**Titre de la thèse**

Matériaux à changement de phase émergents pour la nanophotonique reconfigurable

Emerging phase change materials for reconfigurable nanophotonics

**Résumés de thèse**

**4000 caractères français**

La nanophotonique est un domaine de recherche en pleine expansion à la croisée entre les nanotechnologies et l’optique. Ce domaine consiste à contrôler la lumière par l’intermédiaire de nano-structuration de la matière, et trouve de nombreuses applications industrielles allant des télécommunications, aux capteurs en passant par les dispositifs d’affichages, la génération d’hologrammes ou encore l’informatique neuromorphique. Bien que prometteurs pour les technologies du futur, les dispositifs nanophotoniques sont actuellement limités par un manque de flexibilité : ils ne peuvent avoir qu’une unique fonctionnalité fixée à la fabrication. L’enjeu consiste alors à proposer des stratégies afin de concevoir des dispositifs actifs, dont la réponse optique pourra être modulée après la fabrication, tout en faisant évoluer ces dispositifs vers l’intégration sur plateforme industrielle. Parmi les principales pistes explorées, les matériaux à changement de phase (PCM), sont particulièrement intéressants. Ils présentent un fort contraste de propriétés optiques entre leur forme amorphe et cristalline, pouvant être utilisé pour moduler la réponse optique d’un dispositif. De plus, il est possible de provoquer leur changement d’état amorphe/cristallin de manière réversible et rapide par l’intermédiaire d’un stimuli tel que le chauffage, l’exposition laser ou une impulsion électrique. Cependant, plusieurs défis sont à résoudre afin d’intégrer les PCM sur des dispositifs reconfigurables, dont : l’étude de la stabilité chimique du matériau, le développement de méthodes permettant un control local de sa phase (par voie optiques et/ou électrique), l’optimisation du cyclage entre les deux phases (amorphes et cristalline), …

Dans ce contexte, cette thèse vise à proposer des stratégies afin d’intégrer les PCM, et plus particulièrement le Sb2S3, sur des dispositifs reconfigurables opérant essentiellement dans le visible et le proche infra-rouge. Le Sb2S3 est un PCM dit « à faible pertes optiques » car il bénéficie d’une bonne transparence dans le visible et proche infrarouge, tout en gardant un fort contraste d’indice de réfraction. Etudié depuis peu par la communauté nanophotonique, il est peu connu en ce qui concerne ses mécanismes de changement de phase, ses performances et sa stabilité dans les dispositifs. Les objectifs principaux de la thèse sont ainsi la caractérisation optique et structurale du Sb2S3 dans ces différents états, ainsi que le développement de méthodes permettant de contrôler le changement de phase de ce PCM par voie optique et électrique. Nous avons d’abord vérifié que le Sb2S3 présentait des propriétés optiques intéressantes dans ces deux états. Plus particulièrement, nous avons montré son intérêt pour des applications multi-niveaux, du fait d’une variation graduelle de son indice de réfraction entre les phases complètement amorphe et cristalline. Puis, nous avons relevé les principaux défis pour l’intégration du Sb2S3 sur dispositifs (oxydation, cristallisation aléatoire) ainsi que des stratégies pour les surmonter. Nous présentons également une méthode permettant de suivre en direct la cristallisation du PCM, qui nous a permis de mieux appréhender les mécanismes en jeux. Nous avons aussi démontré l’amorphisation réversible du Sb2S3 par exposition laser et déterminé les conditions permettant d’amorphiser complétement et partiellement le PCM. Nous avons identifié les limites de notre méthode, accompagnées des possibles optimisations. Enfin, nous avons expliqué comment contrôler la propagation des cristaux de Sb2S3 par voie électrique, ce qui représente un résultat particulièrement novateur et prometteurs pour la fabrication de dispositifs reconfigurables. L’ensemble des résultats obtenus justifie l’intérêt du Sb2S3 pour les dispositifs nanophotoniques reconfigurable, tout en proposant des pistes pour pallier aux potentielles difficultés d’intégration rarement mentionnées dans la littérature.

**4000 caractères anglais**

Nanophotonics is a booming field at the crossroads of nanotechnologies and optics. It involves the control of light through nanostructuration, and has numerous applications including, but not limited to, telecommunications systems, sensors, displays, holograms or neuromorphic computing. Although promising for the future technologies, nanophotonic devices are currently limited by a lack of tunnability: they usually have a single functionality fixed by the fabrication. The challenge is thus to propose new strategies for designing active devices with post-fabrication tunability, while enabling on-chip integration for industrial platforms. Among the possible ways to modulate devices’ optical response, phase-change materials (PCMs) are particularly promising. Indeed, they can be rapidly and reversibly switched between their amorphous and crystalline phase by applying an external stimulus such as heat, laser or electrical pulses. This amorphous/crystalline phase transition induces a significant change in the material's optical properties, which is used for tuning the devices' response. Yet, several challenges such as: the study of the materials’ chemical stability, the development of methods for locally controlling (optically and/or electrically) the PCM phase or the optimization of the cycling between the two phases (amorphous and crystalline), still lie ahead in order to integrate PCMs into reconfigurable devices.

This PhD project therefore aims at developing strategies to integrate PCMs, in particular Sb2S3, into reconfigurable devices operating mainly in the visible and near-infrared ranges. Sb2S3 is a so-called “low loss” PCM, as it benefits from a good transparency in the visible and near infrared, while still exhibiting a high refractive index contrast between its two phases. It has just recently been introduced in the nanophotonic community, and is thus not well-known when it comes to its phase transition mechanisms and performances as well as its stability on devices. Consequently, the main objectives of this thesis are to characterize Sb2S3 optical and structural properties in its different phases, as well as to develop methods for optically and electrically controlling the phase change of this PCM. In particular, we first present the remarkable optical properties of our Sb2S3, arising from a gradual refractive index variation between the fully amorphous and crystalline phases and low losses, which is promising not only for binary systems but also for multi-level applications. We then identify the main challenges for Sb2S3 integration on devices (oxidation, stochastic crystallization) along with strategies to overcome them. We also present a simple method for the in-situ monitoring of PCM crystallization, enabling us to gain insights on Sb2S3 crystallization. Secondly, we demonstrate the reversible laser-induced amorphization of Sb2S3, and provide the conditions for complete and partial amorphization of the PCM. In addition, we identify the limitations of this switching method, along with the possible optimizations. Finally, we explain how to control electrically Sb2S3 grain growth using micro-heaters. This last result is particularly innovative and promising the fabrication of reconfigurable devices. Overall, the presented results confirm Sb2S3 potential for reconfigurable nanophotonic devices, while proposing ways of overcoming potential integration challenges, which are rarely mentioned in the literature.

**Résumé de thèse vulgarisé pour le grand public**

**1000 caractères français**

Les matériaux à changement de phase (PCM) suscitent un fort intérêt pour la nanophotonique reconfigurable. La variation significative de leurs propriétés optiques, induite par une transition de phase amorphe/cristalline réversible, permet de moduler la réponse optique des dispositifs. Le Sb2S3, un PCM émergent « à faibles pertes », est particulièrement prometteur pour les dispositifs opérant dans le visible et proche infrarouge du fait de sa transparence. Cependant, ses propriétés sont mal connues et le contrôle de son changement de phase reste un défi. Ainsi, cette thèse vise à caractériser le Sb2S3 et développer des stratégies pour induire la transition de phase par voie optique et électrique. Les principaux résultats sont : la transition de phase multi-niveaux du Sb2S3, l'amorphisation réversible induite par laser et le contrôle électrique de la cristallisation du Sb2S3. L’ensemble des travaux de thèse justifie l’intérêt du Sb2S3 pour la réalisation de dispositifs reconfigurables.

**1000 caractères anglais**

Phase change materials (PCM) have gained tremendous interest for reconfigurable nanophotonics. Their significant change of optical properties upon the amorphous to crystalline reversible transition, is used for tuning the devices’ response. Specifically, the emerging low loss PCM, Sb2S3, is very promising for applications in the visible and near infrared range due to its high transparency. Yet, as a novel PCM its properties are not well known and the control of its phase transition at the device level remains challenging. Consequently, this PhD aims at characterizing Sb2S3 as well as developing methods for inducing its phase change optically and electrically. The main novelties of this thesis include: the realization of the multi-level partial phase transition of Sb2S3, the demonstration of the reversible laser-induced amorphization of Sb2S3 and the control of Sb2S3 grain growth via electrical pulses. Overall, this PhD work shows promises for realizing rewritable devices out of Sb2S3.

**Mots clés**

**Français :**

Nanophotonique, matériaux à changement de phase, Sb2S3, métasurfaces

**Anglais :**

Nanophotonics, phase change materials, Sb2S3, metasurfaces

**Liste des publications**

**Papiers dans des revues scientifiques :**

**C. Laprais**, C. Zrounba, J. Bouvier, N. Blanchard, M. Bugnet, A. Gassenq, Y. Gutiérrez, et. al. “Reversible Single‐Pulse Laser‐Induced Phase Change of Sb2S3 Thin Films: Multi‐Physics Modeling and Experimental Demonstrations.” *Advanced Optical Materials*, p.2401214, 2024

A. Biegański, M. Perestjuk, R. Armand, A. Della Torre, **C. Laprais**, G. Saint-Girons, V. Reboud et al. "Sb2S3 as a low-loss phase-change material for mid-IR photonics." *Optical Materials Express* 14, no. 4, 862-870, 2024

A. Taute, S. Al-Jibouri, **C. Laprais**, S. Monfray, J. Lumeau, A. Moreau, X. Letartre et al. "Programming multilevel crystallization states in phase-change-material thin films." *Optical Materials Express* 13, no. 11, 3113-3120, 2023

**Papiers de conférence :**

**C. Laprais**, N. Baboux, L. Berguiga, G. Saint Girons and S. Cueff “Electrical switch of phase change materials: toward the control of crystallinity for multi-level reconfigurable nanophotonics” SPIE proceeding (accepted 2024)

**C. Laprais**, L. Berguiga, C. Zrounba, J. Bouvier, N. Baboux, G. Saint Girons and S. Cueff "Laser Induced Reversible Phase Transition of Sb2S3 for Tunable Nanophotonics." In *CLEO: Science and Innovations*, pp. SM2O-7. Optica Publishing Group, 2024.

A. Biegański, M. Perestjuk, R. Armand, A. Della Torre, **C. Laprais**, G. Saint-Girons, V. Reboud et al. "Reconfigurable SiGe waveguide using Sb2S3 phase-change material in the mid-IR." In *CLEO: Science and Innovations*, pp. SM2O-5. Optica Publishing Group, 2024.

**Conférences internationales :**

**C. Laprais**, N. Baboux, L. Berguiga, G. Saint Girons and S. Cueff “Electrical switch of phase change materials: toward the control of crystallinity for multi-level reconfigurable nanophotonics” SPIE Optics and photonics, August 2024, oral

**C. Laprais**, C. Zrounba, J. Bouvier, N. Baboux, G. Saint Girons, L. Berguiga and S. Cueff "Laser Induced Reversible Phase Transition of Sb2S3 for Tunable Nanophotonics." CLEO, May 2024, oral

**C. Laprais**, C. Zrounba, L. Berguiga, N. Baboux, N. Blanchard, G. Saint Girons and S. Cueff “Controlling Sb2S3 phase transition for tunable nanophotonic applications” SPIE Photonics Europe, April 2024, Invited oral

**C. Laprais**, L. Berguiga, C. Zrounba, J. Bouvier, N. Baboux, G. Saint Girons and S. Cueff “Optical switch of Sb2S3 for tunable nanophotonics” EPCOS, September 2023, poster

**C. Laprais**, L. Berguiga, G. Saint Girons, N. Baboux, S. Cueff “Optical switch of Sb2S3 phase change material for tunable nanophotonic applications” EMRS Spring, June 2023, oral – Best presentation award

**C. Laprais**, L. Berguiga, J. Bouvier, N. Baboux, G. Saint Girons and S. Cueff “Reversible optical switch of Sb2S3 thin films for tunable nanophotonic applications” MRS Spring, April 2023, online oral

**C. Laprais**, L. Berguiga, N. Baboux, B. Fornacciari, C. Botella, A. Moreau, J. Lumeau, G. Saint Girons and S. Cueff “Sb2S3 thin film for tunable nanophotonic devices: phase switching mechanisms and thin film characterization” META, July 2022, poster

**Conférences nationales :**

**C. Laprais**, N. Baboux, L. Berguiga, N. Blanchard, M. Bugnet, G. Saint Girons and S. Cueff “Electrical control of phase change materials crystallinity for reconfigurable nanophotonics” GdR chalco, May 2024, oral

**C. Laprais**, L. Berguiga, J. Bouvier, N. Baboux, G. Saint Girons and S. Cueff “Optically switched Sb2S3 low loss phase change material for reconfigurable nanophotonic” GdR chalco, June 2023, oral

**C. Laprais**, L. Berguiga, G. Saint Girons, N. Baboux, S. Cueff “Sb2S3 thin film for tunable nanophotonic devices: phase switching mechanisms and thin film characterization” GdR chalco, June 2022, poster