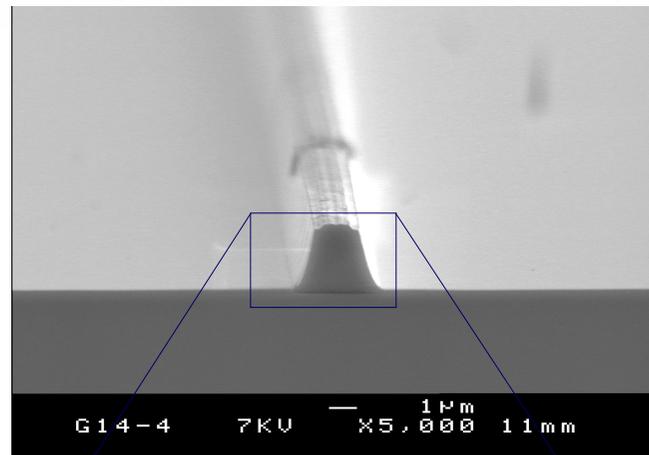
Couche résiduelle ~ 200 nm

140 g/L



Couche résiduelle ~ 1,5 µm

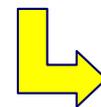
46 g/L – 50 N (~0,5 Bars) – 60°C



Caractéristiques du 2nd moule :

- Motifs de guides monomodes
- Résine aux pentes à 75°

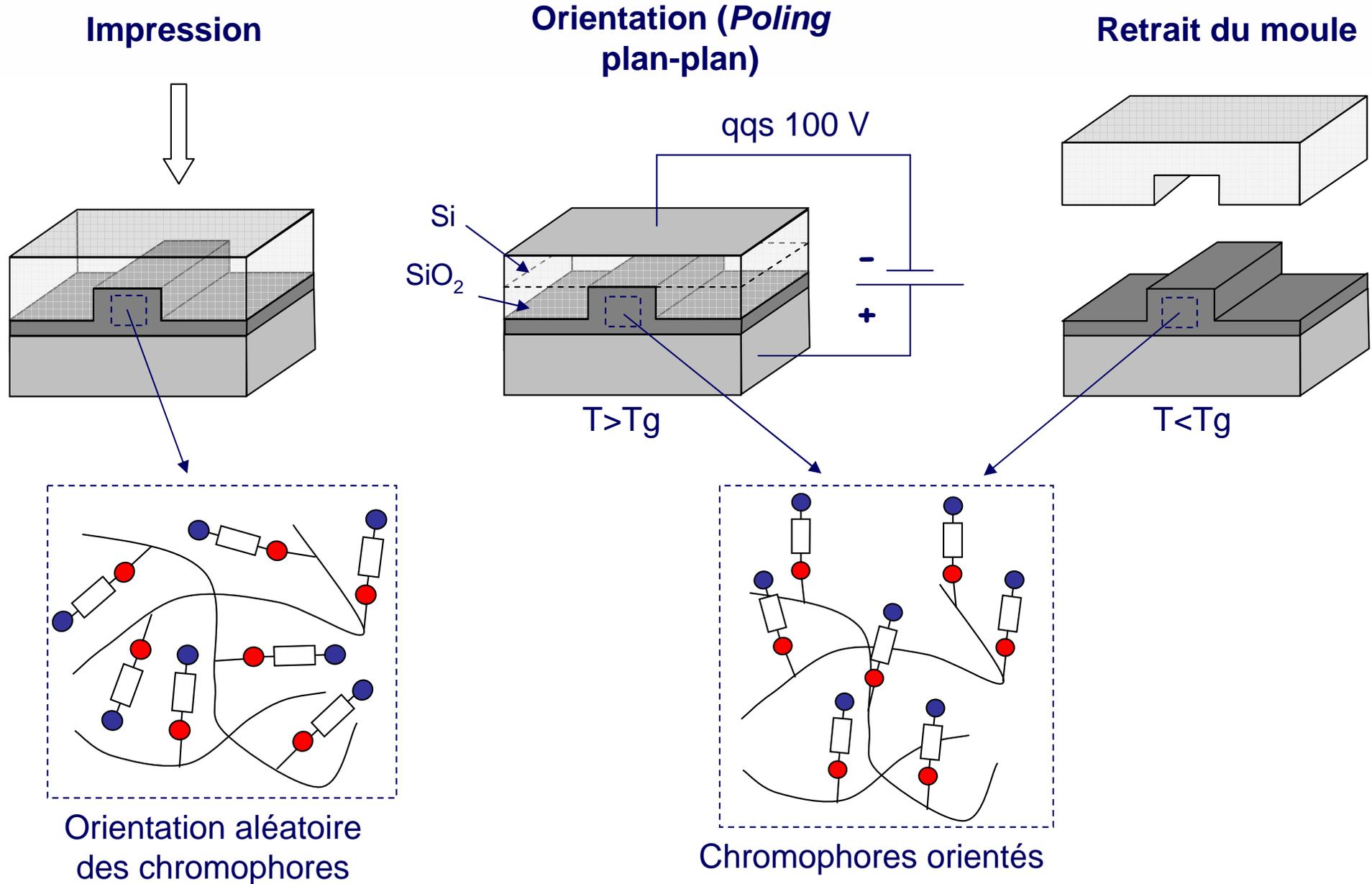
- Guides monomodes en PIII
- Profils à 75°
- Rugosité de surface

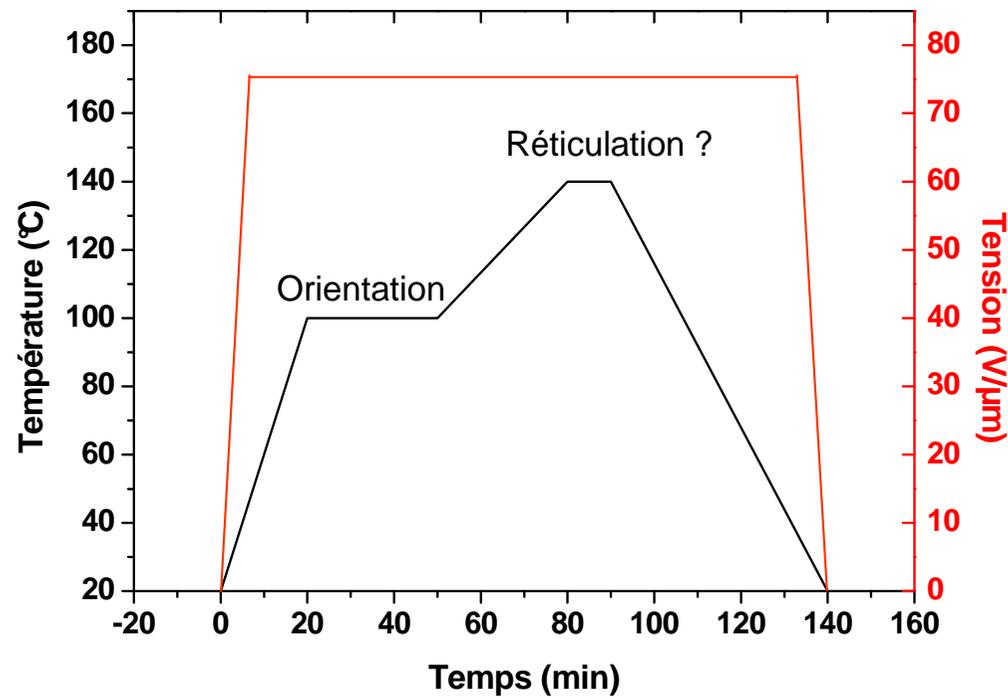
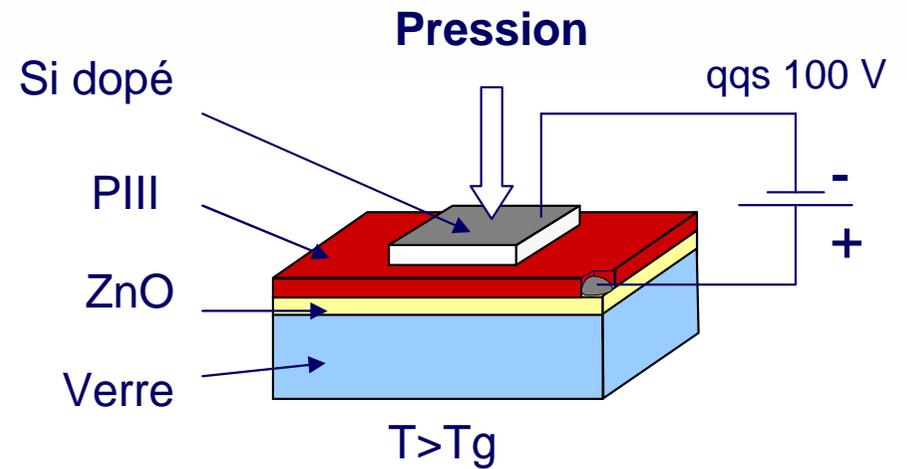
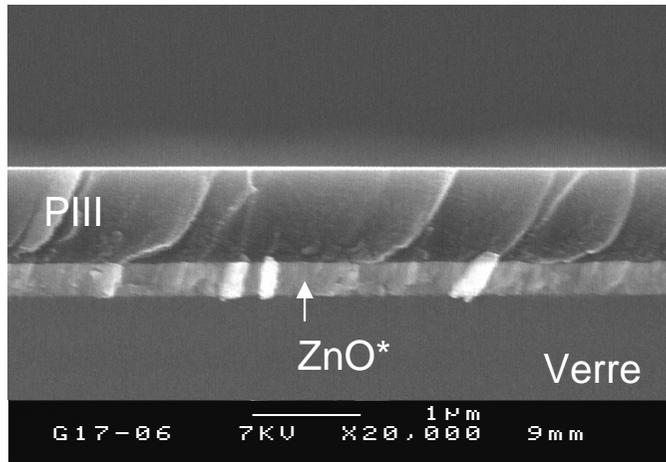


Simplicité (une seule étape)

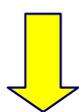
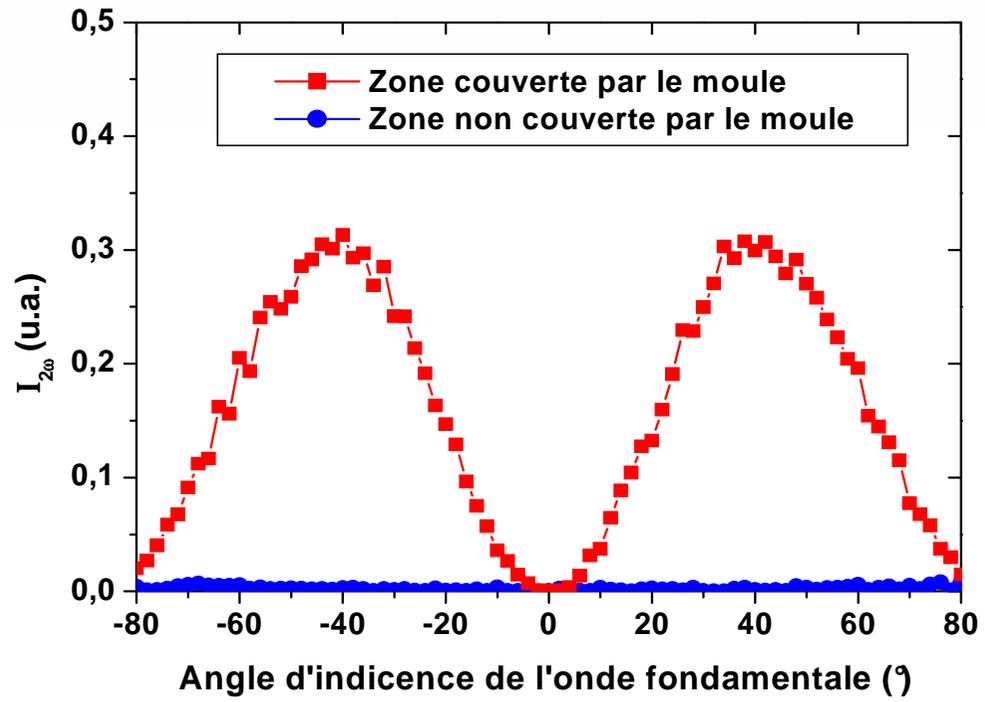
Rapidité (15 min)

Moule réutilisable (x10)

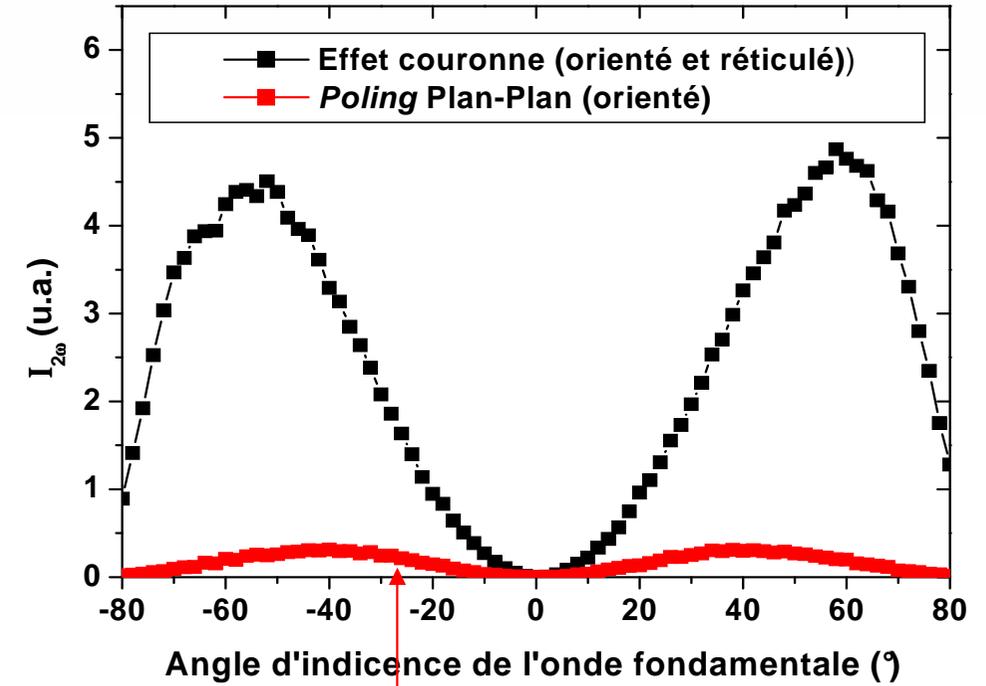




* Réalisée au LAMP



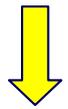
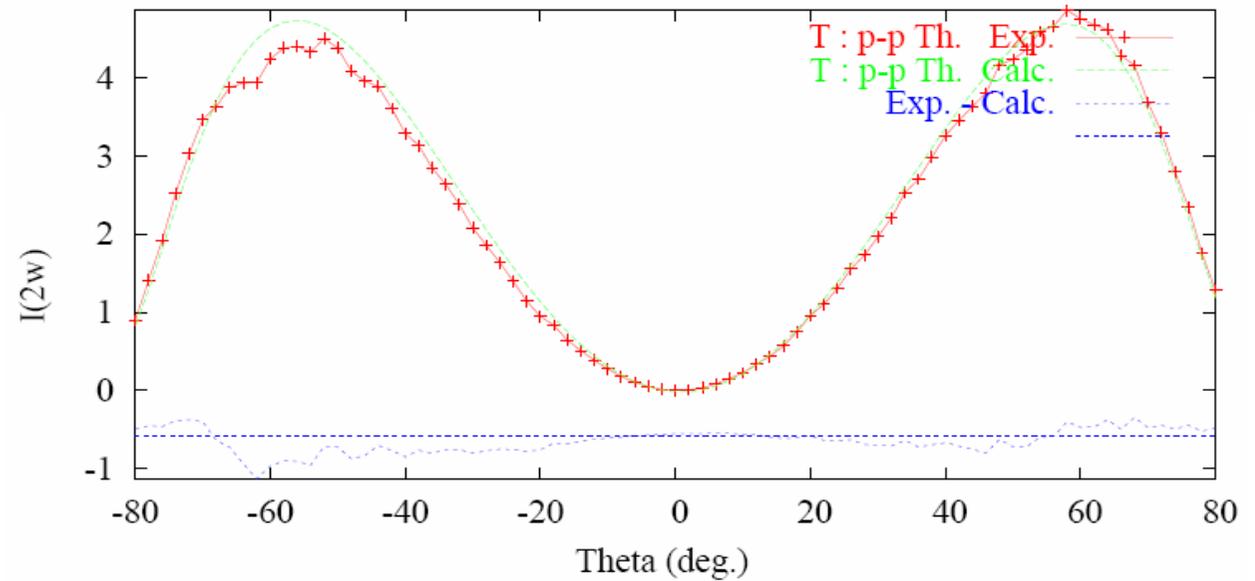
Activité ONL seulement dans la zone initialement couverte par le moule



Matériau non réticulé et analysé 30 jours après l'orientation

- I. Mise en forme et caractérisations du polymère
- II. Intégration par photolithogravure
- III. Intégration par lithographie d'impression
- IV. Conclusion & perspectives**
 - IV.1 Caractérisations optiques
 - IV.2 Guides d'onde par filière classique
 - IV.3 Guides d'onde par lithographie d'impression

Courbes de SHG expérimentale et calculée d'un film de PIII orienté et réticulé par effet couronne (désaccord : 5,8%)



$$\chi_{33}^{(2)} = 60 \text{ pm/V} \quad \text{à } 1064 \text{ nm}$$



$$r_{33} = 16 \text{ pm/V}$$



$$V_{\pi} = \frac{\lambda_0 d}{n^3 r_{33} \Gamma} = 15 \text{ V.cm}$$

	r_{33} à 1320 nm	Source
PIII	12 pm/V	<i>D. Bosc, Optical Materials, 13(2), 205-209, 1999</i>
LiNbO ₃	30 pm/V	<i>L. Arizmendi, Phys. Stas. Soli(a), 201(2) :253–283, 2004</i>

IV.1 Caractérisations optiques

- ✓ Détermination du coefficient électro-optique r_{33}
- ✓ Stabilité des propriétés ONL quadratiques du polymère
- ✓ Mesure des indices de réfraction du polymère
- ✓ Pertes optiques comprises entre 3 et 10 dB/cm à 1550 nm

- Minimiser les pertes optiques :
 - Mise en forme : couplage, propagation
 - Formulation : Polymère de type fluoré à faible absorption

IV.2 Guides d'onde par filière classique

- ✓ Procédé de dépôt multicouche
- ✓ Orientation des chromophores avec étape de réticulation
- ✓ Design d'une structure monomode
- ✓ Structuration et intégration du guide

- Définir les formes d'une structure Mach-Zehnder
(rayon de courbure des jonctions)

- Design des électrodes de commande

IV.3 Guides d'onde par filière alternative

- ✓ Développement de dispositifs d'impression
- ✓ Obtention de structures monomodes
- ✓ Démonstration de l'orientation des chromophores in situ

- Amélioration des moules (profil, énergie de surface)
- Etude systématique du *poling* in situ

- **Région des Pays de la Loire**

- **Acteurs du projet CER « Photonique et Micro-ondes » :**

D. Averty, E. Blart, C. Boisrobert, J. Cardin, X. Chapeleau, P. Derval,
M. El Gibari, L. Fontaine, A. Gardelein, H. Gundel, V. Gaillard, F. Huet,
B. Illien, D. Leduc, S. Legoupy, H. Li, C. Lupi, C. Monnereau,
V. Montembault, F. Odobel, T. Razban, A. Scarpaci, R. Seveno,
M. Severac, E. Tanguy, G. Tellier, S. Toutain

- **CCLO** : D. Bosc, F. Henrio, A. Maalouf, K. Messaad

- **LAMP** : N. Barreau

- **ISM** : V. Rodriguez

- **Membres du jury**