HAL
open science

Etude de lasers à cascade quantique par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel

Dimitri Oustinov

To cite this version:

Dimitri Oustinov. Etude de lasers à cascade quantique par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT : . tel-00601157

HAL Id: tel-00601157

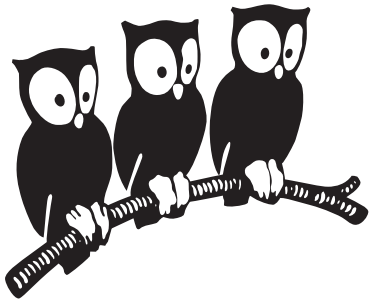
https://theses.hal.science/tel-00601157v1

Submitted on 16 Jun 2011

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

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

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Science des Matériaux

présentée par

Dimitri Oustinov

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS VI

Sujet de la thèse :

Étude de lasers à cascade quantique par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel

Soutenue le 24 Mars 2011 devant le jury composé de :

Prof. Maria Chamarro (Présidente du jury)

Prof. Jean-Louis Coutaz (Rapporteur)

Dr. Jean-François Lampin (Rapporteur)

Prof. Carlo Sirtori (Examinateur)

Dr. Roland Teissier (Examinateur)

Dr. Sukhdeep Dhillon (Membre invité)

Prof. Jérôme Tignon (Directeur de thèse)

Sujet : Étude de lasers à cascade quantique par spectroscopie THz dans le domaine temporel

Thèse réalisée au Laboratoire Pierre Aigrain, Département de Physique de l'École Normale Supérieure.

Résumé :

Ce travail présente une étude de lasers à cascade quantique à l'aide de la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Cette technique expérimentale consiste en la mesure de champs électriques THz transmis par un échantillon, permettant d'étudier des effets à la fois statiques et dynamiques dans les semiconducteurs. Les lasers à cascade quantique THz sont des structures multipuits considérées comme des dispositifs prometteurs pour combler le manque de sources dans l'infrarouge lointain.

Dans une première étude, statique, nous avons mesuré le spectre du gain de différents échantillons et avons pu identifier les transitions électroniques intersousbandes responsables du gain et des pertes. Nous avons aussi constaté un rétrécissement du spectre du gain dans ces lasers dont nous expliquons l'origine.

Dans une seconde étude, dynamique, nous avons effectué une commutation utra-rapide du gain dans un laser à cascade quantique afin d'exploiter son régime transitoire pour amplifier une onde THz. Le laser présente alors un gain élevé sans être limité aux pertes totales au-dessus du seuil.

Finalement, une troisième étude dynamique nous permet de mesurer l'émission cohérente d'un laser THz par spectroscopie dans le domaine temporel. Un contrôle électrique du déclenchement d'un laser au-dessus du seuil, et un amorçage de l'émission par une impulsion THz à spectre large nous permet de contrôler la phase du champ électrique émis par le laser.

mots clés :

spectroscopie dans le domaine temporel, transition intersousbandes, laser à cascade quantique, térahertz, infrarouge, gain, amplificateur, commutation du gain.

Subject : Study of quantum cascade lasers using terahertz time-domain spectroscopy

Thesis realized at Laboratoire Pierre Aigrain, Département de Physique de l'École Normale Supérieure.

Abstract :

This thesis presents a study of quantum cascade lasers using terahertz time-domain spectroscopy (TDS). TDS is an experimental technique which consists in detecting THz electric fields transmitted through a sample, offering the possibility of studying both static and dynamic effects in semiconductors. THz quantum cascade lasers are multiple quantum well structures that are considered as promising devices to fill the gap of far infrared emitters.

In a first set of static experiments, we have measured the gain spectra of several samples and were able to identify the intersubband electronic transitions giving rise to gain and losses. We have also observed and explained the origin of a spectral gain narrowing in those lasers.

In the dynamic experiments we switched the gain of a quantum cascade laser on to benefit from its non-stationary regime in order to amplify a THz wave. In this regime the gain of the laser is high and not clamped at the total losses above threshold.

Finally, in a third set of dynamic experiments we measure the coherent THz emission of a laser using THz time-domain spectroscopy. The control of the phase of the laser was achieved by injection seeding it with a broadband THz pulse.

key words :

Time-domain spectroscopy, intersubband transition, quantum cascade laser, terahertz, infrared, gain, amplifier, gain switching.

Remerciements

Tout d'abord je tiens à remercier Jean-Louis Coutaz et Jean-François Lampin pour avoir accepté d'être rapporteurs de ma thèse. Leur lecture du manuscrit et les discussions lors de la soutenance ont permis de clarifier certains points de ce document.

Je remercie également Maria Chamarro, Carlo Sirtori et Roland Teissier d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse en tant qu'examinateurs.

Je suis reconnaissant aux directeurs du Laboratoire Pierre Aigrain (LPA) : Claude Delalande et Jean-Marc Berroir, de m'avoir accueilli au LPA.

Le doctorat n'est jamais une expérience solitaire. Je dois le succès de ces trois années passées dans l'équipe de spectroscopie THz ultra-rapide aux bonnes intentions, au professionnalisme et aux compétences d'un grand nombre de personnes.

Tout d'abord je tiens à saluer la pertinence des choix stratégiques de mon directeur de thèse Jérôme Tignon. J'ai pu apprécier sa capacité à comprendre rapidement les difficultés et les points forts et faibles des différentes expériences que nous avons menées au laboratoire. Grâce à son talent et son expérience, il a su orienter judicieusement mes travaux et ceux du groupe durant ces 3 années.

D'autre part, j'admire le fait que Jérôme ait regroupé des gens avec des profils extrêmement variés et riches au sein du groupe. J'ai ainsi eu la chance de travailler dans une équipe internationale agréable et de vivre une expérience humainement très enrichissante.

Je suis personnellement très reconnaissant à Jérôme de ne pas m'avoir laissé seul face aux difficultés de la thèse, et d'avoir veillé à mon encadrement, que ce soit en me permettant d'obtenir des résultats pendant la thèse, en prenant le temps de corriger mon manuscrit de thèse avec soin ou encore en me préparant à la soutenance. J'estime ainsi avoir bénéficié d'une formation doctorale de grande qualité.

Je tiens également à saluer le travail et le professionnalisme de Sukhdeep Dhillon, mon co-encadrant de thèse. Sukhy m'a initié au travail expérimental et a activement encadré le développement des expériences de spectroscopie sur les lasers à cascade quantique. J'estime avoir beaucoup appris et gagné en efficacité en travaillant à ses côtés. Tout comme Jérôme, Sukhy ne m'a pas laissé seul face aux nombreuses difficultés expérimentales et s'est beaucoup investi dans la relecture de mon manuscrit, ce pour quoi je le remercie chaleureusement.

Une personne au sein du groupe mérite une reconnaissance particulière dans ce manuscrit : Nathan Jukam, postdoctorant que j'ai côtoyé presque tous les jours pendant ces 3 années. Nathan est un chercheur complet et impressionnant, qui est par-dessus tout un collègue de laboratoire très agréable. Je suis très honoré d'avoir fait ma thèse en collaboration avec lui.

J'ai aussi eu la chance de travailler avec d'autres personnes compétentes au sein du groupe de spectroscopie THz ultra-rapide. Je tiens ainsi à remercier Rakchanok Rungsawang, postdoctorante travailleuse et persévérante qui a passé de longues heures au laboratoire sur les expériences d'amorçage de l'émission d'un laser à cascade quantique et sur un autre projet de spectroscopie THz sous champ magnétique. Julien Madéo a été un doctorant et collègue sympathique, toujours disponible pour donner un coup de main sur les manips.

Nos travaux de recherche dans l'équipe de spectroscopie THz ultra rapide n'auraient pas pu aboutir à de bons résultats sans le concours de nos nombreux collaborateurs. Le groupe de Carlo Sirtori au laboratoire MPQ nous a beaucoup aidés grâce à des discussions fructueuses et la fourniture d'échantillons. Il en va de même pour le groupe de Rafaelle Colombelli à l'IEF, nos collaborateurs britanniques E.H. Linfield et A. G. Davies de Leeds, et P. Filloux et X. Marcadet de Thalès.

Il me semble essentiel de souligner la chance que j'ai eu de travailler dans un environnement riche en compétences au Laboratoire Pierre Aigrain. En dehors des compétences académiques, j'ai été impressionné par la disponibilité et compétence des techniciens, électroniciens, service cryogénie, personnel de la bibliothèque de physique et services administratifs. Cela a toujours été agréable d'interagir avec tous ces services du laboratoire, et notre équipe et moi-même devons beaucoup au travail de ces personnes qui nous ont dépannés plus d'une fois et ont résolu certains problèmes techniques qui nécessitaient une expertise poussée.

À cet égard, j'aimerais chaleureusement remercier les électroniciens : David Darson, Philippe Pace et Anne Denis pour leurs nombreux conseils dans l'optimisation du rapport signal sur bruit, et pour leur travail quant à la conception de nos détecteurs. Une équipe d'expérimentateurs ne serait rien sans la contribution essentielle de techniciens talentueux comme Pascal Morfin, Sylvain Pledel ou Jean-Charles Dumont, qui ont conçu et fabriqué des pièces sur mesure pour nos montages dans des délais souvent très courts et nous ont aidés et conseillés pour les opérations techniques délicates. Notre équipe doit également beaucoup à la disponibilité et à la qualité du travail de Didier Courtiade, David et Cyrill Le Gallo, qui nous ont souvent dépannés et ont contribué à l'optimisation de notre salle de manips.

Dans les expériences de spectroscopie sur les lasers à cascade quantique, nous avons eu besoin

quasi quotidiennement d'utiliser de l'He liquide, ce qui m'a amené à recourir régulièrement au service cryogénie. La gentillesse et la bonne humeur d'Olivier Andrieux, Thierry Desvignes, et François-René Ladan font de ce service cryogénie un lieu où il est agréable d'aller.

Finalement, j'aimerais remercier le personnel de la bibliothèque de physique qui a toujours été très accueillant et disponible. Le secrétariat du laboratoire a aussi été un lieu où je me rendais volontiers grâce à la sympathie d'Anne Matignon et Fabienne Renia.

Ces trois années de thèse m'ont permis de me lier d'amitié avec de nombreux doctorants, postdoctorants et stagiaires avec qui j'ai partagé de bons moments au laboratoire ainsi qu'à l'extérieur. Je les remercie tous pour la bonne ambiance qu'ils ont créée et pour leur soutien moral dans les moments plus difficiles de la thèse : Alice, Antoine, Cyrielle, Elisabeth, Fabien, Florent, François-Régis, Gustave, Hai Son, Jean, Jeanne, Julien, Lola, Michele, Nathan, Niall, Nicolas, Nok, Pierrick, Ricardo, Simon, Thomas, Timothée, Trung, Wolf.

Mes derniers mots de remerciements vont à mes parents qui m'ont toujours soutenu dans mes choix et m'ont permis de poursuivre ma passion pour les sciences jusqu'au doctorat. J'ai toujours pu compter sur leur soutien pendant ces 3 années.

Table des matières

1 Introduction générale **1**

2 Spectroscopie THz dans le domaine temporel **5**

2.1 Lasers femtosecondes à modes bloqués 5

2.2 Émetteurs térahertz 6

2.2.1 Rectification optique dans un cristal non centrosymétrique 6

2.2.2 Antennes photoconductrices 7

2.3 Détection cohérente THz 12

2.3.1 Antennes photoconductrices pour la détection cohérente 12

2.3.2 Principe de fonctionnement de la détection électro-optique 13

2.3.3 Montage de détection électro-optique 14

2.3.4 Choix du cristal de détection 15

2.3.5 Accord de phase dans le cristal 15

2.4 Principe d'une expérience de spectroscopie dans le domaine temporel 16

2.5 L'échantillonnage en temps équivalent 17

2.6 Montage expérimental 19

2.6.1 Composants optiques pour l'IR 20

2.6.2 Système d'acquisition des données 20

2.6.3 Absorption THz par l'air ambiant 21

2.6.4 Échos THz 23

2.7 Conversion du signal mesuré en champ électrique 23

2.8 Rapport signal sur bruit 24

2.8.1 Choix de la fréquence de modulation 25

2.8.2 Choix et utilisation des photodiodes 26

2.8.3 Comparaison au bruit de grenaille 26

2.9 Conclusion 29

3 Les lasers à cascade quantique **30**

3.1 Ingénierie quantique dans les hétérostructures semi-conductrices 31

3.1.1 Les lasers à diodes semi-conductrices 31
3.1.2 Les transitions intersousbandes 33
3.2 Principe de fonctionnement d'un laser à cascade quantique 36
3.2.1 État de l'art des lasers à cascade quantique 37
3.2.2 Propriétés générales des lasers à cascade quantique 38
3.2.3 Structures à cascade quantique étudiées 40
3.2.4 Propriétés spécifiques aux lasers à cascade quantique THz 43
3.2.5 Difficultés associées aux LCQ THz 45
3.3 Gain dans un laser à cascade quantique 47
3.3.1 Expression théorique du gain intrinsèque 47
3.3.2 Gain modal 48
3.3.3 Dynamique du gain dans les lasers 48
3.4 Déroulement de l'étude des LCQ 49

4 Spectroscopie du gain dans les LCQ en régime stationnaire 50
4.1 Études antérieures du gain dans les lasers 51
4.1.1 Techniques de mesure du gain 51
4.1.2 Avantages de la spectroscopie THz dans le domaine temporel 52
4.2 Protocole expérimental 53
4.2.1 Échantillons étudiés 53
4.2.2 Matériel utilisé 53
4.2.3 Principe de la mesure du spectre du gain 56
4.3 Mesures effectuées sur le laser " lié-continuum " ART 217 (2.1 THz) 60
4.3.1 Caractérisation LJV du laser ART 217 (2.1 THz) 61
4.3.2 Spectroscopie THz dans le domaine temporel appliquée au laser ART 217 (2.1 THz) 62
4.3.3 Étude du spectre du gain du laser ART 217 (2.1 THz) 63
4.4 Simulations du gain modal et de la structure de bande dans le laser ART 217 . . 68
4.4.1 Simulations du gain modal du mode plasmon 68
4.4.2 Simulation de la structure de bande 70
4.4.3 Conclusions 74
4.5 Étude du laser LO-phonon L234 (3.1 THz) par spectroscopie THz 75
4.5.1 Caractérisation LJV du laser L234 (3.1 THz) 76

4.5.2 Spectroscopie THz dans le domaine temporel appliquée au laser L234 (3.1 THz) . . . 76
4.5.3 Étude du spectre du gain du laser L234 (3.1 THz) . . . 77
4.5.4 Absorption sous le seuil . . . 79
4.6 Simulations du gain modal et de la structure de bande dans le laser LO-phonon L234 (3.1 THz) . . . 81
4.6.1 Simulations du gain modal . . . 81
4.6.2 Simulations de la structure de bande . . . 81
4.6.3 Conclusions . . . 84
4.7 Comparaison des lasers " lié-continuum " avec le laser LO-phonon . . . 84
4.8 Conclusions générales et perspectives . . . 86

5 Commutation du gain dans un LCQ 87
5.1 Protocole expérimental . . . 88
5.1.1 LCQ muni d'un interrupteur optique . . . 89
5.1.2 Matériel utilisé . . . 91
5.1.3 Déroulement de l'expérience . . . 92
5.2 Caractérisation de l'échantillon L 182 en régime stationnaire . . . 93
5.3 Caractérisation de l'échantillon L 182 en régime non stationnaire . . . 94
5.3.1 Premier passage par la cavité du LCQ . . . 94
5.3.2 Passages multiples par la cavité du LCQ . . . 97
5.3.3 Durée de fonctionnement de l'interrupteur Auston . . . 98
5.3.4 Dynamique de l'interrupteur Auston . . . 98
5.4 Conclusions et perspectives . . . 100

6 Contrôle de la phase du champ THz émis par un LCQ 102
6.1 Rappel de la problématique . . . 103
6.2 Protocole expérimental . . . 103
6.2.1 Principe de l'expérience . . . 104
6.2.2 Matériel utilisé . . . 105
6.3 Expériences d'amorçage d'un LCQ par des impulsions THz externes . . . 109
6.3.1 Caractéristique LJV . . . 110
6.3.2 Évolution du champ THz transmis par l'échantillon . . . 111
6.4 Expériences de saturation du champ THz . . . 113

6.4.1 Évolution du champ THz transmis en fonction de l'amplitude de l'impulsion THz externe . . . 114
6.4.2 Mesure de la puissance THz émise par le laser . . . 117
6.5 Influence de la forme de l'impulsion RF sur le champs THz mesuré . . . 118
6.5.1 Champs THz mesuré avec une impulsion RF régulière appliquée au LCQ . 118
6.5.2 Calcul de la durée du régime transitoire . . . 120
6.5.3 Comparaison à la transmission par un laser polarisé au-dessus du seuil . . 121
6.6 Évolution du spectre du champ THz transmis par l'échantillon . . . 122
6.6.1 Amplification d'impulsions THz générées localement . . . 124
6.7 Conclusions et perspectives . . . 127

7 Conclusions générales et Perspectives 129

A Feuilles de croissance des échantillons ART 217 (2.1 THz) et L234 (3.1 THz) 131
A.1 Feuille de croissance de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) . . . 131
A.2 Feuille de croissance de l'échantillon L234 (3.1 THz) . . . 133

B Spectre du gain des échantillons TRT 295 (2.9 THz) et V 298 (2.6 THz) 134
B.1 Caractéristiques LJV des deux échantillons . . . 134
B.2 Champs THz mesurés par spectroscopie dans le domaine temporel . . . 135
B.3 Largeur à mi-hauteur des spectres du gain . . . 136
B.4 Simulation du mode plasmon et du gain modal dans les échantillons TRT 295 (2.9 THz) et V 298 (2.6 THz) . . . 137

C Feuille de croissance de l'échantillon L 182 (2.4 THz) 138

D Circuit électronique générant les signaux radiofréquence 140

E Liste des publications 143

Table des figures

1.1 Représention schématique du spectre électromagnétique avec une mise en évidence des fréquences, énergies, températures et longueurs d'onde associées à chaque type de rayonnement. Une équivalence entre ces différents paramètres est donnée pour 1 THz. 2

2.1 Schéma d'une antenne photoconductrice à géométrie plane, constituée d'une anode et d'une cathode espacés de quelques dizaines de microns. 8

2.2 a) Exemple de champ THz mesuré par spectroscopie THz. b) Simulation du courant photocréé dans une antenne à géométrie plane par le faisceau NIR fs utilisée à partir d'un modèle de Drude-Lorentz [47] (courbe en pointillés) et dérivée de ce courant, proportionnelle au champ THz (courbe rouge). 10

2.3 a) Vue schématique du dessus d'une antenne photoconductrice avant le dépôt d'or pour éviter l'interférence destructive entre les champs de signes opposés générés entre les deux électrodes. b) Vue schématique du dessus d'une antenne photoconductrice avec un dépôt d'or. c) Vue en coupe latérale d'une antenne photoconductrice. 11

2.4 Représentation schématique d'un système de détection électro-optique. 14

2.5 Représentation schématique du déphasage entre impulsion NIR fs et impulsion THz à la traversée d'un cristal de ZnTe en raison de la différence entre la vitesse de groupe de l'impulsion NIR fs et de la vitesse de phase de l'impulsion THz. . . 16

2.6 Représentation schématique de l'échantillonnage en temps équivalent d'un champ THz. 18

2.7 Représention schématique de notre montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel. 19

2.8 a) Champ THz transmis par l'air ambiant. b) Spectre du champ THz affiché sur la figure a), obtenu en effectuant la transformée de Fourier de ce champ. c) Champ THz transmis par l'enceinte purgée à l'air sec. d) Spectre associé au champ THz représenté sur la figure c). 21

2.9 Champ THz transmis par les fenêtres d'un cryostat utilisé pour refroidir les échantillons étudiés. Cette trace temporelle fait apparaître les échos dus aux interfaces traversées dans l'antenne photoconductrice et dans le cryostat. 22

2.10 Schéma du circuit électronique de la balance de photodiodes. 24

2.11 a) Dépendance en fonction de la fréquence de modulation de l'antenne photoconductrice du maximum de signal THz mesuré, et du bruit. b) Dépendance du bruit et du rapport signal sur bruit en fonction de la fréquence de modulation appliquée à l'antenne et servant de référence à la détection synchrone. Un trait vert en pointillés indique la fréquence à laquelle l'antenne a été modulée au cours des expériences présentées dans ce manuscrit. 25

2.12 a) Comparaison du spectre du bruit de la balance de photodiodes avec le bruit de grenaille calculé en additionnant toutes les sources de bruit quantique. b) Spectre du bruit en sortie de la balance de photodiode pour une seule diode éclairée (courbes verte et rouge) ou lorsque les deux diodes sont éclairées (courbe noire). Une résistance de 1 kΩ est rajoutée au circuit de transimpédance. Elle évite la saturation de l'amplificateur lorsqu'une seule photodiode est éclairée par le laser. L'intervalle délimité par les traits verts indique les fréquences de modulation utilisées dans le cadre des expériences menées au laboratoire. 28

3.1 a) Schéma du diagramme de bandes dans l'espace des phases d'une diode laser semi-conductrice à puits quantique (centré sur la vallée Γ). b) Densité d'états d'une diode laser à puits quantique. 32

3.2 Représentation des fonctions d'onde électroniques dans un puits quantique de GaAs/AlGaAs calculées numériquement. 34

3.3 a) Représentation schématique de sousbandes d'energie de la bande de conduction d'un semiconducteur dans l'espace des phases. b) Densité d'état associée à des transitions intersousbandes. 36

3.4 Représentation des modules au carré des fonctions d'onde électroniques dans un superréseau issus d'un calcul numérique. On voit apparaître des minibandes. . . . 38

3.5 Représentation des niveaux d'énergie intervenant dans l'émission laser dans la bande de conduction d'un laser à cascade quantique. 39

3.6 Représentation de la structure de bande du laser à cascade quantique " lié-continuum " ART 217 (2.1 THz), faisant apparaître les modules au carré des fonctions d'onde électroniques calculées numériquement. 41

3.7 Structure de bande du laser à dépopulation par émission de phonon LO L234. Une période est encadrée par un rectangle en pointillés. 42

3.8 Représentation schématique d'un ruban laser à cascade quantique. Le mode plasmon servant à propager l'onde électromagnétique dans le guide est représenté en pointillés rouges. 44

3.9 Représentations schématiques des principaux mécanismes de relaxation non radiatifs pouvant intervenir dans les lasers à cascade quantique sur des diagrammes de dispersion. a) Émission de phonons LO depuis le niveau excité et fondamental d'une transition THz. La flèche dorée représente la transition radiative. b) Activation thermique de l'émission d'un phonon LO. La flèche rouge représente la transition induite par excitation thermique. La flèche verte la relaxation par émission de phonon LO. c) Interactions électron-électron (flèches marrons) et excitation thermique (flèches rouges). 46

4.1 Représentation schématique du montage expérimental permettant d'effectuer une caratéristique courant-tension (JV) et une mesure de la puissance lumineuse émise par le LCQ (LV). 55

4.2 Représentation schématique de la position du ruban laser vu à travers l'orifice percé dans une plaque métallique apposée à l'échantillon servant à éviter un couplage de l'onde THz dans des modes transverses à fort recouvrement avec le substrat. 56

4.3 Représentation schématique des deux techniques de modulation utilisées pour mesurer le signal transmis par les échantillons laser. a) Antenne et LCQ sont modulés à la même fréquence et ont même rapport cyclique. b) Le LCQ est modulé à un rapport cyclique et à une fréquence égaux à la moitié de ceux de l'antenne. 57

4.4 a) Champ THz typique émis par notre émetteur THz et b) sa transformée de Fourier. Les traits verts en pointillés indiquent les fréquences d'émission des échantillons laser étudiés lors de nos expériences. Des courbes gaussiennes modélisant les raies d'émission des lasers sont représentées en noir sur le spectre. 58

4.5 Représentation du principe de mesure des composantes amplifiées et absorbées par un échantillon laser dans une expérience de spectroscopie THz dans le domaine temporel. a) Champ THz généré par l'antenne. b) Spectre du champ généré par l'antenne. c) Champ THz mesuré en sortie du LCQ. d) Spectre du champ THz transmis par le LCQ. 60

4.6 Caractéristiques de luminescence (LJ) et courant-tension (JV) de l'échantillon ART 217 (2.1 THz). a) Caractéristiques de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) pour une température de 4 K. b) Dépendance des caractéristiques LJ et JV du laser ART 217 (2.1 THz) en fonction de la température. Les traits verts en pointillés marquent les tensions de polarisation pour lesquelles des données expérimentales sont présentées dans ce chapitre. 61

4.7 a) Champs THz servant de référence (courbe noire) et transmis par l'échantillon ART 217 (2.1 THz) polarisé au-dessus du seuil. b) Transformée de Fourier du signal de référence et du signal transmis par le LCQ polarisé au-dessus du seuil. c) Spectre du gain extrait d'une mesure effectuée pour une densité de courant injectée dans le LCQ de 118 A/cm^2. 62

4.8 a) Champs THz transmis par l'échantillon ART 217 (2.1 THz) pour 8 tensions de polarisation appliquées différentes, identifiées par les densités de courant injectées correspondantes. b) Transformée de Fourier des champs THz transmis pour le régime de luminescence sous le seuil. c) Transformée de Fourier des champs THz transmis par l'échantillon lorsque ce dernier est dans le régime de fonctionnement laser. d) Transformée de Fourier des champs THz mesurés pour des courants injectés supérieurs aux courants qui désalignent la structure du LCQ. 64

4.9 Spectres du gain de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) pour différentes densités de courant injectées. a) Spectres du gain sous le seuil. b) Spectres du gain dans le régime laser. c) Spectres du gain au-delà de la densité de courant désalignant la structure du LCQ. 65

4.10 a) Caractéristiques (LJV) de l'échantillon ART 217 (2.1 THz). b) Évolution du gain modal et de la largeur à mi-hauteur du spectre du gain de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) en fonction de la tension de polarisation appliquée. Les zones colorées vertes représentent les tensions de polarisation inférieures au seuil laser et les zones marrons aux tensions de polarisation pour lesquelles les structures sont désalignées. 67

4.11 Représentation du champ électrique au carré (mode plasmon TM sur lequel l'échantillon ART 217 (2.1 THz) se couple au-dessus du seuil) en fonction de la position. Les pertes dues aux porteurs libres ainsi que le facteur de recouvrement avec la région active sont donnés. La contribution du métal situé sous le substrat pour le confinement du mode est ici prise en compte du fait de la grande longueur d'onde du laser. 69
4.12 Tableau récapitulatif des différentes valeurs de gain mesurées et calculées pour les trois échantillons " lié-continuum " étudiés. 70
4.13 Évolution de la différence d'énergie entre niveau injecteur et niveau excité dans les simulations de la structure de bande en fonction de la tension de polarisation appliquée au LCQ ART 217. 71
4.14 a), b) et c) Structure de bande obtenue en résolvant l'équation de Schrödinger pour différentes tensions de polarisation appliquées au LCQ ART 217 (2.1 THz). d), e) et f) Schématisation de la position du niveau excité par rapport aux mini-bandes pour les trois tensions de polarisations représentées, ainsi qu'une simulation du spectre du gain par des gaussiennes centrées sur les fréquences des transitions identifées par les simulations en a), b) et c), de largeur à mi-hauteur égale à 0.2 THz, et d'amplitude proportionnelle à la force d'oscillateur. 72
4.15 Caractéristiques de luminescence (LJ) et courant-tension (JV) de l'échantillon laser LO-phonon L234. Les traits verts en pointillés marquent les tensions de polarisation étudiées sur cet échantillon. 75
4.16 a) Champs THz transmis par l'échantillon L234 (3.1 THz) pour différentes densités de courant injectées dans le LCQ. Le trait gris en pointillé met en évidence un changement de la phase du signal transmis lors du passage au-dessus du seuil, traduisant un passage d'une cavité absorbante à une cavité amplificatrice.b) Transformées de Fourier des champs THz transmis par le LCQ polarisé sous le seuil. c) Transformées de Fourier des champs THz transmis par le LCQ en régime de fonctionnement laser. 77
4.17 a) Caractéristique LJV du laser LO-phonon L234. b) Représentation du gain modal à 3.1 THz du laser L234 en fonction du courant injecté dans cet échantillon. 78
4.18 a) Spectres du gain de l'échantillon LO-phonon L234 pour 3 densités de courant injectées sous le seuil. b) Spectres du gain de l'échantillon LO-phonon L234 pour 3 densités de courant injectées au-dessus du seuil. 79

4.19 a) Spectres du gain sous le seuil de l'échantillon L234 (3.1 THz), mettant en évidence des absorptions à basse et haute fréquence. b) Variation des coefficients d'absorption en fonction de la densité de courant injectée sous le seuil. c) Décalage en fréquence des pics d'absorption basse et haute fréquence en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ sous le seuil. 80

4.20 a), b) et c) Structures de bandes simulées pour trois tensions de polarisation appliquées à la structure de l'échantillon L234. c), d) et e) Représentation schématique des transitions électroniques entre niveaux injecteur, excité, fondamental et éjecteur. 82

4.21 Courbes de niveaux des forces d'oscillateur entre différents niveaux d'énergies présents dans l'échantillon L234. L'axe des abscisses représente la tension de polarisation et l'axe des ordonnées l'espacement en énergie entre niveaux. Le trait vert représente la position du seuil laser à 12.5 kV/cm. 83

4.22 a) Courbe d'évolution du gain modal à 2.1 THz du laser ART 217. Les lignes rouges représentent l'extrapolation linéraire du gain en-dessous et au-dessus du seuil. Le trait bleu en pointillés correspond à une représentation de l'allure probable d'évolution du gain réel en régime laser en l'absence de saturation. b) Les mêmes informations relatives à l'échantillon L234 émettant à 3.1 THz. 85

4.23 Tableau récapitulatif des différentes valeurs de gain intrinsèque estimées pour les lasers présentés dans ce chapitre. 85

5.1 Représentation schématique des échelles de temps intervenant dans l'expérience. En vert et rouge, les signaux électriques servant à polariser l'antenne photoconductrice et le LCQ. En bleu clair, les impulsions THz générées par l'antenne. La durée du régime transitoire a été calculée et mesurée grâce aux résultats présentés dans le chapitre 6. 89

5.2 a) Représentation schématique de l'échantillon laser muni de l'interrupteur Auston, et b) circuit électrique équivalent de ce dispositif. 90

5.3 Représentation schématique du dispositif expérimental utilisé pour étudier un LCQ en régime non stationnaire. À la différence du dispositif présenté au chapitre 4 il y a deux lignes à retard dont l'une sert à faire varier le temps d'arrivée du faisceau NIR excitant l'interrupteur Auston par rapport à l'onde THz issue de l'antenne. Le trajet optique de ce faisceau est représenté sur le schéma par des couleurs plus contrastées que les autres composantes du montage. 92

5.4 Caractéristiques courant-tension (JV) et courbes de puissance lumineuse émise (LJ) de l'échantillon L 182 utilisé dans l'expérience présentée dans ce chapitre. Le rond noir indique la densité de courant à la laquelle le LCQ est porté sous le seuil lorsque l'interrupteur Auston est inactif. Le rond bleu indique la densité de courant à laquelle l'activation de l'interrupteur Auston porte, idéalement, le LCQ au-dessus du seuil. 94

5.5 a) Champs THz issus de mesures de spectroscopie dans le domaine temporel sur l'échantillon L 182 en régime stationnaire polarisé au-dessus du seuil (courbe rouge) et non polarisé (courbe noire, référence), et b) transformée de Fourier de ces champs. 95

5.6 a) Champs THz mesurés après un unique passage par l'échantillon. Le laser est polarisé juste sous le seuil à 168 A/cm^2. La courbe noire correspond au régime stationnaire, la courbe bleue au régime non stationnaire (interrupteur Auston activé). b) Spectres de ces deux champs. c) Représentation schématique du gain : en noir, le gain saturé en régime stationnaire ; en bleu, le gain accessible en régime transitoire. d) Gain mesuré en régime stationnaire et transitoire pour des densités de courant injectées dans le LCQ proches du seuil. 96

5.7 a), c), e) Champs THz mesurés après respectivement trois, cinq et sept passages par l'échantillon. Le laser est polarisé juste sous le seuil avec une densité de courant injectée de 168 A/cm^2. Les courbes noires correspondent au régime stationnaire, les courbes bleues au régime non stationnaire (interrupteur Auston activé). b), d), e) Spectres des champs représentés respectivement sur les figures a), c) et e). Une représentation schématique de la longueur d'échantillon traversée est affichée à droite de chaque spectre par des flèches rouges pour trois, cinq et sept passages par le LCQ. 97

5.8 a) Évolution du gain modal à 2.4 THz et 2.46 THz en fonction du délai Δt entre impulsion THz et faisceau NIR servant à actionner l'interrupteur Auston. b) Évolution du gain modal à 2.46 THz sur 400 ps présentant des oscillations d'une période de 240 ps aussi bien en-dessous (courbe orange) qu'au-dessus (courbe rouge) du seuil laser en régime non stationnaire. 99

6.1 a) Représentation schématique des variations de phase perçues par l'impulsion NIR fs entre deux mesures de l'amplitude THz d'un laser à cascade quantique. b) Représentation schématique de l'effet obtenu sur la phase d'un LCQ amorcé par une impulsion THz externe. 104

6.2 Représentation schématique simplifiée du circuit électronique servant à porter l'échantillon au-dessus du seuil au même instant que l'arrivée de l'onde THz. . . . 106

6.3 Représentation schématique du dispositif expérimental permettant de mesurer l'émission d'un laser à cascade quantique. 108

6.4 a) Forme des signaux RF appliqués au LCQ. b) Caractéristiques courant-tension et de puissance lumineuse du laser à cascade quantique, soumis à un signal RF (courbe rouge), et non soumis à un signal RF (courbe noire). c) Représentation schématique des impulsions RF combinées aux tensions électriques appliquées au LCQ sur une période. 109

6.5 Schéma illustrant l'arrivée de l'onde THz dans l'échantillon par rapport à l'instant d'application du signal RF au laser à cascade quantique. 111

6.6 a) Champ électrique THz mesuré en sortie du laser à cascade quantique. Les flèches vertes indiquent la position d'un écho THz dans l'antenne photoconductrice, qui est amplifié en même temps que l'impulsion principale. b) Courbe noire : évolution de la valeur crête-à-crête des impulsions THz effectuant plusieurs passages par le LCQ (enveloppe du champ THz affiché en a)). Courbe rouge : allure du signal RF appliqué au LCQ. c) Champ THz quasi-monochromatique mesuré aux temps longs. 112

6.7 a) Spectres normalisés des champs THz générés par l'antenne photoconductrice soumise à différentes tensions de polarisation entre 30 mV et 4 V. b) Évolution de l'amplitude spectrale à 2.14 THz de l'onde THz issue de l'antenne en fonction de la tension de polarisation appliquée à cette dernière. 114

6.8 a) Champs THz transmis par l'échantillon laser soumis à un signal RF pour différentes amplitudes de l'impulsion THz générée par l'antenne. b) Évolution de l'écart quadratique moyen du champ THz transmis par l'échantillon et de la valeur crête à crête de ce champ pour différentes tensions de polarisation appliquées à l'antenne photoconductrice. 116

6.9 a) Facteur d'amplification de la puissance de l'onde THz couplée dans le ruban laser en fonction de la tension de polarisation appliquée à l'antenne photoconductrice servant à la générer. b) Spectres de l'impulsion générée par l'antenne sans passer par le LCQ (courbe rouge) et après amplification dans l'échantillon soumis aux impulsions RF, pour une tension de polarisation de 0.25 V appliquée à l'antenne. c) Spectres de l'impulsion générée par l'antenne sans passer par le LCQ (courbe rouge) et après amplification dans l'échantillon laser soumis aux impulsions RF, pour une tension de polarisation de 30 mV appliquée à l'antenne. 117

6.10 Impulsions RF appliquées à l'échantillon pour le porter au-dessus du seuil. En noir, l'impulsion longue mais dont la mesa est irrégulière. En rouge, l'impulsion courte mais dont l'allure est plus régulière. Les traits verts en pointillés délimitent la zone du front montant des impulsions RF. 119

6.11 a) Champ électrique THz mesuré en sortie du laser à cascade quantique auquel on applique une impulsion RF de courte durée. b) Évolution de la valeur crête-à-crête des impulsions THz effectuant plusieurs passages par le LCQ (enveloppe du champ THz affiché en a)). 120

6.12 Champ électrique THz mesuré en sortie du LCQ polarisé sous le seuil et soumis à une impulsion RF (courbe verte) et avec le LCQ polarisé au-dessus du seuil en l'absence de signal RF (courbe rouge). 121

6.13 Spectres d'un train d'impulsions THz transmises par la cavité de l'échantillon. a) Spectre du train d'impulsions correspondant aux 500 premières ps de transmission THz par l'échantillon. b) Spectre du deuxième train d'impulsions transmis par l'échantillon. c) Spectre du troisième train d'impulsions transmis par l'échantillon. d) Spectre du quatrième train d'impulsions transmis par le laser. e) Représentation du découpage des différents trains d'impulsions sur l'onde THz mesurée entre 0 et 2.2 ns. 123

6.14 a) Champ électrique THz mesuré en sortie du laser à cascade quantique. b) Champ THz mesuré durant les 500 premières ps d'amplification de l'impulsion initiale. c) Évolution de la valeur crête-à-crête des impulsions THz effectuant plusieurs passages par le LCQ (enveloppe du champ THz affiché en a)). 124

6.15 Spectres d'un train d'impulsions THz générées localement dans le laser soumis à des impulsions RF le polarisant au-dessus du seuil. a) Pour les dix premiers train d'impulsions, plusieurs modes de cavité sont discernables. b) Pour le deuxième train d'impulsions, le nombre de modes de cavité diminue et deux modes dominent les autres. c) Le troisième train d'impulsions présente un spectre essentiellement monomode. d) Le dernier train d'impulsions a un spectre monomode. e) Représentation du découpage des différents trains d'impulsions sur l'onde THz mesurée entre 0 et 2.2 ns. 126

6.16 Spectres de la trace THz complète transmise par l'échantillon laser pendant 2.2 ns. a) Dans le cas de l'impulsion THz générée avec l'antenne photoconductrice. b) Dans le cas de l'impulsion THz générée localement par excitation optique au sein de l'échantillon. 127

B.1 a) Caractéristiques LJV du laser TRT 295 (2.9 THz). Les traits en pointillés verts indiquent les tensions pour lesquelles des données sont fournies par la suite. b) Caractéristiques LJV du laser V 298 (2.6 THz). 135

B.2 a) Champs THz mesurés par spectroscopie dans le domaine temporel sur l'échantillon TRT 295 (2.9 THz). La zone en blanc représente les champs pour lesquelles le LCQ fonctionne en régime laser. La zone en vert représente les champs pour lesquels le laser est polarisé sous son seuil. La zone en beige, les champs pour lesquels le laser est polarisé au-delà de la tension de désalignement du LCQ. b) Données relatives à l'échantillon V 298 (2.6 THz). 135

B.3 a) Caractéristiques LJV de l'échantillon TRT 295 (2.9 THz), suivi de l'évolution du gain modal à 2.9 THz en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ (ronds blancs). L'évolution de la largeur à mi-hauteur est indiquée par des points bleus. b) Mêmes données pour l'échantillon V 298 (2.6 THz) 136

B.4 a) Représentation du carré du champ électrique (mode plasmon TM sur lequel l'échantillon TRT 295 (2.9 THz) se couple en régime laser). Les pertes dues aux porteurs libres ainsi que le facteur de recouvrement avec la région active sont donnés. b) Représentation du carré du champ électrique (mode plasmon TM sur lequel l'échantillon V 298 (2.6 THz) se couple en régime laser). 137

D.1 Représentation schématique du circuit électronique servant à porter l'échantillon au-dessus du seuil au même instant que l'arrivée de l'onde THz. 141

Chapitre 1

Introduction générale

Le spectre électromagnétique est aujourd'hui exploité des ondes radio aux très basses fréquences jusqu'aux rayons X aux fréquences les plus élevées. Les possibilités offertes par les ondes électromagnétiques de faible énergie (radio, micro-ondes, radar) sont exploitées grâce à des dispositifs électroniques (antennes, klystrons, carcinotrons) qui permettent de couvrir un spectre large jusqu'à des dizaines de GHz. Du coté des hautes énergies, de l'infrarouge jusqu'au rayonnement UV, nous disposons de sources, détecteurs et guides s'appuyant sur des technologies optiques (lasers, fibres optiques, caméras CCD).

Cependant, à des énergies intermédiaires entre la gamme radar et infrarouge correspondant aux fréquences de 0.3 THz à 30 THz environ situées dans l'infrarouge lointain, ni les technologies optiques ni les dispositifs électroniques ne permettent de fournir des sources et détecteurs pratiques d'utilisation. Pour cette raison on parle de « gap THz ». La figure 1.1 présente les caractéristiques principales du rayonnement THz sur un spectre électromagnétique.

Les applications potentielles du domaine THz sont nombreuses et motivent le développement de technologies optoélectroniques permettant de combler le gap de l'infrarouge lointain [1], [2]. En effet, ce rayonnement de faible énergie (de l'ordre de quelques meV) permet par exemple d'étudier des molécules organiques et des tissus biologiques sans les endommager. De nombreuses molécules présentent des raies d'absorption correspondant à des résonances rotationnelles et vibrationnelles dans le THz : l'eau (H_2O) [3], le disulfure d'hydrogène (H_2S) [4], les brins d'ADN [5], [6] *etc.* Les substances chimiques telles que les drogues, explosifs et médicaments ont ainsi une signature spécifique dans le THz. Par ailleurs la plupart des matériaux diélectriques : plastiques,

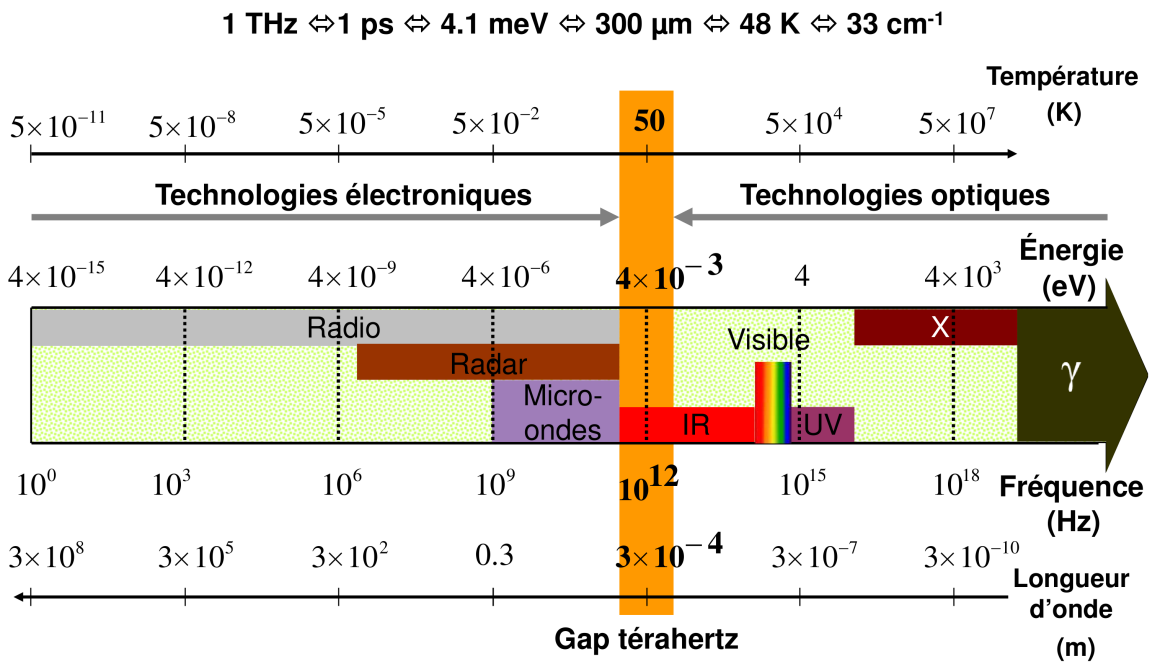


FIGURE 1.1: Représention schématique du spectre électromagnétique avec une mise en évidence des fréquences, énergies, températures et longueurs d'onde associées à chaque type de rayonnement. Une équivalence entre ces différents paramètres est donnée pour 1 THz.

béton, emballages, cartons et les semiconducteurs intrinsèques sont transparent dans le THz ce qui permet d'entrevoir des applications pour des scanners performants et non destructifs dans le domaine militaire, l'industrie agroalimentaire, pharmaceutique, électronique, la sécurité et l'observation atmosphérique. Il est à noter que les métaux sont eux très réfléchissants pour les ondes THz. L'utilisation de l'infrarouge lointain dans la recherche fondamentale est également possible, dans la mesure où de nombreux phénomènes physiques dans les solides interviennent entre 0.3 THz et 30 THz, notamment les transitions intersousbandes [7], les gaps des supraconducteurs [8], [9] et les excitations de spins [10].

Dans les années 80, l'apparition de lasers impulsionnels femtoseconde a permis d'entrevoir des moyens compacts de générer du THz pour des études en spectroscopie. En effet, il est possible de générer une onde THz dont le champ suit les variations de l'enveloppe d'une impulsion femtoseconde [11] par rectification optique dans des matériaux non-linéaires [12], [13] ou par l'utilisation d'antennes photoconductrice [14], [15]. Finalement, la détection par effet électro-optique ou à l'aide d'antennes photoconductrices [16] permet de mesurer un champ THz et à ouvert la voie à la spectroscopie THz dans le domaine temporel [17], [18], [19], une technique expérimentale

aujourd'hui répandue avec la commercialisation des lasers femtoseconde saphir dopés titane.

C'est cette technique expérimentale que nous avons utilisée dans cette thèse pour étudier des nanostructures semiconductrices. Dans le chapitre 2, nous décrivons en détail le fonctionnement d'un dispositif de spectroscopie THz dans le domaine temporel, et fournissons une étude du rapport signal sur bruit dans notre montage expérimental.

La spectroscopie THz dans le domaine temporel a en particulier été appliquée à l'étude des transitions intersousbandes dans les lasers à cascade quantique. Ces dispositifs unipolaires sont des candidats potentiels pour fournir une source compacte de lumière cohérente comblant le gap THz. Depuis l'apparition des premiers laser à cascade quantique émettant dans l'infrarouge en 1994 [20], et leur développement jusqu'à fournir une source commercialisable émettant dans le moyen infrarouge à température ambiante [21], ces lasers ont subi un développement important. En 2002, le laser à cascade THz a fait son apparition [22], mais son émission étant limitée à des températures cryogéniques il est nécessaire d'effectuer une étude approfondie des mécanismes qui régissent son fonctionnement. Dans le chapitre 3, nous présentons un état de l'art des lasers à cascade quantique ainsi que les bases de leur fonctionnement.

Dans le chapitre 4, nous présentons une étude de deux structures à cascade quantique réalisée grâce à la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Cette étude exploite la possibilité offerte par la spectroscopie THz dans le domaine temporel d'étudier des propriétés statiques de matériaux. Au cours de ces expériences nous avons mesuré le spectre du gain de 4 lasers à cascade THz [23]. Le spectre du gain révèle de nombreuses informations sur le fonctionnement d'un laser. Il donne en particulier accès aux pertes et au gain modal du laser sur une gamme fréquentielle large de 4 THz, que l'on peut étudier en fonction de la tension appliquée à l'échantillon. Nous avons pu observer l'évolution du gain en-dessous et au-dessus du seuil, et constater la saturation du gain à sa valeur au seuil au-delà de la transition laser. En étudiant l'évolution de la largeur à mi-hauteur des spectres du gain, nous avons constaté un rétrécissement du spectre du gain lorsque le courant injecté dans un laser à cascade quantique augmente [24]. Des simulations de structures de bande ont permis d'identifier les transitions électroniques à l'origine du gain et de pertes dans ces structures et donner une explication au rétrécissement du spectre du gain. Par ailleurs, ces simulations nous ont aussi permis de déceler une fuite de courant dans un laser à cascade quantique présentant un seuil élevé, ce qui permet d'envisager des améliorations dans le dessin de structures ultérieures [25].

Dans le chapitre 5, nous exploitons la possibilité offerte par la spectroscopie THz dans le domaine temporel d'étudier des phénomènes transitoires sur des échelles de temps de l'ordre de

la picoseconde. Notre étude s'intéresse au régime non stationnaire d'un laser à cascade quantique, dans lequel ce dernier n'est pas parcouru par un champ laser. Ce régime est atteint par une commutation du gain et permet de connaître le gain modal non saturé du laser dans la cavité. Le gain modal supérieur à celui du régime stationnaire qu'offre un tel milieu est utilisé pour amplifier efficacement une onde THz. L'expérience a été réalisée à l'aide d'un interrupteur optique Auston intégré à un laser à cascade quantique pour le porter au-dessus du seuil pendant une durée brève de 100 ps environ. Nous mesurons un gain modal deux fois supérieur au régime stationnaire et obtenons un excédent d'amplification sur la puissance THz transmise par le laser à cascade de 26 dB [26].

Finalement, nous présentons dans le chapitre 6 une expérience qui permet de contrôler la phase du champ électrique émis par un laser à cascade quantique THz polarisé au-dessus de son seuil [27]. La mesure du champ THz émis par un laser à cascade quantique devient alors possible par la spectroscopie dans le domaine temporel, ce qui offre la possibilité d'étudier l'évolution dans le temps du champ électrique émis par un échantillon et disposer d'une source THz quasi-monochromatique de forte amplitude. Dans cette expérience, une impulsion externe d'amplitude supérieure au champ issu de l'émission spontanée dans la cavité de l'échantillon amorce l'émission laser. Le laser est porté au-dessus du seuil grâce à une impulsion électrique synchronisée avec l'impulsion THz. La mesure de l'émission cohérente d'un laser à cascade quantique permet d'étudier la dynamique de formation d'un champ laser dans la cavité d'un échantillon dans les premières nanosecondes qui suivent le passage au-dessus du seuil, et de mesurer un champ électrique THz de forte amplitude avec une détection électro-optique.

Chapitre 2

Spectroscopie THz dans le domaine temporel

Le développement de la spectroscopie THz dans le domaine temporel a émergé grâce à la découverte en 1988, par le groupe de Grischkowsky de la propagation d'impulsions THz d'un émetteur à un récepteur par l'air libre [28], [29]. Ceci a été rendu possible grâce à l'apparition de lasers à pulsés femtoseconde, utilisés dans l'émission et la détection cohérente de lumière THz [30], [17]. Aujourd'hui, la spectroscopie THz dans le domaine temporel permet d'étudier les propriétés de nombreux systèmes en biologie et matière condensée [31], avec des performances comparables à celles obtenues dans des montages utilisant des spectromètres à transformée de Fourier (FTIR) [32]. La spectroscopie dans le domaine temporel présente l'avantage d'offrir un rapport signal sur bruit élevé aux fréquences comprises entre 0.5 THz et 3 THz, pouvant aller typiquement jusqu'à 10^4 *[32]. Elle est insensible au rayonnement thermique ambiant du fait d'une détection cohérente et permet d'étudier l'évolution dans le temps d'un paramètre physique par la sélection d'une fenêtre temporelle d'acquisition. Dans ce chapitre, nous décrivons les propriétés de l'émetteur et du détecteur utilisé dans notre montage expérimental de spectroscopie térahertz par transmission dans le domaine temporel. Nous détaillons le principe d'une expérience de spectroscopie employant cette technique et présentons une étude menée en vue d'optimiser le rapport signal sur bruit dans notre montage.*

2.1 Lasers femtosecondes à modes bloqués

La spectroscopie THz dans le domaine temporel repose sur l'utilisation de lasers femtoseconde pour générer et détecter des ondes THz. Nous consacrons cette partie à une brève description

des spécificités du laser le plus répandu pour générer des impulsions sub-picoseconde : le laser saphir dopé titane.

L'efficacité du saphir dopé titane (Ti^{3+} : Al_2O_3) pour produire des faisceaux de lumière continue dans le proche infrarouge a été mise en évidence dès 1986 [33]. Ce matériau présente un gain sur une gamme spectrale très large centrée sur 375 THz (800 nm). De ce fait, il permet de générer des impulsions très brèves, inférieure à la dizaine de femtosecondes et accordable entre 650 nm et 1100 nm. Le laser femtoseconde saphir dopé titane utilisé ici se compose d'un faisceau de lumière continue à 532 nm d'une puissance de 8 W pompant un cristal de Ti^{3+} : Al_2O_3 disposé au sein d'une cavité optique. Cette cavité permet d'atteindre des puissances moyennes de faisceau infrarouge pulsé de 1.5 W. L'impulsion femtoseconde est obtenue par blocage des modes de cavité en utilisant l'effet Kerr optique [34], [35]. L'impulsion générée possède alors une durée typique de 100 fs et un spectre gaussien centré sur 820 nm, de largeur à mi-hauteur d'environ 12 nm. La durée de cette impulsion permet d'envisager deux moyens de générer du rayonnement THz : par rectification optique dans un cristal électro-optique ou par la création d'un courant transitoire dans une antenne photoconductrice.

2.2 Émetteurs térahertz

Avec l'arrivée des lasers femtoseconde (fs) dans les années 80, deux techniques de génération de rayonnement infrarouge ont pu être utilisées pour émettre des ondes THz : la rectification optique dans des cristaux non centrosymétriques, et l'accélération de charges dans des antennes photoconductrices. Nous donnons un bref aperçu de la rectification optique avant de présenter le fonctionnement des antennes photoconductrices, émetteurs adaptés à nos expériences en vertu des propriétés du rayonnement qu'ils génèrent et de la simplicité de leur utilisation.

2.2.1 Rectification optique dans un cristal non centrosymétrique

Le premier moyen mis en œuvre pour générer du rayonnement THz à l'aide d'impulsions lasers ultra-brèves à été la rectification optique dans un cristal non linéaire [11]. Il s'agit d'un effet non linéaire d'ordre 2 intervenant dans des cristaux non centrosymétriques tels que le DAST (4-**D**imethyl**A**mino-N-methyl-4-**S**tilbazolium **T**osylate), le ZnTe ou le GaP, qui repose sur le mélange des fréquences constituant le faisceau fs proche infrarouge (NIR pour " Near Infrared ") traversant ces cristaux. La rectification optique génère en sortie du cristal une impulsion dont le spectre est constitué de la différence des fréquences contenues dans le spectre de l'impulsion proche infrarouge (d'une largeur de l'ordre de la dizaine de meV). Le spectre de l'impulsion

générée a alors une largeur de l'ordre de quelques meV, ce qui correspond à une onde THz. La rectification optique produit le même effet que la rectification d'un signal électrique et permet de générer une onde dont les variations sont données par l'enveloppe du signal femtoseconde. Avec une impulsion de $\Delta t = 100$ fs de durée, on génère un champ de largeur typique $\Delta\nu = \frac{1}{\Delta t} = 10$ THz. Le champ rayonné par rectification optique est propotionnel à la susceptibilité d'ordre 2 ($\chi^{(2)}$) du cristal et à l'intensité du faisceau NIR. Cette méthode permet de générer des faisceaux de quelques μW de puissance avec un spectre compris entre 0.5 THz et une dizaine de THz. Plus de détail sur le fonctionnement de cette technique sont accessibles dans les références suivantes : [12], [13].

2.2.2 Antennes photoconductrices

La deuxième méthode communément employée dans les expériences de spectroscopie THz pour générer du rayonnement dans l'infrarouge lointain consiste à éclairer des antennes photoconductrices avec un laser femtoseconde. Nous décrivons tout d'abord la physique d'une antenne photoconductrice à géométrie simple. Nous décrivons ensuite les antennes spécifiquement utilisées dans nos expériences et discutons de l'intérêt de cet émetteur pour notre montage expérimental.

Principe de fonctionnement d'une antenne

Une antenne photoconductrice est composée d'une anode et d'une cathode métalliques formant un condensateur déposés sur du GaAs semi-isolant. Un tel dispositif s'appelle communément un interrupteur Auston [36], et permet d'émettre jusqu'à la centaine de μW de puissance THz avec un spectre compris entre 0.5 THz et une dizaine de THz environ. Le schéma de principe d'un tel dispositif est représenté sur la figure 2.1. Le principe de fonctionnement d'un interrupteur Auston repose sur l'excitation d'électrons au-dessus de la bande interdite de la couche de GaAs semi-isolante, formant ainsi des paires électrons trous, par l'impulsion NIR fs à 800 nm. Ces porteurs sont ensuite accélérés par l'application d'une tension aux bornes du condensateur, et rayonnent un champ électrique proportionnel à la dérivée du courant généré par ce déplacement.

Dans le cas des antennes photoconductrices que nous avons utlisé, les paires électrons-trous créées dans le GaAs semi-isolant peuvent être décrites comme un dipôle p(t). L'application d'une tension aux bornes de l'antenne fait apparaître un courant i(t) dérivant de ce dipôle dépendant du temps tel que : $i(t) = \frac{\mathrm{d}p(t)}{\mathrm{d}t}$. Le champ térahertz rayonné à partir des variations de ce courant perçu à une distance R de la source est de la forme [37] :

$$E_{\mathrm{THz}}(t) = \frac{\mu_0 \sin\phi}{4\pi R}\frac{\mathrm{d}i(t)}{\mathrm{d}t} \tag{2.1}$$

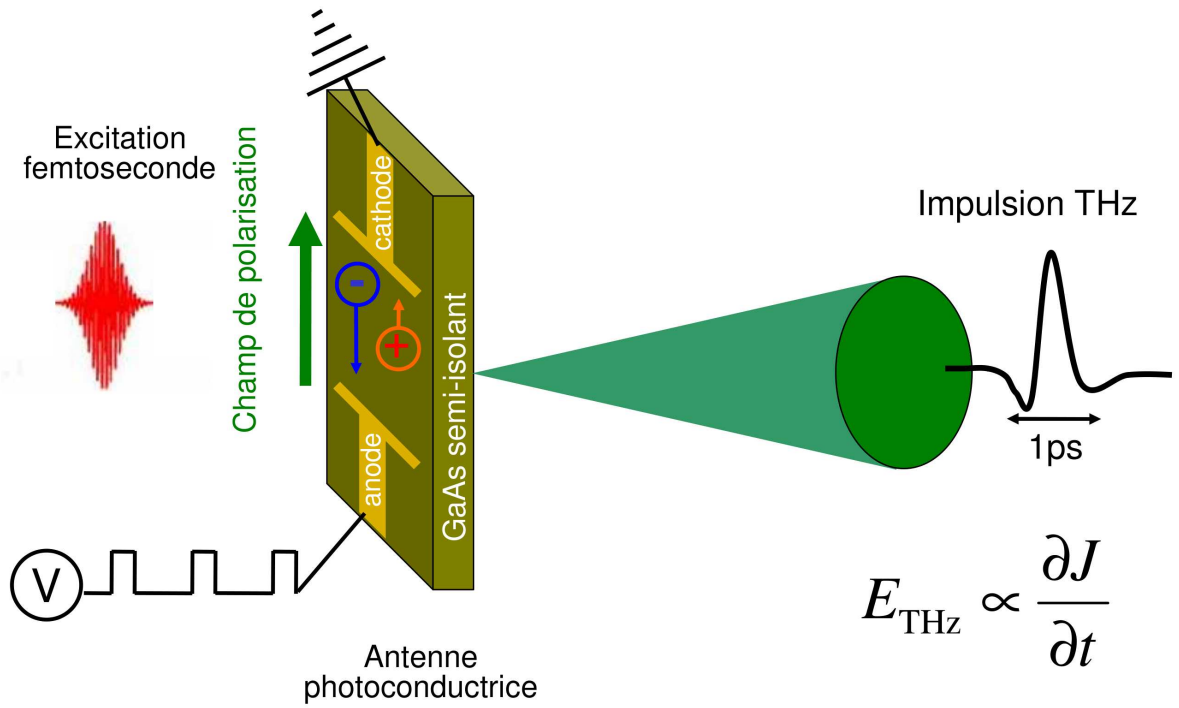


FIGURE 2.1: Schéma d'une antenne photoconductrice à géométrie plane, constituée d'une anode et d'une cathode espacés de quelques dizaines de microns.

où μ_0 désigne la perméabilité du vide et ϕ l'angle entre le dipôle et la direction de propagation du faisceau THz ($\phi = \frac{\pi}{2}$).

Paramètres influençant l'émission des antennes

Nous décrivons maintenant brièvement l'influence de différents paramètres sur l'émission THz des antennes photoconductrices : tension de polarisation appliquée, puissance du faisceau NIR excitateur et durée des impulsions fs. Une description rigoureuse de ces dispositifs requiert des modèles Monte Carlo complexes [38]. Nos arguments s'appuient sur des modèles valables pour des antennes à large espace inter-électrode (aussi appelé " gap "). Les conclusions que nous en tirons sont elles générales et s'appliquent à un grand nombre d'antennes photoconductrices.

En première approximation, le champ THz rayonné au niveau de l'antenne peut être exprimé grâce à la relation suivante [39] :

$$E_{\mathrm{THz}} = -E_{\mathrm{b}} \frac{\sigma_{\mathrm{S}}(t) Z_0}{\sigma_{\mathrm{S}}(t) Z_0 + (1 + \sqrt{\epsilon})} \tag{2.2}$$

où $E_{\mathrm{b}} = \frac{V_{\mathrm{b}}}{D}$ est le champ électrique appliqué (V_b la tension appliquée à l'antenne et D l'espace entre les électrodes), Z_0 l'impédance du vide, ϵ la constante diélectrique du GaAs semi-isolant et

$\sigma_S(t)$ la conductivité surfacique. Il découle de cette relation que l'amplitude du champ THz émis augmente linéairement avec la tension appliquée à l'antenne. La limite à cette augmentation est le seuil de température au-delà duquel les électrodes surchauffent et établissent un court-circuit permanent détruisant l'antenne. Les antennes que nous avons utilisées présentaient un seuil de température atteint pour des champs électriques appliqués de 50 kV/cm environ, ce qui est bien inférieur au champ de claquage du GaAs, estimé à 400 kV/cm [40]. Nous avons donc appliqué des champs électriques de 27 kV/cm à notre émetteur THz tout au long de nos expériences.

Le champ $E_{\mathrm{THz}}(t)$ atteint son maximum en même temps que la conductivité $\sigma_S(t)$ qui peut alors être approchée par : [39]

$$\sigma_{\mathrm{Smax}}(t) \approx \frac{e(1-R)\mu_{\mathrm{max}}F}{h\nu} \tag{2.3}$$

où e est la charge de l'électron, $h\nu$ l'énergie du photon incident, F la fluence des impulsions optiques, R le coefficient de réflexion de l'antenne et μ_{max} la mobilité des porteurs photo-créés à l'instant où la conductivité est maximale. Il en découle que le choix du matériau constitutif de l'antenne doit favoriser les mobilités élevées.

La mobilité des électrons est plus faible dans les vallées latérales que dans la vallée centrale de la bande de conduction. L'application d'une tension trop élevée aux bornes de l'antenne peut fournir une énergie suffisante aux électrons pour les porter dans une vallée à mobilité réduite. Ceci a pour conséquence de modifier le spectre du champ THz émis [41]. Nous avons appliqué des tensions suffisamment faibles à nos émetteurs pour ne pas ressentir les effets dus aux électrons des vallées latérales.

La relation (2.3) montre aussi la dépendance linéaire du champ émis en fonction de la fluence de l'excitation optique et donc de son intensité. Cette dépendance linéaire n'est cependant plus valable pour des intensités d'excitation optique trop importantes en raison d'un effet de saturation. Cette saturation provient dans notre cas de l'écrantage du champ appliqué à l'antenne par la séparation spatiale des charges photo-créées (les électrons sont accélérés vers l'anode tandis que les trous sont accélérés vers la cathode). Il est donc important d'optimiser la puissance optique incidente sur l'antenne en s'approchant le plus possible de la valeur de saturation. En plus de la limite de saturation, il faut veiller à ne pas endommager les électrodes avec un faisceau trop intense ou trop focalisé. Une puissance incidente de 800 mW répartie sur une surface circulaire de diamètre 500 μm a été utilisée au court de cette thèse.

La durée des impulsions optiques joue également un rôle important dans l'allure du signal THz rayonné. Duvillaret *et al.* [42] ont montré que plus les impulsions fs sont courtes, plus le

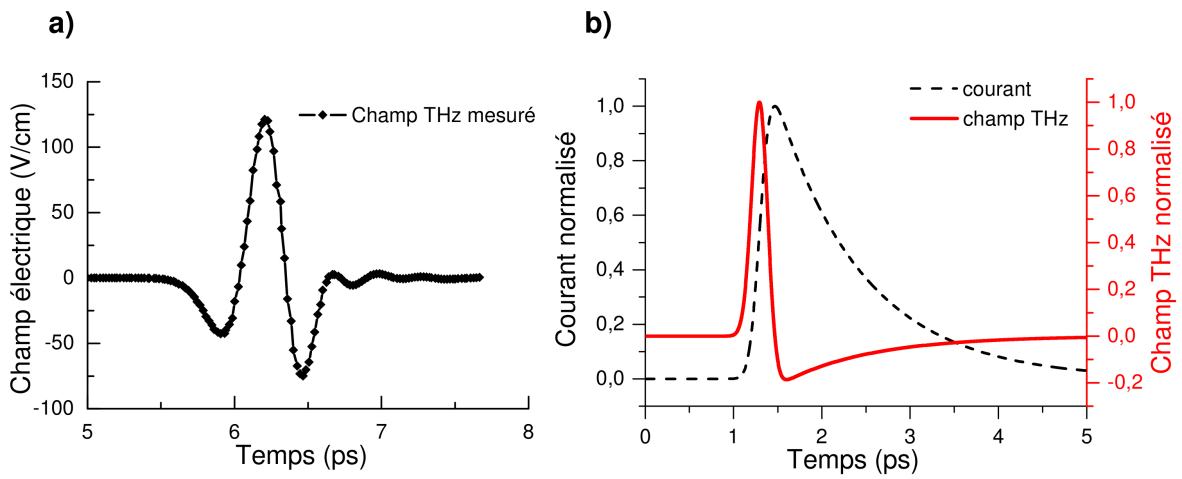


FIGURE 2.2: a) Exemple de champ THz mesuré par spectroscopie THz. b) Simulation du courant photocréé dans une antenne à géométrie plane par le faisceau NIR fs utilisée à partir d'un modèle de Drude-Lorentz [47] (courbe en pointillés) et dérivée de ce courant, proportionnelle au champ THz (courbe rouge).

spectre du champ THz émis s'élargit vers les hautes fréquences. Avec nos impulsions de 100 fs, nous avons détecté des champs dont le spectre était compris entre 0.5 et 3.5 THz.

Un dernier paramètre qui intervient dans l'allure du signal émis par une antenne est le temps de vie des porteurs photocréés. Le temps de vie des porteurs affecte de nombreuses caractéristiques dans une antenne photoconductrice, et les meilleures performances s'observent dans des antennes à temps de vie courts [2].

Il est possible de décrire grossièrement l'allure du champ THz généré par une antenne photoconductrice à l'aide de modèles de Drude-Lorentz. La figure 2.2 b) représente le courant transitoire généré dans une antenne photoconductrice (représenté en pointillés) et la dérivée de ce courant, proportionnelle au champ THz. La figure 2.2 a) affiche un champ THz typique mesurable avec notre système. Les similitudes entre ces deux champs permettent d'affirmer que le comportement de ces émetteurs est relativement bien compris avec des modèles simples.

Antennes interdigitées

Les antennes simples, se composant de deux bornes métalliques séparées par un gap de quelques dizaines de microns, présentent certains défauts qui rendent leur utilisation compliquée. D'une part, un espace inter-électrode de quelques dizaines de microns nécessite l'application de tensions électriques élevées à l'émetteur. D'autre part, si l'espace inter-électrode est réduit, le faisceau émis par un tel dispositif devient très divergent, ce qui complique la collection efficace de la puissance THz rayonnée par l'antenne.

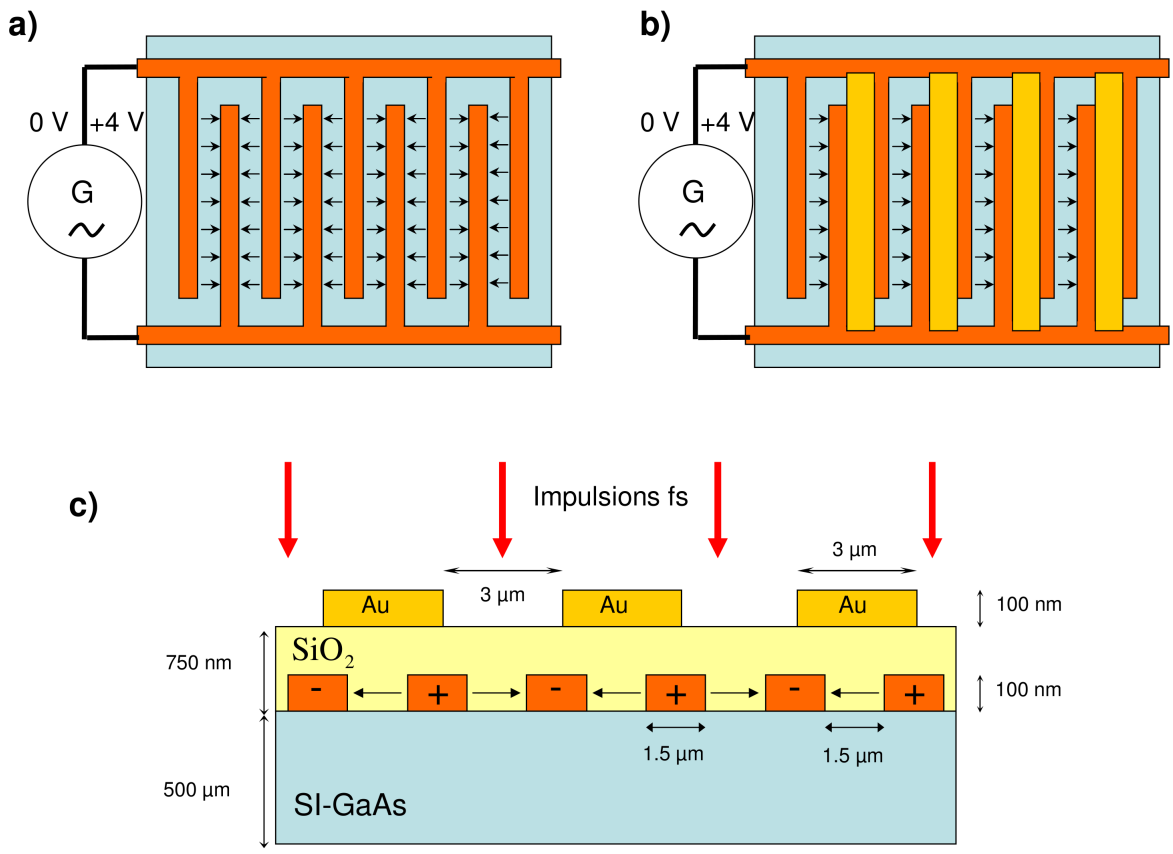


FIGURE 2.3: a) Vue schématique du dessus d'une antenne photoconductrice avant le dépôt d'or pour éviter l'interférence destructive entre les champs de signes opposés générés entre les deux électrodes. b) Vue schématique du dessus d'une antenne photoconductrice avec un dépôt d'or. c) Vue en coupe latérale d'une antenne photoconductrice.

Dans la pratique, il est possible d'apporter des améliorations considérables aux antennes photoconductrices en utilisant une géométrie adaptée pour ce dispositif. Afin d'accroître la surface éclairée par le faisceau excitateur NIR, contribuant ainsi à réduire la diffraction du faisceau THz émis, et utiliser des tensions faibles, nous avons opté pour une géométrie en peignes interdigités [43] de dimension 500 μm x 500 μm, dont une représentation schématique est fournie sur les figures 2.3 b) et c). Leur fabrication a été réalisée par Nathan Jukam à l'Université Santa Barbara en Californie, ainsi que par Julien Madéo au Laboratoire Pierre Aigrain [44]. L'autre avantage de ce dispositif sur les antennes à géométrie simple est la réduction de l'espace inter-électrodes. Cet espace est réduit jusqu'à 1.5 μm, ce qui permet d'appliquer des tensions plus faibles aux bornes du dispositif sans réduire l'intensité rayonnée.

Cette géométrie en peignes interdigités a été proposée par Dreyhaupt *et al.* [43]. L'antenne

se compose toujours de deux bornes métalliques formant chacune un peigne. Dans l'espace entre électrodes, le sens du champ électrique appliqué est alterné par la géométrie du dispositif, comme on peut le voir sur la figure 2.3 a). D'après la relation (2.1) cela a pour effet de générer des champs THz de signes opposés donc en opposition de phase qui s'annulent deux à deux. Par conséquent, il est nécessaire de procéder à un traitement de l'antenne interdigitée pour ne conserver que des champs THz de même signe qui interfèrent constructivement. Sur les figures 2.3 b) et c) on remarque qu'un espace inter-életrode (aussi appelé " gap ") sur deux est masqué par une plaque en or. Celles-ci sont déposées sur du SiO_2. Ce composé isolant est déposé sur les électrodes, comme en témoigne la figure 2.3 c), et permet d'empêcher un court-circuit entre les électrodes et les plaques en or. Les plaques en or masquent tous les espaces inter-électrode associés à un signe de champ électrique appliqué donné. Les zones masquées ne sont pas éclairées par les impulsions NIR fs et ne génèrent donc pas de champ THz. Les zones non masquées génèrent toutes des champs THz de même phase qui interfèrent constructivement.

2.3 Détection cohérente THz

Tout comme pour l'émission de lumière THz, la détection cohérente s'appuie principalement sur deux techniques pour mesurer amplitude et phase de champs THz : effet Pockels dans des cristaux électro-optiques, et courant généré dans des antennes photoconductrices. Il est intéressant de remarquer que les dispositifs servant d'émetteurs peuvent en pratique souvent être utilisés en guise de détecteurs. La détection cohérente nécessite d'ailleurs le recours à des impulsions NIR fs, tout comme les émetteurs décrits dans la partie (2.2). Dans notre montage, nous avons utilisé une détection électro-optique pour mesurer les champs THz. Ce système, couplé à une antenne photoconductrice en guise d'émetteur, nous a permis d'atteindre une gamme dynamique de 40 dB en amplitude. Nous décrivons le fonctionnement de l'échantillonnage nécessaire à la détection cohérente de champs THz dans la partie 2.5. Dans cette partie, nous présentons brièvement le principe de la détection employant des antennes photoconductrices avant de détailler notre système de détection électro-optique et discuter des paramètres importants dans le choix du cristal utilisé dans ce type de montage.

2.3.1 Antennes photoconductrices pour la détection cohérente

Pour la détection cohérente de signaux THz, il est nécessaire d'utiliser un matériau ayant une durée de vie des porteurs inférieure à la picoseconde et une mobilité électronique élevée pour être sensible aux variations rapides d'un champ THz [2]. Ceci est obtenu en utilisant du

GaAs produit à basse température (GaAs-BT) [2]. L'antenne photoconductrice peut présenter le même type de géométrie que celle employée pour l'émission. Contrairement au cas des antennes utilisées pour l'émission THz, on ne polarise pas le dispositif. Le faisceau NIR fs sert à générer des porteurs qui sont accélérés par le champ THz incident. Le courant généré, de l'ordre de quelques nanoampères nécessite l'emploi d'un amplificateur. Le courant traversant l'espace interélectrode dans le GaAs-BT de l'antenne est proportionnel à l'amplitude du champ THz appliqué sur le dispositif. Dans la pratique, ce type de détecteur offre de bonnes performances avec un rapport signal sur bruit en amplitude supérieur à 30 dB et une bande passante allant jusqu'à 3.5 THz avec des impulsions NIR de 100 fs [2].

2.3.2 Principe de fonctionnement de la détection électro-optique

La détection électro-optique repose sur l'effet Pockels induit dans un cristal (typiquement ZnTe ou GaP) en présence de champ THz. Cet effet consiste en l'apparition d'une anisotropie dans le cristal due à une légère déformation de sa structure cristalline, proportionnelle à l'amplitude du champ électrique THz incident. Tout comme la rectification optique, il ne se manifeste que dans les cristaux non centrosymétriques. La biréfringence induite par effet Pockels dans le ZnTe correspond à un changement d'indice pour les longueurs d'onde appartenant au proche IR (autour de 800 nm) dans le cristal de détection. Elle offre des performances identiques aux antennes photoconductrices, bien que sa mise en place nécessite un montage particulier que nous allons décrire ci-dessous. Nous avons opté pour ce type de détection en raison de sa réponse quasi-instantannée aux variations du champ THz, ce qui ne nécessite pas le recours à des matériaux spécifiques contrairement aux antennes photoconductrices à base de GaAs-BT.

La détection électro-optique est une mesure indirecte de l'amplitude d'un champ THz. Un faisceau NIR fs, que l'on polarise rectilignement est focalisé sur un cristal de ZnTe. En traversant le cristal au même instant et au même point de focalisation que le faisceau THz, le faisceau NIR fs subit alors un changement de polarisation proportionnel au champ électrique THz. Le sytème de détection électro-optique complet nécessaire à la conversion de cette variation de polarisation en champ électrique est représenté sur la figure 2.4. Le changement de polarisation du faisceau induit par effet Pockels est converti en différence d'intensité entre les deux composantes rectilignes du faisceau NIR. Cette différence d'intensité est mesurée à l'aide de photodiodes montées dans une balance optique. Nous détaillons ici l'utilité des différents composants intervenant dans ce montage.

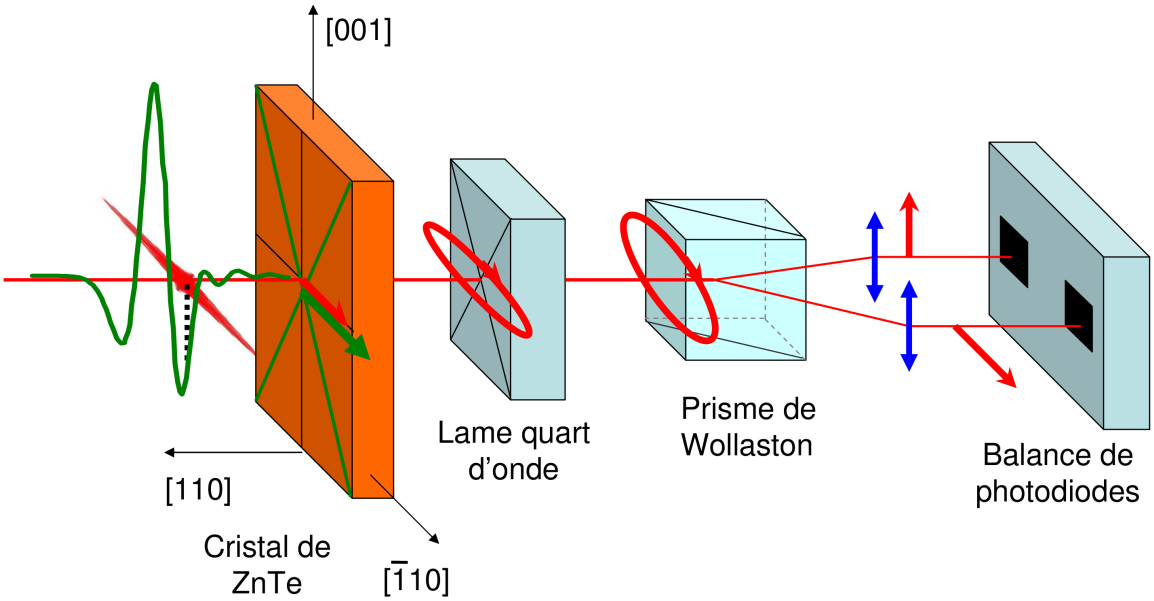


FIGURE 2.4: Représentation schématique d'un système de détection électro-optique.

2.3.3 Montage de détection électro-optique

On dispose une lame quart d'onde suivie d'un prisme de Wollaston (cf figure 2.4) derrière le cristal de ZnTe. En l'absence de champ THz, le faisceau NIR fs initialement polarisé rectilignement acquiert une polarisation circulaire au passage de la lame qui est ensuite séparée en ses deux composantes perpendiculaires polarisées rectilignement et d'intensité égale. Ces deux faisceaux sont collectés par une balance de photodiodes. Ainsi, en l'absence de champ THz, le courant en sortie de la balance de photodiodes est égal à 0. En présence de champ THz sur le cristal de ZnTe, le faisceau NIR acquiert une polarisation elliptique au passage du cristal. Les deux faisceaux émergeant du prisme de Wollaston ont alors des intensités différentes et le courant en sortie de la balance de photodiodes, non nul, est relié au champ THz par la relation [45] :

$$\Delta I = I_0 \sin \delta\Phi \simeq I_0 \delta\Phi = I_0 2 \frac{\pi L}{\lambda} n_0^3 r_{41} E_{\mathrm{THz}} \tag{2.4}$$

où I_0 désigne l'intensité du faisceau NIR incident sur le cristal, $\delta\Phi$ le déphasage induit par effet Pockels entre les composantes du champ électrique du faisceau NIR selon les axes propres du cristal, L l'épaisseur de cristal traversée, n_0 l'indice optique du cristal et r_{41} le coefficient électro-optique du ZnTe.

La détection du champ THz repose sur un bon recouvrement spatial et temporel des ondes THz et proche IR sur le cristal de ZnTe. Le faisceau NIR fs est focalisé à l'aide d'une lentille

achromatique. Son spectre étant centré sur une longueur d'onde de 820 nm (370 THz), la surface de focalisation de ce faisceau est plus petite que celle du faisceau THz. Un alignement optique de bonne qualité est indispensable pour que la détection soit efficace, notamment aux hautes fréquences.

L'impulsion NIR d'une durée de 100 fs est plus courte que l'impulsion THz, d'une durée d'une ps environ. En ajustant précisément le déphasage entre ces deux impulsions, on peut effectuer une mesure point par point de l'amplitude du champ THz transmis. En réalité, du fait de la durée de l'impulsion fs, la mesure effectuée correspond à une convolution des deux impulsions. Nous discutons de l'échantillonnage du champ THz dans la partie (2.5).

2.3.4 Choix du cristal de détection

Le choix du ZnTe repose sur un certain nombre de critères. Ce matériau présente un coefficient électro-optique (EO) relativement élevé (4.04 pm/V) [46] dans le proche infrarouge et les raies d'absorption des phonons transverses optiques (TO) et longitudinaux optiques (LO), n'apparaissent qu'à des fréquences supérieures à 4 THz [48]. Par opposition, le DAST présente un coefficient EO 40 fois plus élevé (160 pm/V) [46] mais l'absorption des phonons le rend en pratique inutilisable pour la détection autour de 1 THz [49]. D'autres matériaux sont envisageables pour la détection électro-optique, notamment le GaP, qui présente des propriétés voisines du ZnTe, mais un autre paramètre important : l'accord de phase, fait du ZnTe un cristal particulièrement adapté à la détection aux fréquences THz comprises entre 0.5 THz et 3 THz avec une sonde NIR fs autour de 800 nm.

2.3.5 Accord de phase dans le cristal

L'accord de phase entre l'impulsion térahertz et l'impulsion NIR fs à la traversée du cristal est un aspect fondamental pour garantir une bonne mesure des composantes hautes fréquences d'un champ THz. L'indice perçu par les deux longueurs d'onde n'est pas le même, ce qui implique des vitesses de propagation différentes pour l'impulsion NIR fs et THz dans le cristal. Ainsi, la vitesse de phase de l'impulsion THz n'est pas égale à la vitesse de groupe du faisceau NIR. Dans un cristal de ZnTe, seules la composante à 1.5 THz présente l'accord de phase avec l'impulsion NIR. Pour toutes les autres composantes fréquentielles l'amplitude THz sondée par l'impulsion NIR n'est alors pas constante à la tranversée du cristal comme en témoigne la figure 2.5. Plus le cristal est épais, plus l'impulsion NIR se déphase par rapport à l'impulsion THz. Ceci revient à effectuer une moyenne de l'amplitude du champ perçue entre deux phases de l'impulsion THz. Ce déphasage empêche ainsi de voir des variations rapides du champ, correspondant aux fréquences

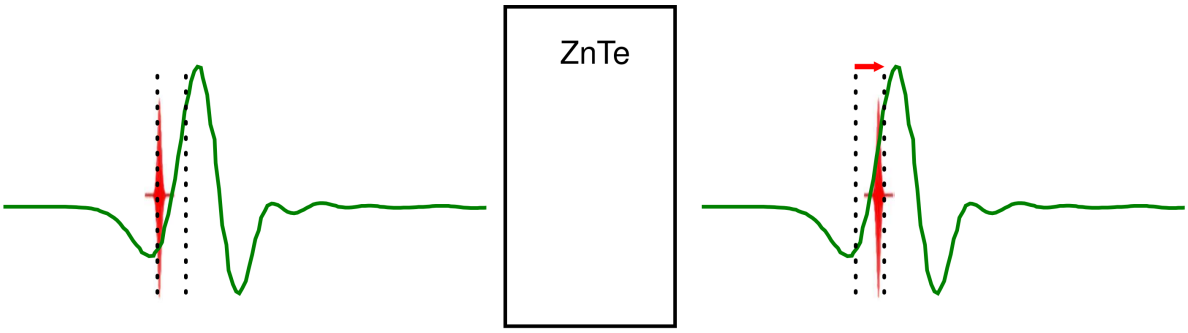


FIGURE 2.5: Représentation schématique du déphasage entre impulsion NIR fs et impulsion THz à la traversée d'un cristal de ZnTe en raison de la différence entre la vitesse de groupe de l'impulsion NIR fs et de la vitesse de phase de l'impulsion THz.

élevées au-delà de 1.5 THz (dans notre cas, une fréquence supérieure à 3 THz est considérée comme élevée). Les cristaux épais sont donc peu adaptés à une détection de composantes haute fréquence. Cependant, en traversant une plus grande épaisseur de cristal, l'effet électro-optique a une incidence plus grande sur la polarisation du faisceau NIR, ce qui permet d'accroître l'amplitude du signal généré en sortie de la balance optique et augmenter la gamme dynamique de détection. Pour trouver un compromis entre la perte de sensibilité aux hautes fréquences à cause du désaccord de phase et la gamme dynamique de détection, nous avons utilisé un cristal de ZnTe d'épaisseur 200 μm. Ce dernier nous a permis d'obtenir de bonnes performances entre 0,5 et 3 THz. Pour des mesures nécessitant une meilleure sensibilité aux plus hautes fréquences, un cristal de GaP [50] de 300 μm nous a permis d'accéder à des fréquences allant jusqu'à 4 THz en détection. Un facteur de mérite a été introduit [46] pour comparer les différents matériaux disponibles en tenant compte de tous ces critères. Le ZnTe s'avère ainsi être un choix pertinent pour la spectroscopie autour de quelques THz.

2.4 Principe d'une expérience de spectroscopie dans le domaine temporel

La spectroscopie THz dans le domaine temporel présente deux différences majeures par rapport aux autres techniques expérimentales existantes dans le lointain infrarouge, notamment la spectroscopie à transformée de Fourier (FTIR) avec laquelle elle présente des similitudes. Tout d'abord, la mesure du rayonnement transmis est une mesure du champ électrique complexe (son amplitude et sa phase) et non seulement de son intensité comme en spectroscopie FTIR par exemple. Ainsi, on peut extraire une information à partir de l'amplitude et de la phase des mesures effectuées, sans avoir à procéder à des transformations de Kramers-Kronig pour passer de

l'une à l'autre [28]. La deuxième particularité de la spectroscopie THz dans le domaine temporel est que la mesure effectuée est une mesure cohérente du rayonnement transmis, c'est-à-dire que l'on peut travailler dans un environnement présentant un bruit de fond thermique térahertz supérieur au signal utile sans détecter ce champ parasite. Ainsi, cette technique spectroscopique permet d'atteindre facilement une sensibilité supérieure aux techniques employant des bolomètres [31].

La spectroscopie THz dans le domaine temporel consiste en la mesure du rayonnement transmis à travers un échantillon. L'analyse de l'amplitude et de la phase du champ THz mesuré permet d'extraire une fonction de transfert à partir de laquelle on peut connaître l'indice complexe du milieu traversé, ce qui donne accès aux absorptions et au gain de l'échantillon.

Deux mesures distinctes sont effectuées pour extraire cette fonction de transfert. Une première mesure sert de référence et correspond à un champ $\overrightarrow{E_{\mathrm{ref}}}(t)$. Il peut s'agir par exemple d'un champ THz ne passant pas par l'échantillon. Une telle mesure est par ailleurs utile pour identifier les échos provenant des réflexions aux interfaces traversées par le THz entre l'émetteur et le récepteur, permettant de choisir une fenêtre temporelle d'acquisition appropriée. Une deuxième mesure du même champ à travers l'échantillon donne accès à un champ $\overrightarrow{E_{\mathrm{exp}}(t)} = \frac{1}{2\pi}\int_0^\infty T(\omega)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi(\omega)}\overrightarrow{E_{\mathrm{ref}}}(\omega)\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t}\mathrm{d}\omega$. La fonction de transfert T est extraite en faisant le rapport des transformées de Fourier des deux signaux [32]. Cette fonction de transfert contient l'information des composantes spectrales amplifiées ou absorbées par l'échantillon. Dans la grande majorité des cas, il est donc intéressant d'utiliser une source de rayonnement THz à large spectre pour observer le gain et les pertes à différentes fréquences dans l'échantillon étudié. On remarque également que la traversée de l'échantillon déphase l'onde en la retardant par rapport à l'onde de référence. Ceci permet de calculer l'épaisseur du milieu traversé en connaissant son indice et réciproquement de calculer l'indice du milieu en connaissant la longueur traversée.

2.5 L'échantillonnage en temps équivalent

Afin d'échantillonner des champs électriques THz, une bande passante 100 fois supérieure aux dispositifs électroniques les plus rapides disponibles de nos jours est nécessaire. Les appareils électroniques les plus rapides ont des bandes passantes de l'ordre de 30 GHz, ce qui permet d'échantillonner une onde sinusoïdale toutes les 16 ps. Pour une détection cohérente de signaux aux fréquences THz, la spectroscopie dans le domaine temporel s'appuie sur des détecteurs lents et effectue un échantillonnage sur un grand nombre d'impulsions THz identiques. Cette technique d'échantillonnage porte le nom d'échantillonnage « en temps équivalent » [2].

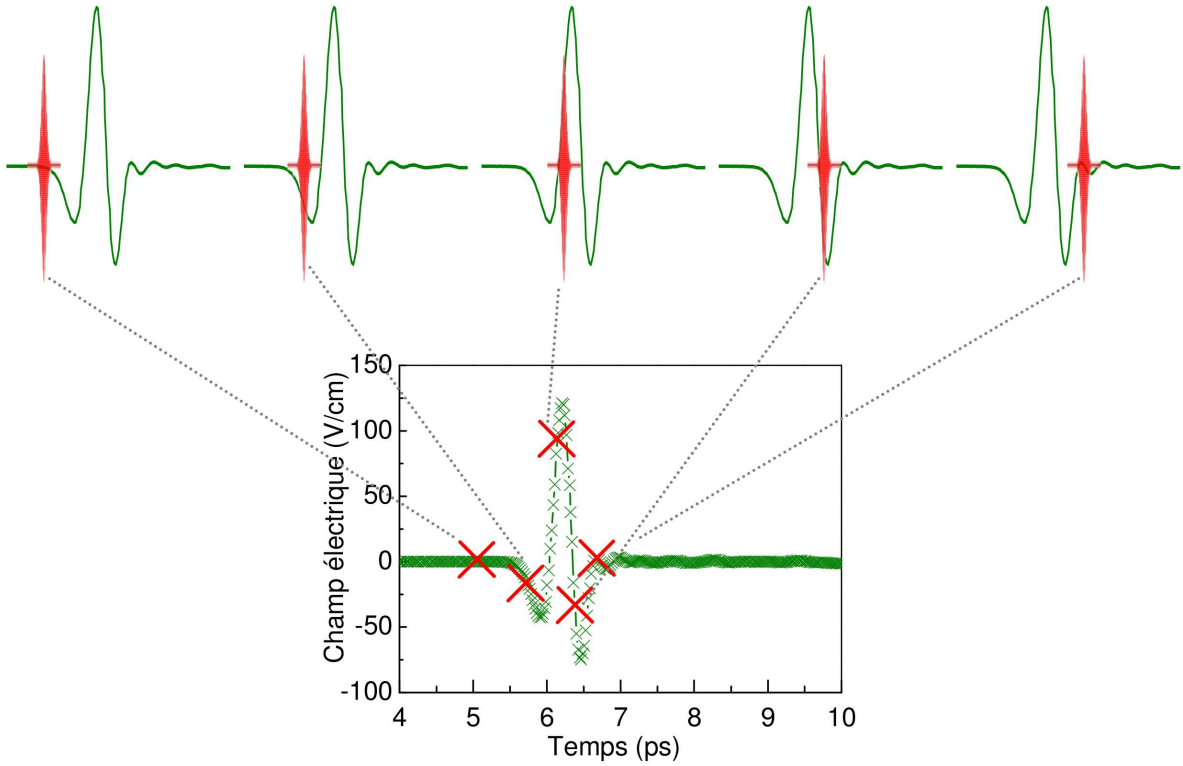


FIGURE 2.6: Représentation schématique de l'échantillonnage en temps équivalent d'un champ THz.

La figure 2.6 affiche un champ THz mesuré en échantillonnant point par point l'amplitude d'un grand nombre d'impulsions THz toutes identiques. La mesure est effectuée en faisant se superposer spatialement et temporellement un faisceau NIR et un faisceau THz dans un système de détection électro-optique (cf partie 2.3). La sélection de la phase du champ THz mesuré s'effectue en contrôlant avec précision le déphasage entre les impulsions NIR et THz à l'aide d'une ligne à retard. Cette ligne à retard micrométrique permet de modifier le chemin optique des impulsions mesurées avec un pas de 1 μm, ce qui correspond à un retard de $\Delta t = 2\frac{1\times10^{-6}}{3\times10^{8}} = 6.6$ fs par pas. Avec une mesure de l'amplitude toutes les 6.6 fs, on peut théoriquement avoir accès à des fréquences allant jusqu'à 75 THz. Dans la pratique, la résolution fréquentielle est limitée par la détection électro-optique (cf partie 2.3). Nous avons donc utilisé un pas de 5 μm, soit 30 fs de résolution temporelle, ce qui a été largement suffisant pour les fréquences comprises entre 0.5 THz et 4 THz mesurées au cours des expériences présentées dans ce manuscrit.

La fiabilité de cette technique d'échantillonnage repose essentiellement sur la périodicité des impulsions THz mesurées. Cette périodicité est obtenue grâce au laser femtoseconde Ti :saphir à blocage de modes [33] utilisé, qui sert à la fois à générer (cf partie 2.2) et à détecter (cf partie

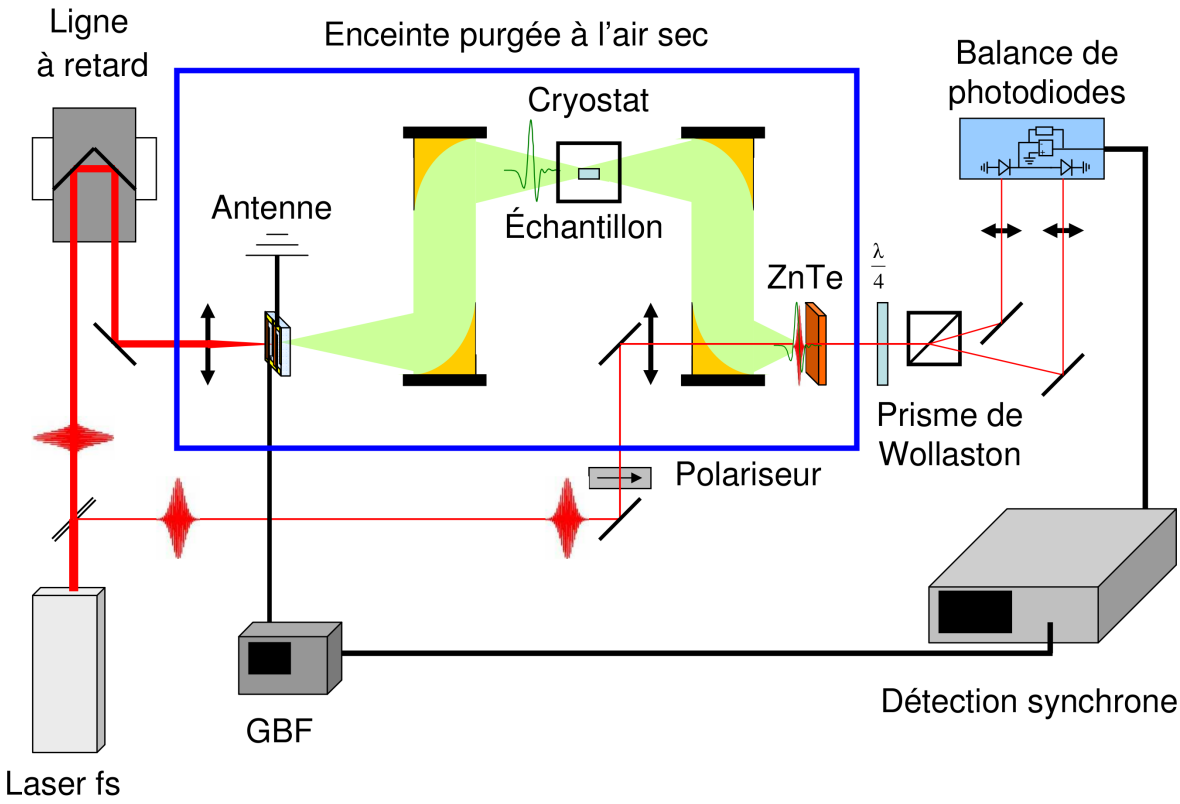


FIGURE 2.7: Représention schématique de notre montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel.

2.3) les impulsions THz. L'utilisation de l'échantillonnage en temps équivalent offre la possibilité d'effectuer une moyenne des mesures de l'amplitude sur un grand nombre d'impulsions en réglant l'intervalle de temps entre deux déplacements de la ligne à retard. Ceci offre une flexibilité dans l'utilisation de la spectroscopie THz, et pemet d'atteindre de bons rapports signal sur bruit.

2.6 Montage expérimental

Nous décrivons ici le montage de spectroscopie dans son intégralité, incorporant émetteur THz (antenne photoconductrice interdigitée, décrite dans la partie 2.2), détection électro-optique (décrite dans la partie 2.3), système d'échantillonnage à l'aide d'une ligne à retard et système d'acquisition des données. Un schéma du montage complet est représenté sur la figure 2.7. Ce schéma permet de mettre en évidence la présence d'une enceinte fermée et purgée sur le trajet du faisceau THz qui sert à préserver ce dernier de la vapeur d'eau présente dans l'air ambiant, cette dernière absorbant fortement le rayonnement dans l'infrarouge lointain.

2.6.1 Composants optiques pour l'IR

Une expérience de spectroscopie THz dans le domaine temporel fait intervenir des impulsions dans le proche et le lointain infrarouge. Le montage expérimental de la figure 2.7, permet de distinguer le laser femtoseconde servant à la création et à la détection des impulsions THz. Une lame séparatrice placée en sortie de ce laser permet de répartir 80 % de l'énergie des impulsions NIR fs vers le faisceau excitant l'antenne photoconductrice et 20 % vers le faisceau servant à la détection électro-optique. La ligne à retard de la figure 2.7 est placée sur le trajet du faisceau NIR fs excitant l'antenne photoconductrice. Il est également possible de placer cette ligne à retard sur le faisceau NIR servant à la détection. Les composants optiques utilisés dans un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel doivent être adaptés à du rayonnement dans le proche NIR (faisceau à 820 nm) et l'infrarouge lointain (impulsion de spectre compris entre 0.5 THz et 3.5 THz). Les miroirs utilisés sur le trajet du faisceau NIR fs sont des miroirs à revêtement diélectrique ou revêtement or. Les miroirs paraboliques hors axe utilisés pour focaliser les impulsions THz sur les échantillons étudiés et sur le cristal de détection sont à revêtement en or, l'un des métaux les plus adaptés pour ce type de fréquences. Les lentilles utilisées pour focaliser le faisceau NIR fs sur l'antenne et sur le cristal de détection sont des systèmes achromatiques qui ne présentent que très peu de dispersion. Les milieux transparents traversés par l'impulsion THz, notamment les fenêtres du cryostat servant à refroidir les échantillons étudiés, sont choisis de façon à limiter l'absorption dans le THz. On privilégie ainsi des matériaux spécialement conçus pour l'optique THz tels que le Picarin ou le TPX [51].

2.6.2 Système d'acquisition des données

Afin de bénéficier d'une meilleure sensibilité et réduire le bruit dans nos mesures de champs THz, nous avons opté pour l'utilisation d'un appareil de détection synchrone. La détection synchrone permet de sélectionner une fenêtre fréquentielle de quelques Hz dans laquelle le signal est amplifié d'un facteur 10^4 et dans laquelle une moyenne du signal est effectuée dans le temps.

Le signal électrique affiché à la détection synchrone est transféré à un ordinateur qui permet également le contrôle du déplacement de la ligne à retard servant à échantillonner le champ THz. Le pilotage de la ligne à retard et l'acquisition des signaux affichées par la détection synchrone sont effectués à l'aide d'un programme CVI. Ce système d'acquisition des données permet d'effectuer une mesure de champ THz en un temps, dépendant des paramètres sélectionnés sur la détection synchrone, compris entre quelques dizaines de secondes et quelques minutes.

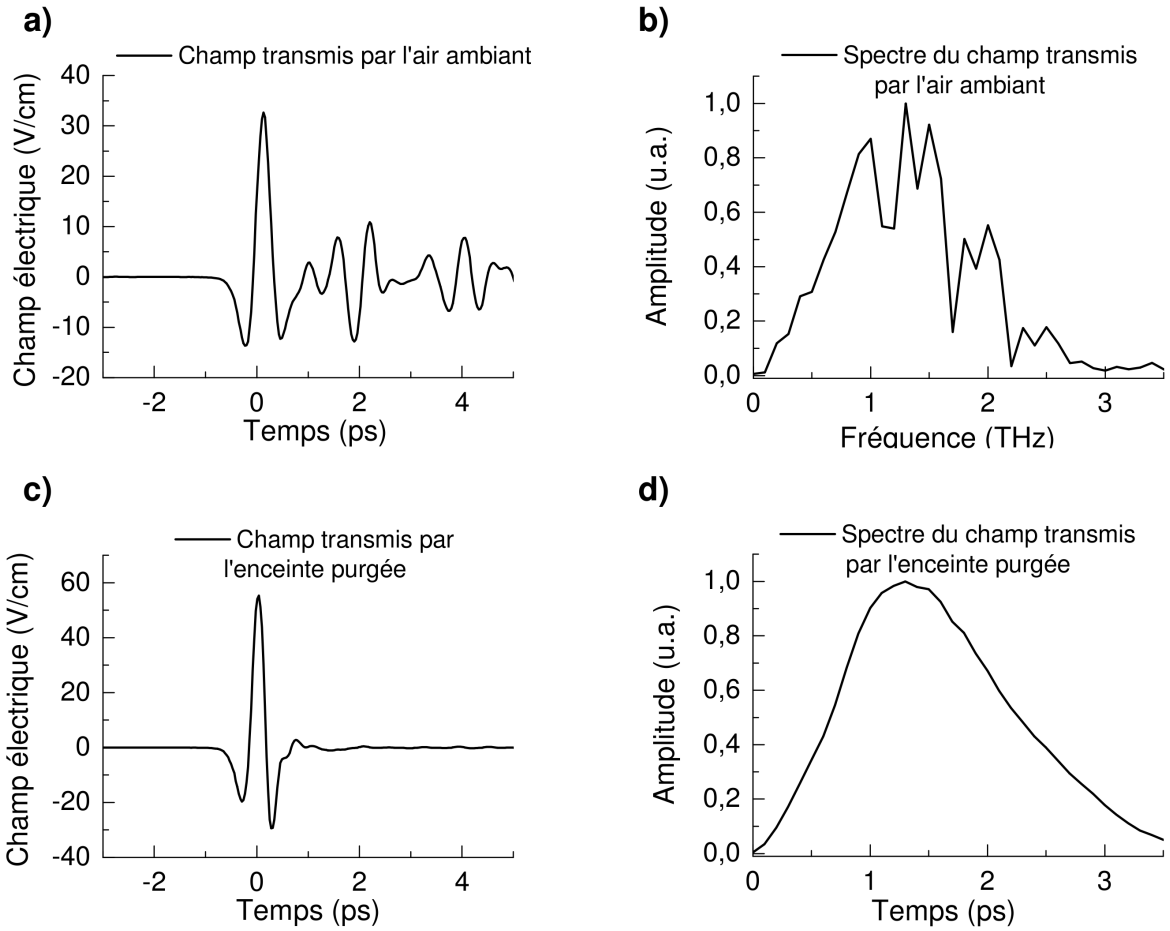


FIGURE 2.8: a) Champ THz transmis par l'air ambiant. b) Spectre du champ THz affiché sur la figure a), obtenu en effectuant la transformée de Fourier de ce champ. c) Champ THz transmis par l'enceinte purgée à l'air sec. d) Spectre associé au champ THz représenté sur la figure c).

2.6.3 Absorption THz par l'air ambiant

La vapeur d'eau contenue dans l'air ambiant présente de fortes raies d'absorption dans le THz. Par ailleurs, elle est responsable d'une dispersion du signal THz. Sur la figure 2.8 a) représentant une trace temporelle THz acquise dans l'air ambiant, nous remarquons que le champ électrique présente des variations importantes d'amplitude sur une durée supérieure à 5 ps. La transformée de Fourier de cette trace temporelle, représentée sur la figure 2.8 b) et correspondant au spectre du champ THz de la figure 2.8 a), permet de voir de nombreuses raies d'absorption aux fréquences attribuées à des résonances vibrationnelles et rotationnelles dans l'eau [3]. Pour éviter ces effets et préserver le spectre de l'impulsion générée par l'antenne photoconductrice nous utilisons une enceinte purgée à l'air sec.

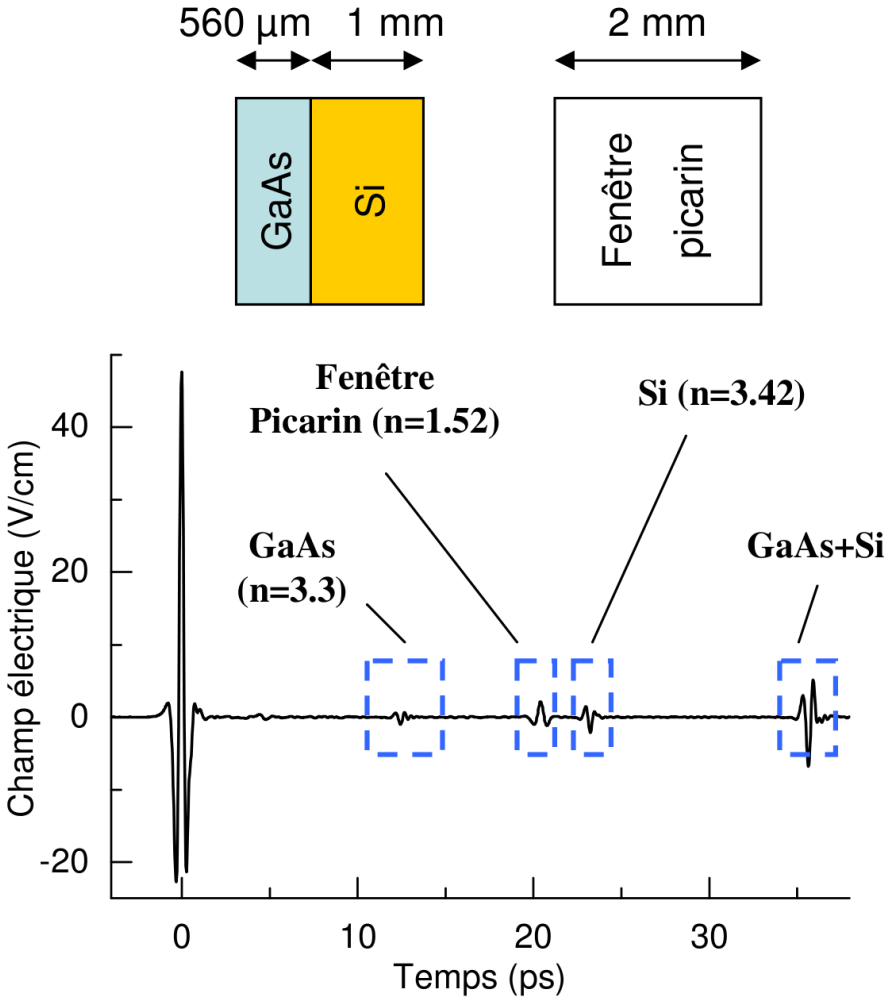


FIGURE 2.9: Champ THz transmis par les fenêtres d'un cryostat utilisé pour refroidir les échantillons étudiés. Cette trace temporelle fait apparaître les échos dus aux interfaces traversées dans l'antenne photoconductrice et dans le cryostat.

La figure 2.8 c) représente une trace temporelle THz acquise dans un montage de spectroscopie THz purgé à l'air sec et la figure 2.8 d) le spectre associé. La purge à l'air sec permet d'éliminer l'absorption et la dispersion du signal THz dues à la vapeur d'eau. On remarque également que la purge a pour effet d'augmenter l'amplitude maximale de l'impulsion THz typiquement d'un facteur 2, du fait d'une absorption moindre. Il est également possible de procéder à une purge avec de l'azote gazeux ou bien de mettre l'enceinte contenant le faisceau THz sous vide.

2.6.4 Échos THz

La présence d'interfaces traversées par les impulsions THz provoque l'apparition d'échos plus ou moins espacés suivant les distances séparant deux interfaces et l'indice du milieu qu'elles délimitent. Sur la figure 2.9, représentant un champ THz mesuré dans une fenêtre temporelle de 40 ps, on distingue les échos provenant du substrat de GaAs présent dans l'antenne photoconductrice. Pour réduire la contribution de cet écho, une plaque de silicium a été placée sous le GaAs semi-isolant de l'antenne. Elle permet d'adapter l'impédance à l'interface GaAs/Si et éloigne l'écho principal de 20 ps. Pour obtenir un effet similaire, le cristal de ZnTe de 200 μm orienté suivant la direction [110] est collé à un cristal de ZnTe de 2 mm orienté suivant la direction [100] (direction pour laquelle aucun effet électro-optique n'est observé). Les échos de la figure 2.9 peuvent être identifiés à partir de l'indice n et la longueur L du milieu traversé par la formule : $\delta t = \frac{2Ln}{c_0}$, où δt désigne le délai par rapport à l'impulsion THz principale et c_0 la vitesse de la lumière dans le vide.

2.7 Conversion du signal mesuré en champ électrique

La mesure effectuée par la détection électro-optique correspond à une différence d'intensité et donc de puissance entre deux faisceaux (cf partie 2.3). La relation (2.4) permet d'exprimer la valeur d'un champ THz à partir de cette différence d'intensité. Nous allons maintenant décrire la relation permettant de retrouver cette différence d'intensité à partir des valeurs effectivement mesurées et affichées par la détection synchrone. Pour ce faire, nous allons raisonner à partir du rapport : $\frac{\Delta I}{I_0}$ qui s'exprime aussi en fonction des puissances optiques sous la forme : $\frac{\Delta P}{P_0}$. Nous exprimons la différence de puissance ΔP et la puissance totale du faisceau NIR P_0 en fonction de paramètres mesurés expérimentalement.

La différence de puissance ΔP est convertie en une tension par la balance optique. La détection synchrone effectue une convolution de la valeur efficace de cette tension avec une sinusoïde générée à la même fréquence que la fréquence de référence. Ceci équivaut à extraire le coefficient de Fourier de la valeur efficace de la tension issue de la balance optique. Le signal qui sert à moduler l'antenne est un signal créneau, de telle sorte que toutes les impulsions émises à l'intérieur d'un créneau de tension sont de même amplitude (cf partie 2.2.2). Le signal affiché à la détection synchrone correspond donc à $U_{\mathrm{DS}} = \frac{U_{\mathrm{balance}}}{\sqrt{2}}\frac{2}{\pi}$, où U_{balance} est la tension issue de la balance de photodiodes.

La puissance $\frac{1}{2}P_0$ envoyée sur chaque photodiode, est convertie en une tension $U_{1\,\mathrm{photodiode}}$ en sortie de la balance lorsqu'une seule photodiode est éclairée. La balance de photodiodes

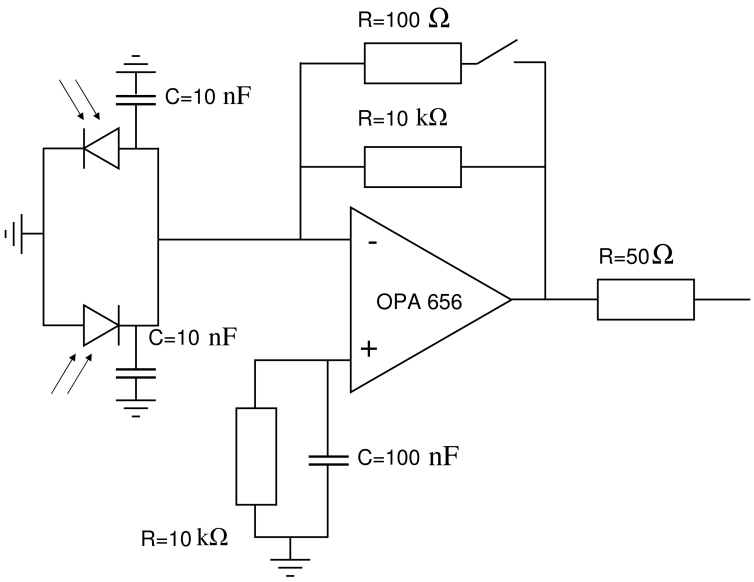


FIGURE 2.10: Schéma du circuit électronique de la balance de photodiodes.

est composée d'un amplificateur à transimpédance (cf figure 2.10 pour un circuit électronique complet de la balance optique, auquel nous ferons référence dans la partie suivante). Pour ne pas saturer l'amplificateur lors de la mesure de $U_{1\,\text{photodiode}}$, on rajoute une résistance de 100 Ω dans le circuit de transimpédance. La résistance équivalente du circuit vaut alors 99 Ω. Le rapport entre la tension recherchée ($U_{1\,\text{photodiode}}$) et la tension mesurée ($U_{100\Omega\,1\,\text{photodiode}}$) avec cette nouvelle résistance équivalente est de : $\frac{U_{1\,\text{photodiode}}}{U_{100\Omega\,1\,\text{photodiode}}} = \frac{R_{10\,\text{k}\Omega}}{R_{99\,\Omega}}$ (diviseur de tension). À partir de ces informations et de la formule (2.4) la relation permettant de calculer le champ THz s'écrit :

$$E_{\text{THz}} = \frac{\lambda}{2\pi n_0^3 L r_{41}} \frac{U_{\text{balance}}}{2 \times U_{1\,\text{photodiode}}} = \frac{\lambda}{2\sqrt{2} n_0^3 L r_{41}} \frac{99 U_{\text{DS}}}{10^4 \times U_{100\Omega\,1\,\text{photodiode}}} \tag{2.5}$$

2.8 Rapport signal sur bruit

Dans cette partie nous présentons quelques améliorations apportées au montage qui nous ont permis d'optimiser le rapport signal sur bruit dans nos expériences. Les meilleurs rapports signal sur bruit obtenus à ce jour dans des montages de spectroscopie dans le domaine temporel sont de l'ordre de 60 dB en amplitude [52], et utilisent des lasers fs de forte puissance et de très courte durée. Notre montage permet d'atteindre un rapport signal sur bruit de 40 dB en amplitude, ce qui est au niveau de l'état de l'art pour des systèmes utilisant des lasers NIR fs de 100 fs de durée avec des énergies par impulsion de l'ordre de 10 nJ. Nous avons présenté, dans les parties précédentes, des méthodes permettant d'augmenter l'amplitude maximale du signal mesuré. Nous

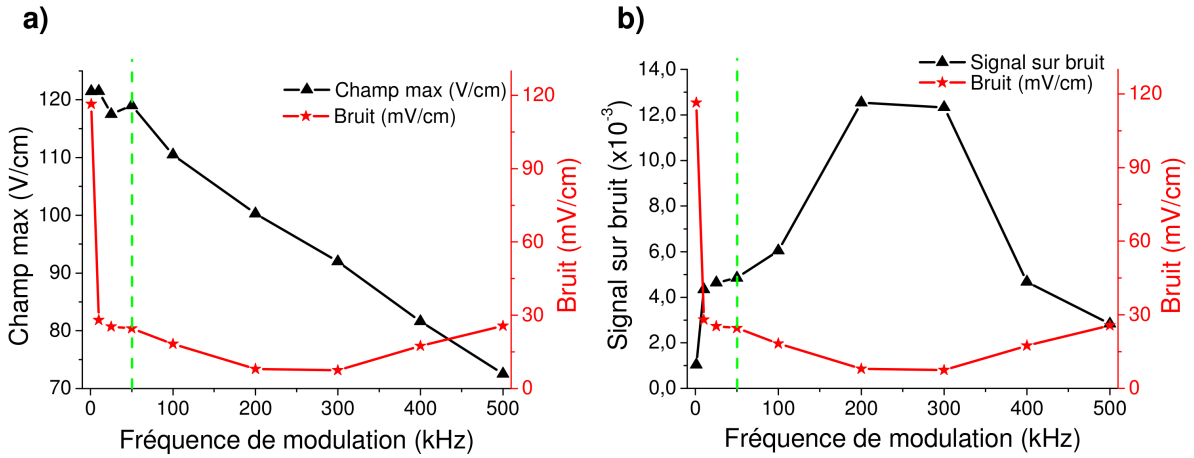


FIGURE 2.11: a) Dépendance en fonction de la fréquence de modulation de l'antenne photoconductrice du maximum de signal THz mesuré, et du bruit. b) Dépendance du bruit et du rapport signal sur bruit en fonction de la fréquence de modulation appliquée à l'antenne et servant de référence à la détection synchrone. Un trait vert en pointillés indique la fréquence à laquelle l'antenne a été modulée au cours des expériences présentées dans ce manuscrit.

discutons ici des méthodes qui permettent de limiter le bruit, et comparons ce bruit au bruit quantique de notre montage.

2.8.1 Choix de la fréquence de modulation

Le choix de la fréquence de modulation doit tenir compte du spectre du bruit ainsi que de la réponse en fréquence de l'antenne et du détecteur. Nous avons effectué des mesures de rapport signal sur bruit à différentes fréquences de modulation. Pour ce faire, nous avons mesuré un champ THz transmis par l'enceinte purgée en l'absence de tout échantillon et pour une tension appliquée à l'antenne de 4 V. La mesure du bruit est effectuée en bloquant le faisceau NIR excitant l'antenne. Les résultats de l'évolution du maximum du signal THz et du bruit en fonction de la fréquence de modulation sont représentés sur la figure 2.11 a). La figure 2.11 b) représente l'évolution du bruit et du rapport signal sur bruit en fonction de la fréquence de modulation utilisée. On remarque qu'il est préférable de moduler l'antenne à une fréquence de 300 kHz. Nous avons utilisé une fréquence de modulation de 50 kHz dans nos expériences, pour laquelle le rapport signal sur bruit est de l'ordre de 5000. Ce choix est justifié par l'application d'une surmodulation aux échantillons étudiés. Pour ces derniers, le temps de monté des signaux électriques, de l'ordre de la centaine de ns pour des tensions élevées, nous a contraint à opter pour des fréquences de surmodulation comprises entre 10 kHz et 50 kHz.

2.8.2 Choix et utilisation des photodiodes

L'utilisation d'une balance de photodiodes présente l'avantage de soustraire le bruit cohérent du laser (fluctuations en intensité et phase entre impulsions successives). Ceci nécessite une bonne calibration de la balance en réglant l'orientation de la lame quart d'onde, ainsi qu'un bon appariement des deux photodiodes utilisées. D'autre part, la puissance incidente sur les photodiodes ne doit saturer ni les photodiodes (saturation optique) ni l'amplificateur présent dans le montage de la balance (saturation électronique). Dans notre cas, la configuration optimale correspond à une dizaine de mW de puissance moyenne sur chaque photodiode. L'utilisation de photodiodes polarisées en inverse (régime photoconducteur) permet d'assurer un fonctionnement linéaire dans une large gamme de puissances optiques tout en rajoutant une source de bruit électronique. En ne polarisant pas les photodiodes (régime photovoltaïque), le bruit est moindre mais le régime de fonctionnement est non linéaire. C'est dans ce dernier régime que nous avons utilisé notre balance optique.

Le choix des photodiodes peut favoriser un meilleur appariement, avec des surfaces photosensibles plus petites, ou une plus forte puissance incidente avec des surfaces plus grandes mais un moins bon appariement. Le signal augmente linéairement avec la puissance incidente tandis que le bruit n'augmente que comme la racine de la puissance incidente [45]. Des photodiodes de grande taille peuvent être éclairées avec une puissance optique plus grande, ce qui augmente l'amplitude du signal mesuré plus que le bruit. Ceci nous a poussé à privilégier la taille des photodiodes et à opter pour une surface de 1 cm^2 pour les parties photosensibles. L'appariement de ces photodiodes s'est avéré suffisant pour soustraire une partie du bruit cohérent du laser aux basses fréquences.

2.8.3 Comparaison au bruit de grenaille

La limite inférieure théorique pour le bruit dans un montage expérimental est le bruit de grenaille (aussi appelé bruit quantique) optique et électronique. Nous calculons ici le bruit quantique électronique de la balance optique (discontinuité du flux d'électrons dans le circuit d'amplification), et comparons la variation de puissance équivalente de bruit laser (discontinuité du flux de photons) à la variation de puissance équivalente de bruit électronique, pour évaluer la capacité de notre montage à détecter de faibles variations de champ THz. Une étude similaire du bruit dans un montage de spectroscopie THz a été menée par Zhao *et al.* [45].

Calcul du bruit de grenaille électronique

Le bruit de grenaille pour le courant traversant chaque photodiode ΔI_{SN} s'exprime en fonction de la charge élementaire e, du courant I traversant une photodiode et de la bande passante $\Delta\nu$ du dispositif sous la forme [45] :

$$\Delta I_{\mathrm{SN}} = \sqrt{2eI\Delta\nu} \tag{2.6}$$

Pour deux photodiodes, il suffit de multiplier le terme ci-dessus par $\sqrt{2}$. Par ailleurs, le montage de la balance fait intervenir une résistance de 10 kΩ (cf figure 2.10). Le bruit du courant étant relié au bruit de la tension par la loi d'Ohm, on en déduit une densité spectrale de bruit quantique électronique pour la tension de sortie : $V_{\mathrm{SN}} = 0.537\ \mu\mathrm{V}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$. À ce bruit de grenaille il faut rajouter le bruit thermique (aussi appelé bruit de Johnson-Niquist) de la résistance $V_{\mathrm{JN}} = \sqrt{4k_BTR} = 13\ \mathrm{nV}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ et le bruit propre à l'amplificateur utilisé $V_{\mathrm{OPA656}} = 7$ $\mathrm{nV}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$. Ces sources de bruit s'ajoutent quadratiquement pour donner un bruit électronique total :

$$V_{\text{élec}} = \sqrt{V_{\mathrm{SN}}^2 + V_{\mathrm{JN}}^2 + V_{\mathrm{OPA656}}^2} \simeq V_{\mathrm{SN}} \tag{2.7}$$

Limite de détection théorique du montage

Il est intéressant de savoir si notre montage a une sensibilité suffisante pour pouvoir détecter un champ électrique de même amplitude que le bruit quantique du laser. Pour le savoir, nous calculons les plus petites variations de puissance (ΔP_{VPEB}) que l'on peut mesurer sur le faisceau de référence NIR (de puissance P_{NIR}). Cette variation de puissance génère un signal exactement égal au bruit. La variation de puissance équivalente de bruit (VPEB) est définie par la relation suivante [45] :

$$\frac{\Delta P_{\mathrm{VPEB}}}{P_{\mathrm{NIR}}\sqrt{\Delta\nu}} = \frac{\sqrt{2\overline{(\Delta I_{\mathrm{SN}})^2}}}{2I\sqrt{\Delta\nu}} \tag{2.8}$$

À partir des valeurs expérimentales données plus haut, on trouve une VPEB de 5.97×10^{-9} $\mathrm{Hz}^{-\frac{1}{2}}$.

Cette valeur est à comparer aux variations de puissance dues au bruit quantique du laser. Les fluctuations quantiques du laser sont reliées à l'énergie d'un photon $\frac{hc_0}{\lambda}$ par [45] :

$$\frac{\Delta N_{\mathrm{SN}}}{N\sqrt{\Delta\nu}} = \sqrt{\frac{4\pi\hbar c_0}{P_{\mathrm{NIR}}\lambda}} \tag{2.9}$$

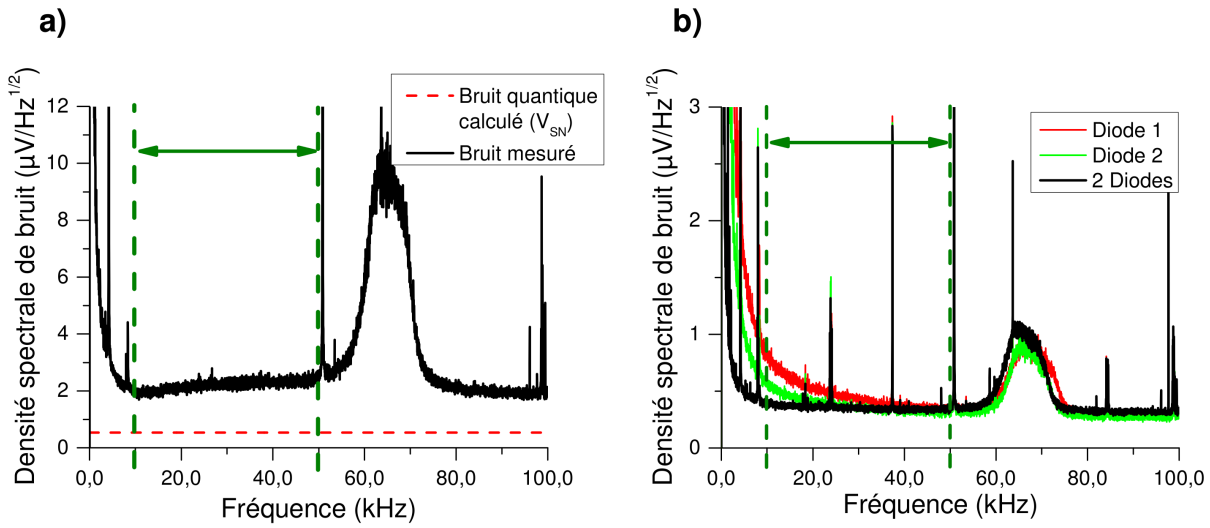


FIGURE 2.12: a) Comparaison du spectre du bruit de la balance de photodiodes avec le bruit de grenaille calculé en additionnant toutes les sources de bruit quantique. b) Spectre du bruit en sortie de la balance de photodiode pour une seule diode éclairée (courbes verte et rouge) ou lorsque les deux diodes sont éclairées (courbe noire). Une résistance de 1 kΩ est rajoutée au circuit de transimpédance. Elle évite la saturation de l'amplificateur lorsqu'une seule photodiode est éclairée par le laser. L'intervalle délimité par les traits verts indique les fréquences de modulation utilisées dans le cadre des expériences menées au laboratoire.

où ΔN_{SN} désigne les fluctuations du nombre de photons, N le nombre de photons émis et P_{NIR}, la puissance du faisceau. Nous trouvons ainsi un bruit quantique du laser valant 6.36×10^{-9} photons/$\sqrt{\mathrm{Hz}}$. Cette valeur est très proche de la VPEB de 5.97×10^{-9} $\mathrm{Hz}^{-\frac{1}{2}}$ calculée plus haut, et lui est légèrement supérieure. Notre montage nous permet donc théoriquement de voir le bruit de grenaille du laser.

Efficacité du montage

La figure 2.12 a) affiche le bruit électronique mesuré avec un analyseur de spectre en sortie de la balance de photodiodes éclairée par le laser. On remarque que le bruit de fond d'environ 2 $\mu\mathrm{V}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ à 50 kHz est légèrement supérieur au bruit quantique électronique $V_{\mathrm{SN}} = 0.537$ $\mu\mathrm{V}/\sqrt{\mathrm{Hz}}$ calculé précédemment. L'écart correspond probablement à un appariement imparfait des deux photodiodes qui ne permet pas de retirer complètement le bruit cohérent du laser. La figure 2.12 b) compare le bruit mesuré avec un analyseur de spectre sur chaque photodiode indépendamment (courbes verte et rouge) au bruit mesuré lorsque les deux photodiodes sont éclairées conjointement. On remarque effectivement une différence de bruit sur chaque photodiode malgré

une puissance optique reçue identique ce qui légitime l'hypothèse d'un appariement imparfait.

2.9 Conclusion

La spectroscopie THz dans le domaine temporel (TDS) est une technique assez proche de la spectroscopie à transformée de Fourier (FTIR). Elle permet d'extraire le même type d'information de l'échantillon sondé et requiert des temps d'acquisition de durée comparable (quelques secondes à quelques minutes). La résolution spectrale est définie par la longueur de la ligne à retard dans le cas de la TDS comme dans la spectroscopie FTIR.

La différence majeure vient de la détection cohérente des champs THz pour notre technique expérimentale, qui permet de voir l'évolution d'un signal dans le temps, de choisir une fenêtre temporelle adaptée pour l'acquisition des données et de ne détecter aucun signal parasite incohérent par rapport aux impulsions NIR fs et THz utilisées. Ceci rend la spectroscopie THz dans le domaine temporel particulièrement intéressante pour l'étude des semiconducteurs dans la gamme de fréquence comprise entre 0.5 et 4 THz. D'autre part, il est possible de procéder à des expériences de type pompe-sonde pour étudier les temps caractéristiques de processus physiques dans les solides.

Nous exploitons ces possibilités offertes par notre montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel pour étudier un semiconducteur très prometteur pour la génération de rayonnement dans l'infrarouge : le laser à cascade quantique. Ce dispositif est souvent présenté comme le semiconducteur le plus susceptible de combler un jour le gap THz et mobilise beaucoup d'efforts pour progresser dans la compréhension de son fonctionnement en vue d'atteindre des performances compatibles avec les applications.

Chapitre 3

Les lasers à cascade quantique

Depuis l'observation du premier effet laser dans un laser à cascade quantique (LCQ) en 1994 [20], ce dispositif s'est progressivement imposé comme un semi-conducteur intéressant pour générer du rayonnement dans la gamme infrarouge. L'extension de la fréquence d'émission des lasers à cascade quantique vers le THz en 2002 [22] a ouvert des perspectives prometteuses pour répondre au besoin technologique d'un émetteur dans cette gamme du spectre électromagnétique. Le LCQ est un dispositif complexe qui repose sur des transitions intersousbandes de faible énergie dans une structure périodique. Il est le siège de phénomènes de relaxations non radiatifs encore peu étudiés tels que les mécanismes de diffusion sur les rugosités d'interface, les intéraction électron-électron etc. Le laser à cascade quantique est aujourd'hui au stade de la commercialisation pour les dispositifs émettant dans l'infrarouge moyen, tandis que le LCQ THz ne fonctionne qu'à des températures maximales de 186 K en régime impulsionnel [53]. Dans ce chapitre, nous présentons d'abord brièvement les lasers à diodes semi-conductrices et les développements historiques qui ont permis de concevoir le premier laser à cascade. Nous détaillons le principe de fonctionnement et les caractéristiques du laser à cascade quantique avant de discuter brièvement de propriétés du gain dans ce dispositif, que nous avons étudié dans les expériences présentées aux chapitres 4, 5 et 6. Pour une description approfondie du fonctionnement des LCQ nous recommandons les références suivantes : [54], [55].

3.1 Ingénierie quantique dans les hétérostructures semi-conductrices

Dans un premier temps nous présentons brièvement l'histoire des sources laser semi-conductrices s'appuyant sur des transitions électroniques dans des puits quantiques uniques, avant de décrire plus en détail les propriétés de structures mutlipuits qui ont servi à développer des lasers infrarouge.

3.1.1 Les lasers à diodes semi-conductrices

Principe de fonctionnement d'un laser à puits quantique

Pour obtenir l'effet laser deux ingrédients sont nécessaires : un milieu amplificateur dans lequel on arrive à maintenir une population électronique supérieure dans l'état excité que dans l'état fondamental (inversion de population) et une cavité pour permettre à l'onde électromagnétique se propageant dans le laser de croître en amplitude en traversant plusieurs fois le milieu amplificateur. L'effet laser dans un semi-conducteur a pour la première fois été démontré en 1962 dans des homojonctions par 4 groupes différents [56],[57],[58],[59]. Ces premiers dispositifs s'appuyaient sur une jonction entre du GaAs dopé p et du GaAs dopé n, fournissant les porteurs de charge (électrons et trous) qui émettent de la lumière en se recombinant.

Le premier laser à puits quantique a été démontré en 1978 [60]. Le confinement des électrons et trous dans un puits a permis de considérablement réduire le courant seuil de ce dispositif par rapport aux premiers lasers semi-conducteurs.

Tout comme dans le cas du premier laser semi-conducteur, la diode laser à puits quantique émet de la lumière par la recombinaison d'un électron de la bande de valence avec un trou de la bande de conduction. Le dopage des substrats en donneurs (n) et accepteurs (p) de part et d'autre du puits quantique fournit les porteurs de charge au dispositif.

Dans le puits quantique, le confinement des électrons donne lieu à l'apparition de niveaux d'énergie discrets suivant l'axe de croissance de l'échantillon. Les électrons et les trous peuvent se mouvoir librement dans le plan du puits quantique (perpendiculairement à l'axe de croissance), ce qui donne lieu à un profil parabolique des bandes d'énergie dans le puits (cf figure 3.1 a)).

Du fait de la différence de courbure des sousbandes de valence et de conduction, la raie d'émission de ces lasers est élargie, et la densité d'états à 2 dimensions présente le profil représenté sur la figure 3.1 b).

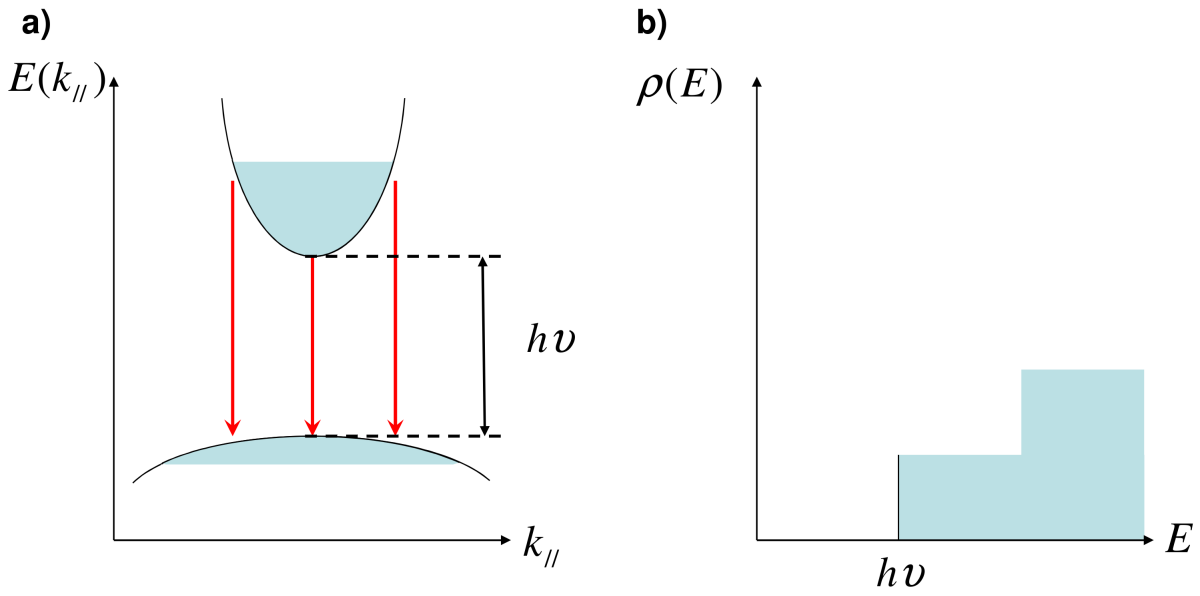


FIGURE 3.1: a) Schéma du diagramme de bandes dans l'espace des phases d'une diode laser semi-conductrice à puits quantique (centré sur la vallée Γ). b) Densité d'états d'une diode laser à puits quantique.

Limitation pour émettre aux grandes longueurs d'onde

La longueur d'onde d'émission d'un laser à puits quantique dépend de l'espacement en énergie entre la bande de valence et la bande de conduction (appelé gap) du matériau constituant le puits. Ce gap ne dépend que de la nature du matériau utilisé, ce qui nécessite de changer le matériau pour changer la longueur d'onde d'émission. Avec les matériaux III-V et II-VI, les lasers à diodes couvrent aujourd'hui le spectre électromagnétique entre le proche UV et le proche IR. Les lasers à diodes à base de PbSe [61] permettent d'atteindre des longueurs d'onde allant au plus jusqu'à 20 μm et même à température ambiante à 5 μm [62]. La plupart de ces lasers moyen infrarouge nécessitent cependant un refroidissement à des températures cryogéniques.

Il est difficile de réaliser une diode laser à puits quantique émettant dans le THz en raison de la faible énergie qu'un tel gap représenterait, de l'ordre du meV à la centaine de meV.

Les énergies typiques du lointain infra-rouge (quelques meV) correspondent aux énergies qui interviennent au sein de la bande de valence et de conduction. On appelle de telles transitions des transitions intersousbandes, et elles s'observent par exemple entre niveaux électroniques à l'intérieur d'un puits quantique.

3.1.2 Les transitions intersousbandes

Historique

Bien que l'existence de transitions intersousbandes était prévue par la mécanique quantique depuis les années 1960 [63], elles ne furent observées pour la première fois et de façon indirecte par une technique s'appuyant sur la spectroscopie par diffusion inélastique qu'en 1979 par le groupe de Pinczuk [64]. La première preuve expérimentale directe d'une transition intersousbandes dans un puits quantique a été réalisée en 1985 par West et Eglash [65] dans du GaAs/AlGaAs à l'incidence de Brewster.

La première émission de lumière par transition intersousbandes n'a cependant été observée qu'en 1988 par Helm [66]. L'idée d'utiliser les transitions intersousbandes pour fabriquer un laser est apparue dès 1960 avec B. Lax [67], qui proposait d'utiliser une transition entre niveaux de Landau. Cependant ce n'est qu'avec l'apparition des superréseaux, associations de plusieurs puits quantiques couplés entre eux, laissant apparaître des mini-bandes d'énergie, que les dispositifs laser à transitions intersousbandes ont pu voir le jour. La fabrication du premier superréseau a été proposée par Leo Esaki et Raphael Tsu en 1970 [68]. Ce n'est qu'un an plus tard que les chercheurs Kazarinov et Suris [69] de l'institut Ioffe ont proposé un dispositif unipolaire (c'est-à-dire ne reposant que sur un type de porteur de charge, ici les électrons) utilisant une structure multipuits semblable à un superréseau pour obtenir un effet laser grâce à des transitions intersousbandes. 23 ans plus tard en 1994 le premier effet laser s'appuyant sur des transitions intersousbandes, marquant la naissance du laser à cascade quantique, a été démontré par le groupe de F. Capasso [20]. Ce laser émettait dans le moyen IR, et il a fallu attendre 2002 [22] pour que le premier laser à cascade quantique THz voit le jour.

Niveaux d'énergie dans un puits quantique

Nous rappelons brièvement ici les relations définissant l'espacement en énergie des niveaux dans le système simple du puits quantique infini. Nous décrivons le comportement d'un électron unique dans la bande de conduction du puits dans l'approximation des électrons indépendants.

La dynamique des électrons dans un puits quantique est décrite par leur fonction d'onde $\Psi(\vec{r})$. La géométrie périodique conférée à un solide par sa structure cristalline se répercute sur la fonction d'onde électronique qui peut alors s'écrire comme une fonction de Bloch sous la forme : $\Psi_{n,k}(\vec{r}) = u_{n,k}(\vec{r})a_n e^{i\vec{k}.\vec{r}}$, où $u_{n,k}(\vec{r})$ est une fonction périodique, a_n un coefficient, n un indice identifiant la bande d'énergie sur laquelle se situe l'électron et $\vec{k}$ le vecteur d'onde de l'électron.

La relation de dispersion liant l'énergie E(k) des électrons au vecteur d'onde peut souvent

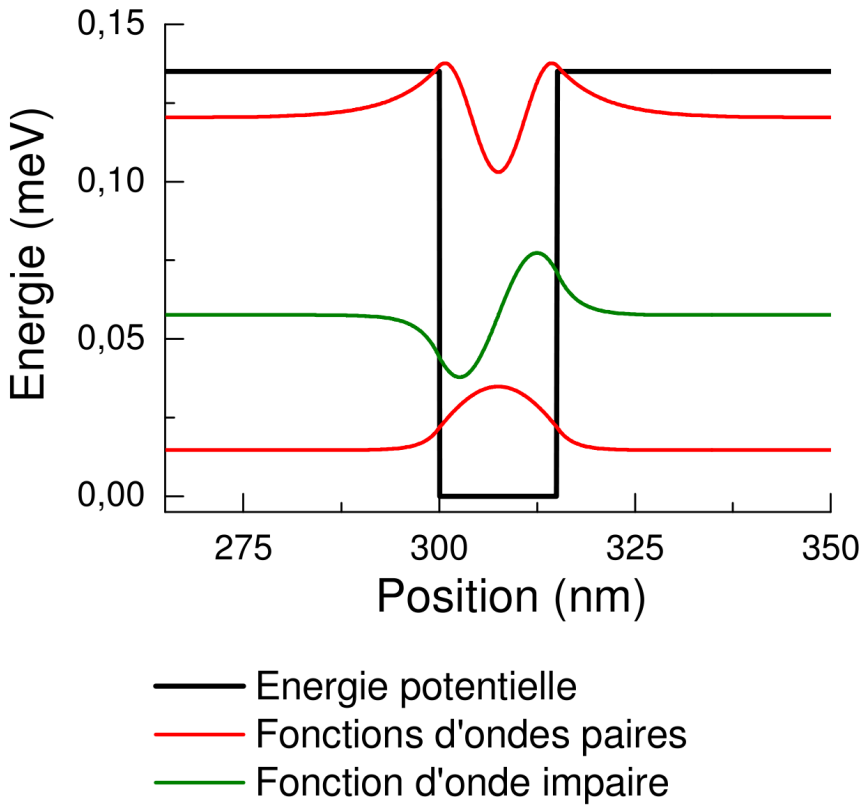


FIGURE 3.2: Représentation des fonctions d'onde électroniques dans un puits quantique de GaAs/AlGaAs calculées numériquement.

être approchée par un développement au second ordre. Cette approximation permet d'introduire une masse effective $m^* = \frac{1}{\hbar^2}\frac{\partial^2 E}{\partial k^2}^{-1}$. L'intérêt du concept de masse effective est qu'il permet de décrire le mouvement dans le solide de l'électron de masse m_0 comme celui d'un électron libre de masse m^*. L'équation de Schrödinger à résoudre fait alors intervenir uniquement le potentiel dû aux barrières du puits de potentiel et s'écrit :

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{\partial^2}{\partial z^2}\Phi_n(z) + V^{'}(z)\Phi_n(z) = E_n(k)\Phi_n(z) \tag{3.1}$$

où z est pris sur l'axe de croissance du puits quantique, et Φ_n désigne les fonctions d'onde dans la bande de conduction. Les fonctions d'onde solutions de cette équation dans le cas d'un potentiel infini sont : $\Phi_n(z) = \sqrt{\frac{2}{L}\sin(\frac{n\pi z}{L})}$ pour n pair, $\Phi_n(z) = \sqrt{\frac{2}{L}\cos(\frac{n\pi z}{L})}$ pour n impair et les énergies propres s'écrivent :

$$E_n = \frac{\hbar^2\pi^2 n^2}{2m^* L^2} \tag{3.2}$$

À partir de ces résultats nous remarquons que l'espacement en énergie entre niveaux dans

le puits quantique infini $\Delta E_n = \frac{\hbar^2\pi^2(2n+1)}{2m^*L^2}$ dépend de L et de m^*, ce qui permet de concevoir des transitions de longueur d'onde voulue en sélectionnant convenablement ces deux paramètres. Cette dépendance de l'énergie en fonction de L et de m^* reste valable lorsque l'on considère un système plus réaliste que celui décrit ici, comme en témoigne le calcul numérique effectué sur un puits quantique de GaAs/AlGaAs dont les fonctions d'onde électroniques sont représentées sur la figure 3.2. Cette liberté de choix dans la fréquence des transitions intersousbandes rend possible l'ingénierie des structures de bande, et permet de concevoir des lasers dans le moyen et lointain infrarouge.

Règles de sélection dans les transitions intersousbandes

La mécanique quantique impose des règles de sélection pour les transitions radiatives entre niveaux d'énergie. Nous rappelons ici brièvement les conditions que doit vérifier une onde électromagnétique interagissant avec une transition intersoubandes pour être absorbée par cette dernière où pour induire une émission stimulée. Un traitement plus complet est diponible aux références suivantes [70] [71].

Le hamiltonien d'interaction d'une onde électromagnétique $\overrightarrow{E}(\vec{r},t) = E(\vec{r},t)\vec{\epsilon}$ (où $\vec{\epsilon}$ désigne le vecteur polarisation du champ électrique) avec une transition intersousbandes entre deux niveaux $\langle i|$ et $|f\rangle$ ayant pour fonction d'onde $\Psi_i(\vec{r}) = u_n(\vec{r})f_i(\vec{r})$ sur l'état $\langle i|$ et $\Psi_f(\vec{r}) = u_n(\vec{r})f_f(\vec{r})$ sur l'état $|f\rangle$ peut se limiter au terme dipolaire électrique, proportionnel à l'opérateur $\vec{\epsilon}.\vec{P}$. L'élément de matrice de l'interaction entre l'onde et l'électron peut alors se mettre sous la forme :

$$\langle i|\,\vec{\epsilon}.\vec{P}\,|f\rangle = \vec{\epsilon}.\,\langle u_n|\,\vec{P}\,|u_n\rangle \int_V f_i^* f_f \mathrm{d}^3r + \vec{\epsilon}.\langle u_n \mid u_n\rangle \int_V f_i^* \vec{P} f_f \mathrm{d}^3r \tag{3.3}$$

où V représente le volume du solide considéré. L'opérateur impulsion étant impair, le premier terme de cet élément de matrice est toujours nul pour des transitions intersousbandes.

Dans un puits quantique dont l'axe de croissance est selon z, les fonctions enveloppe sont des fonctions de z, ce qui implique que l'unique terme non nul de l'élément de matrice de l'interaction dipolaire devient : $\langle i|\,\vec{\epsilon}.\vec{P}\,|f\rangle = \vec{\epsilon}.\int_V f_i^*(z)\vec{P}_z f_f(z)\mathrm{d}z$. Par conséquent, nous avons comme règle de sélection que les seules composantes d'un champ électrique qui contribuent aux transitions intersousbandes sont perpendiculaires aux interfaces d'un puits (selon l'axe de croissance du puits). Une onde électromagnétique ayant une interaction dipolaire électrique avec une transition intersousbandes doit donc avoir une composante transverse magnétique (TM) non nulle.

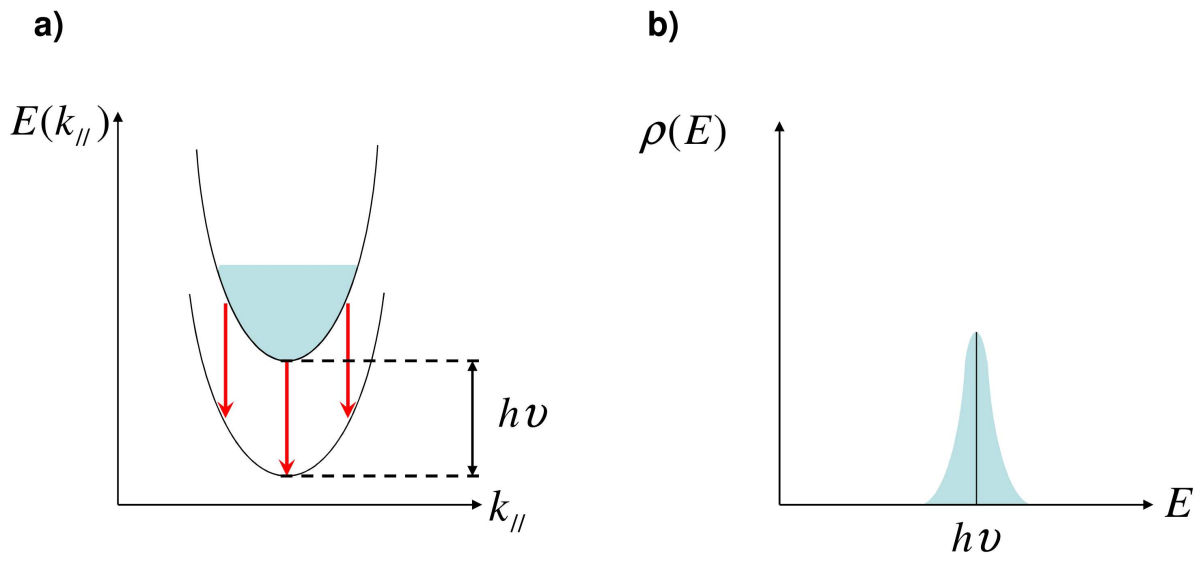


FIGURE 3.3: a) Représentation schématique de sousbandes d'energie de la bande de conduction d'un semiconducteur dans l'espace des phases. b) Densité d'état associée à des transitions intersousbandes.

Largeur de raie d'émission

Du fait d'une courbure quasi identique pour toutes les sous bandes dans un semi-conducteur (aux effets de non parabolicité près, cf figure 3.3 a)), les transitions optiques verticales sont toutes à la même énergie, quel que soit le vecteur d'onde de l'électron effectuant une désexcitation radiative. Ceci garantit une largeur de raie plus fine que dans les transitions interbandes où les différences de courbure de bande entre les sous-bandes de conduction et les sous-bandes de valence sont responsables d'un élargissement de la raie d'émission.

Cette courbure modifie également la densité d'états par rapport au cas des lasers à diodes. La densité d'états dans un système à transitions intersousbandes a un profil qui se rapproche d'une fonction de Dirac caractéristique des transitions atomiques (cf figure 3.3 b)).

3.2 Principe de fonctionnement d'un laser à cascade quantique

Nous décrivons ici comment l'inversion de population peut être obtenue dans un laser à cascade quantique. Le passage d'un puits quantique unique décrit plus haut à une structure multipuits ne change pas les propriétés des transitions intersousbandes que nous avons identifiées dans la partie précédente.

3.2.1 État de l'art des lasers à cascade quantique

Depuis la mise en évidence du premier effet laser dans une structure à cascade quantique, ces dispositifs ont connu un développement rapide qui en 2002 a permis de créer le premier laser dans le moyen IR émettant en continu à température ambiante [21]. Cette même année, le premier laser à cascade quantique THz a été démontré [22]. Nous ferons ici un bref état de l'art de ces lasers à cascade quantique avant de présenter les obstacles à surmonter pour espérer couvrir le gap THz à l'aide de ces dispositifs.

Lasers à cascade quantique dans le moyen IR

Les lasers à cascade quantique sont des dispositifs dont la technologie est devenue suffisamment mûre pour couvrir la gamme du moyen infrarouge avec des émetteurs en régime continue et à température ambiante [21]. Ceci a été possible grâce à l'utilisation d'un double étage à phonons pour dépeupler efficacement le niveau fondamental de la transition radiative.

Aux courtes longueurs d'onde, l'utilisation de matériaux InAs/AlSb de la filière antimoniure a permis de fabriquer des sources fonctionnant à température ambiante à des longueurs d'onde allant jusqu'à 2,75 μm [72]. Ces matériaux à grand décalage de bande (2.1 eV) sont nécessaires pour des transitions optiques d'énergie élevée (450 meV pour une longueur d'onde de 2.75 μm, à comparer au décalage de bande de 180 meV dans un laser GaAs/AlGaAs).

Pour les lasers moyen IR émettant entre 4 μm et 10 μm ce sont les matériaux InGaAs/AlInAs qui offrent les meilleures performances avec des puissances émises autour de 2 W en régime continu et un rendement à la prise supérieur à 50% [73].

Lasers à cascade quantique dans le THz

Les lasers à cascade quantiques THz n'ont pas encore atteint les performances de leurs homologues dans le moyen IR. Leur température de fonctionnement ne dépasse pas les 186 K [53] en régime pulsé et 117 K en régime continu [74]. Ces lasers exploitent les matériaux GaAs/AlGaAs, dont la croissance est parfaitement maitrisée. Récemment, l'équipe de R. Colombelli a réussi à contrôler le mode optique émis par un laser à cascade quantique THz à géométrie circulaire ce qui constitue un progrès dans la maîtrise de l'extraction de la lumière de ces dispositifs sub-longueur d'onde [75].

En terme de spectre d'émission, les LCQ THz couvrent les fréquences de 0.95 THz à 5 THz [76]. Des contraintes physiques rendent compliquée la réalisation d'un LCQ THz à des fréquences plus petites ou plus élevée, nous aborderons ce problème dans la partie (3.2.5).

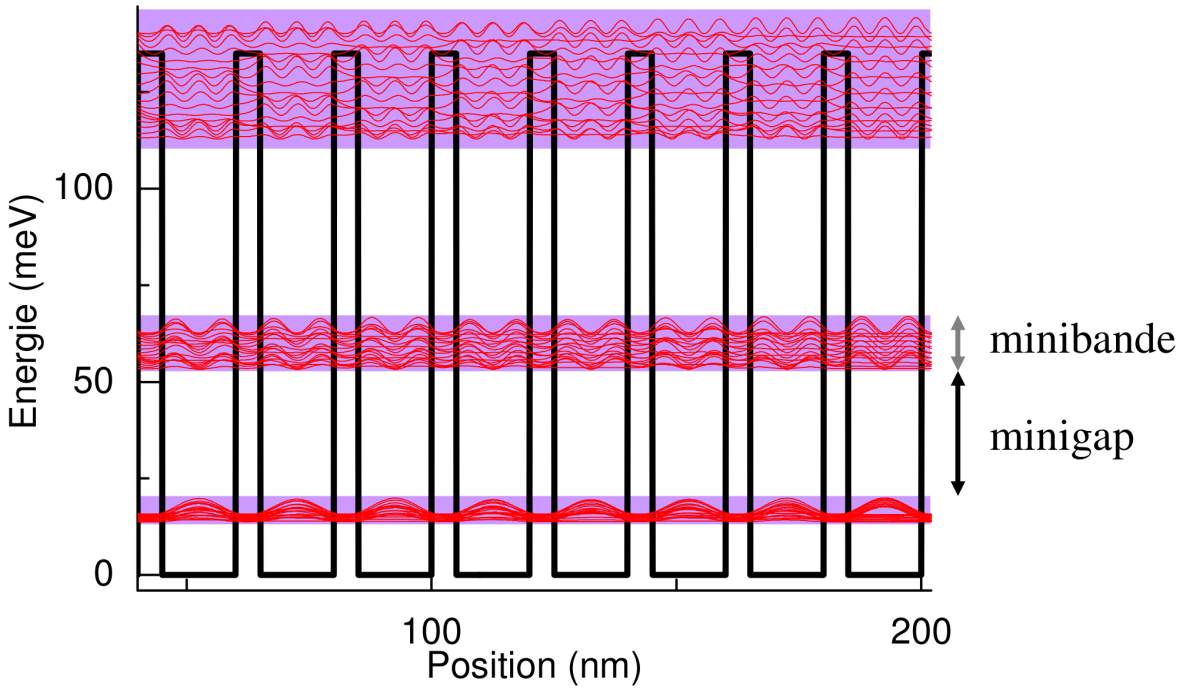


FIGURE 3.4: Représentation des modules au carré des fonctions d'onde électroniques dans un superréseau issus d'un calcul numérique. On voit apparaître des minibandes.

3.2.2 Propriétés générales des lasers à cascade quantique

Délocalisation des fonctions d'onde électroniques dans une structure multipuits avec des barrières fines

Lorsque deux puits quantiques sont séparés par une barrière de potentiel épaisse (de longueur supérieure à 200 Å typiquement), les électrons restent confinés dans leurs puits et transitent difficilement d'un puits à l'autre par effet tunnel. Lorsqu'on réduit l'épaisseur de la barrière de potentiel séparant les deux puits, la probabilité de passage par effet tunnel d'un puits à l'autre augmente, ce qui se traduit par une fonction d'onde électronique délocalisée. Le couplage entre les puits provoque l'apparition de nouveaux niveaux d'énergie communs au système formé par ces deux puits quantiques. [71]

Dans une structure multipuits avec des barrières fines, un grand nombre de puits quantiques sont couplés entre eux, ce qui implique une délocalisation des électrons dans toute la structure du solide et l'apparition d'une multitude de niveaux d'énergie. L'espacement entre certains de ces niveaux d'énergie est faible, formant ainsi ce que l'on appelle une mini-bande. Les mini-bandes d'énergie sont séparées par un mini-gap (cf figure 3.4).

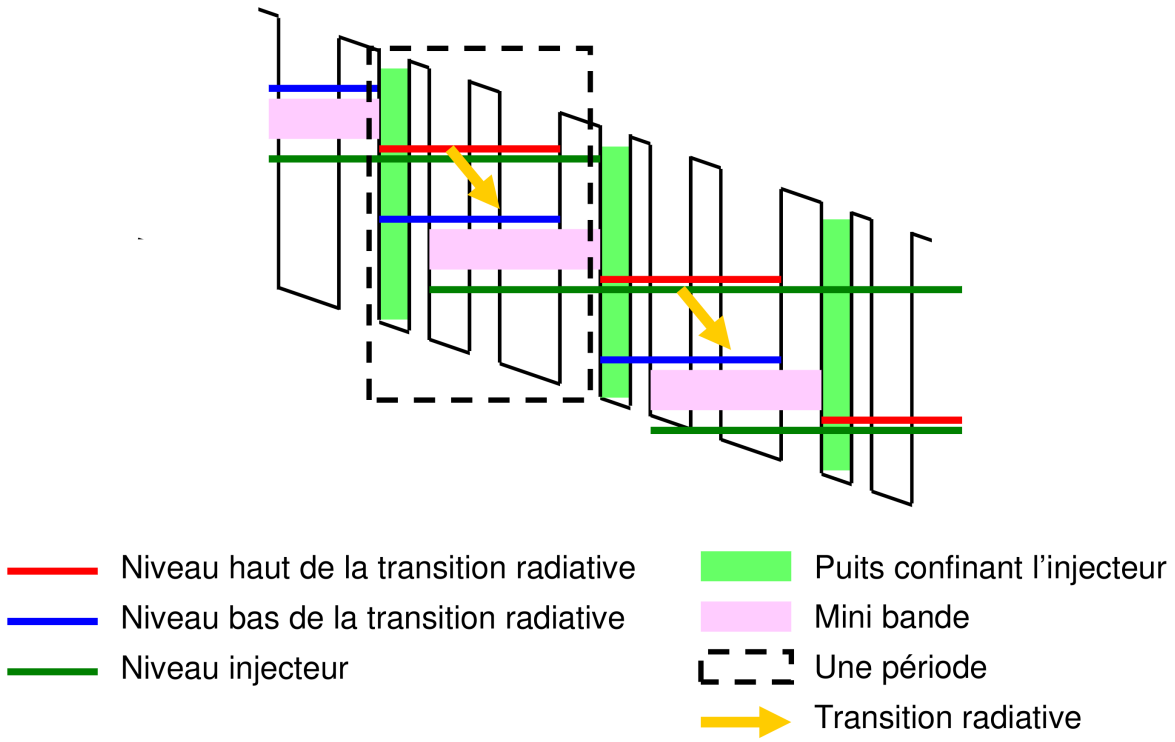


FIGURE 3.5: Représentation des niveaux d'énergie intervenant dans l'émission laser dans la bande de conduction d'un laser à cascade quantique.

Dispositif unipolaire pompé électriquement

Les lasers à cascade quantique s'appuient sur des transitions intersousbandes dans la bande de conduction d'une structure multipuits avec des barrières fines. De cette manière, les trous n'interviennent pas dans le fonctionnement de ces dispositifs faisant du LCQ un laser unipolaire.

Le LCQ est un dispositif pompé électriquement. L'injection de courant dans le laser est réalisée en lui appliquant une tension perpendiculairement aux couches minces dont il est constitué. Cette tension de polarisation provoque l'apparition d'un gradient de potentiel modifiant la structure de bande du laser. Un laser à cascade quantique est conçu de façon à faire apparaître une transition radiative et des canaux de relaxation non radiative permettant d'obtenir l'inversion de population.

Région active, injection et extraction d'électrons

Lorsqu'on représente les niveaux d'énergie dans la bande de conduction d'un laser à cascade quantique polarisé, on obtient une structure similaire à celle représentée sur la figure 3.5. Cette figure permet de distinguer les puits et les barrières de potentiel dans la bande de conduction

du LCQ ainsi que 3 niveaux d'énergie importants : le niveau excité de la transition radiative (représenté en rouge), le niveau fondamental de la transition radiative (représenté en bleu) et le niveau dit injecteur. La figure 3.5 fait également apparaître des mini-bandes. Différents dessins de lasers à cascade quantique existent, et ceux auxquels nous nous sommes intéressés dans cette thèse sont présentés dans la partie (3.2.3).

Dans la structure multipuits d'un laser à cascade quantique on peut distinguer deux zones : la région active, formée d'un petit nombre de puits quantiques dans lesquels les électrons du niveau excité et fondamental de la transition radiative ont de fortes probabilités de présence ; et les zones d'injection et extraction d'électrons constituées de niveaux servant à acheminer les porteurs (électrons) vers le niveau excité de la région active et à les extraire du niveau fondamental. Un ensemble de puits quantiques de la structure incorporant une région active et une zone d'injection et extraction d'électrons constitue ce que l'on appelle une période (cf figures 3.5 et 3.6).

Un laser à cascade quantique est constitué d'un grand nombre de périodes, typiquement une centaine. Ceci permet théoriquement à un électron d'émettre autant de photons qu'il y a de périodes dans la structure, atteignant des efficacités quantiques (rapport entre le nombre de photons émis et le nombre d'électrons injectés) supérieures à 1.

Le niveau injecteur, souvent présent dans les lasers à cascade quantique, joue un rôle important dans leur fonctionnement. Ce niveau permet de séparer le niveau excité de la transition radiative des autres niveaux de la mini-bande et d'y injecter les électrons efficacement par effet tunnel résonant. Le recouvrement des fonctions d'onde électroniques des états de la minibande avec les niveaux de la transition radiative est alors faible, ce qui limite quelque peu les canaux non radiatifs qui peuplent le niveau fondamental de la transition optique. Les propriétés de ce niveau injecteur sont d'avoir un recouvrement à la fois avec le niveau excité de la transition radiative et avec les niveaux de la mini-bande, comme on peut le voir sur la figure 3.6, où le niveau injecteur est représenté en vert. Sa fonction d'onde électronique est fortement localisée dans un puits quantique dopé, que l'on appelle parfois également injecteur.

3.2.3 Structures à cascade quantique étudiées

L'art de fabriquer un laser à cascade quantique passe par la conception d'une succession de barrières et puits dont les épaisseurs et le dopage permettent d'obtenir l'inversion de population, et faire apparaître une transition radiative à l'énergie voulue. Pour obtenir l'inversion de population, le temps de vie des porteurs sur le niveau excité doit être long par rapport au temps de vie sur le niveau fondamental. La diffusion sur les interfaces, l'interaction entre électrons, l'émission

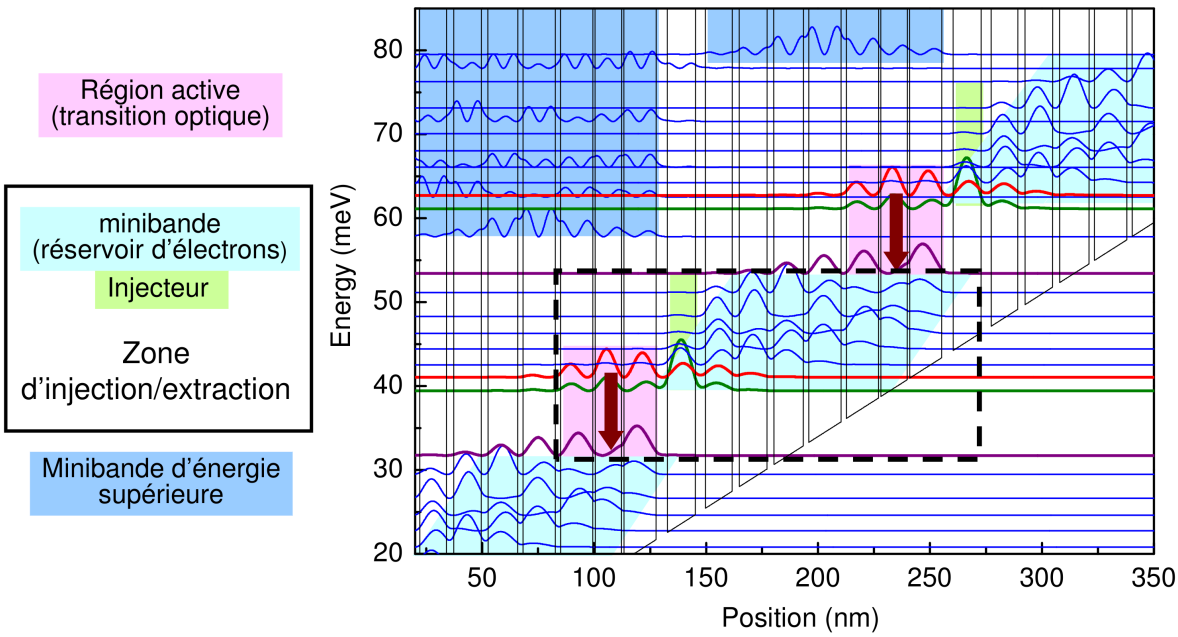


FIGURE 3.6: Représentation de la structure de bande du laser à cascade quantique " lié-continuum " ART 217 (2.1 THz), faisant apparaître les modules au carré des fonctions d'onde électroniques calculées numériquement.

de phonons sont des processus non radiatifs ayant des temps caractéristiques brefs de l'ordre de la ps à la centaine de ps [77], tandis que l'émission d'un photon est un processus lent (quelques μs) [77]. Les canaux non radiatifs de désexcitation des électrons ont des énergies faibles (THz et IR), par conséquent les transitions optiques sont en compétition avec les phénomènes non radiatifs, ce qui constitue une difficulté dans la réalisation de l'inversion de population. Aujourd'hui, la conception de structures laser à cascade quantique dans le moyen IR est bien maîtrisée et permet d'atteindre des performances compatibles avec les applications. Nous présentons ici 2 structures à cascade quantique THz différentes que nous étudions dans cette thèse.

Le laser " lié-continuum "

Apparus pour la première fois en 2001 [78], les lasers dits " lié-continuum " (appelés " bound to continuum " en anglais) sont une évolution d'un autre type de laser apparu en 1998, le laser " chirped superlattice " [79]. Ils sont conçus de façon à faire apparaître des réservoirs d'électrons dans des minibandes d'énergies, utilisées à la fois pour peupler le niveau excité et pour dépeupler le niveau fondamental de la transition optique. Le niveau excité de la transition optique est couplé à la minibande par l'intermédiaire d'un niveau injecteur dont la fonction d'onde électronique a

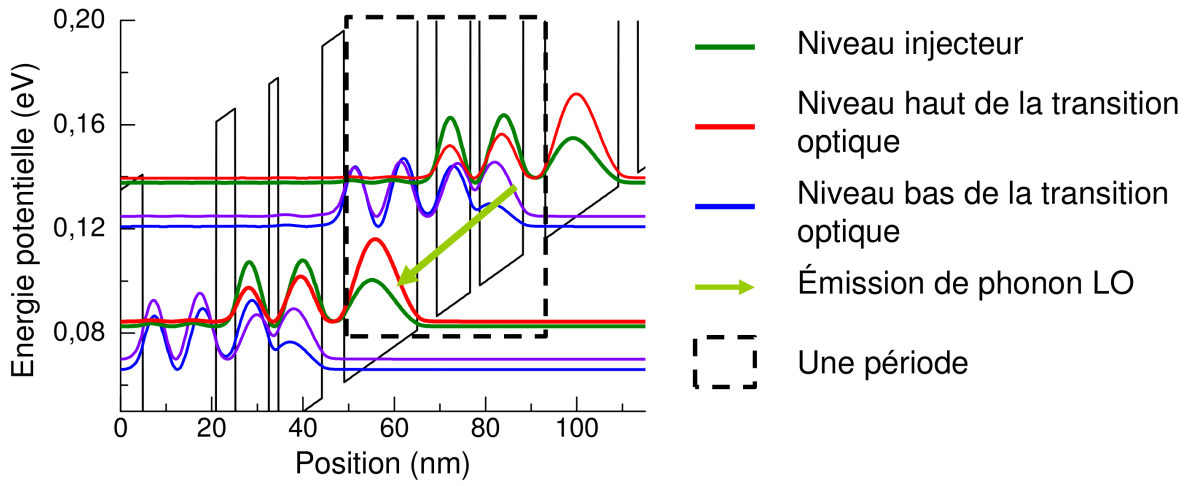


FIGURE 3.7: Structure de bande du laser à dépopulation par émission de phonon LO L234. Une période est encadrée par un rectangle en pointillés.

un recouvrement à la fois avec la minibande et le niveau excité de la transition radiative. Cette structure permet d'injecter les porteurs de façon efficace sur le niveau haut de la transition optique. L'utilisation d'une minibande pour dépeupler le niveau fondamental de la transition radiative permet de bénéficier des temps de relaxation rapides des diffusions sur les rugosités d'interface (quelques ps) [80] et les interactions entre électrons (quelques ps) [77]. Cependant, ces mécanismes de dépeuplement du niveau fondamental ne sont pas encore bien compris en raison du manque de données expérimentales sur leur dynamique.

Le laser à dépopulation par émission de phonon longitudinal optique

Le laser le plus efficace en terme de puissance émise et de température maximale de fonctionnement conçu jusqu'à présent, dont le principe a permis de fabriquer des LCQ couvrant la gamme du proche et moyen infrarouge jusqu'à atteindre un fonctionnement en régime continu et à température ambiante est le laser reposant sur l'émission de phonons longitudinaux optiques (laser LO-phonon) pour dépeupler le niveau fondamental de la transition optique. L'émission d'un phonon LO dans le GaAs permet de faire perdre 36 meV d'énergie aux électrons [81]. Ce mécanisme s'avère très efficace et rapide pour désexciter le niveau fondamental. Dans ces dispositifs, les périodes sont généralement constituées d'un nombre plus faible de puits et barrière, comme en témoigne la figure 3.7. Il existe, tout comme dans les lasers " lié-continuum ", un niveau injecteur pour assurer une population électronique suffisante sur le niveau excité de la transition radiative.

Ces lasers présentent des performances supérieures aux lasers " lié-continuum " pour la puissance d'émission et les températures maximales de fonctionnement. Cependant, les lasers à dépopulation par émission de phonon LO (appelés par la suite lasers LO-phonon), ont des courants seuils supérieurs aux lasers " lié-continuum ", ce qui motive le développement et l'étude de ces deux types de structures.

3.2.4 Propriétés spécifiques aux lasers à cascade quantique THz

Les lasers THz nécessitent une conception particulière pour à la fois guider un champ électromagnétique de grande longueur d'onde ($\lambda \approx 100$ μm) et pour injecter du courant dans ce dispositif pompé électriquement. Nous décrivons ici la géométrie typique des lasers THz que nous avons étudié et le guide d'onde utilisé.

Géométrie d'un LCQ THz

La fabrication d'un LCQ requiert la précision offerte par l'épitaxie par jets moléculaire. Les périodes d'un LCQ confèrent à ce dispositif une épaisseur de zone active (on nomme ainsi le milieu amplificateur constitué par la structure multipuits) de l'ordre de la dizaine de microns. Les échantillons émettant dans le THz sont gravés en rubans ayant pour largeur typique 200 μm environ. Les rubans lasers utilisés ont pour longueur quelques millimètres, ce qui permet d'atteindre un bon compromis entre le courant nécessaire pour aligner la structure de bande, et les pertes des miroirs, ces deux paramètres étant proportionnels à la taille du ruban.

Les miroirs de la cavité amplificatrice sont fabriqués en clivant le ruban laser suivant un axe cristallographique du matériau dont la structure est constituée. Ce clivage garantit des miroirs de cavité de bonne qualité. On appelle ces miroirs Fabry-Pérot des facettes, et c'est par ces facettes que l'émission cohérente a lieu, et via lesquelles nous couplons nos impulsions THz issues de l'antenne photoconductrice. Notons qu'il existe également des lasers à rétroaction répartie (" Distributed Feedback " en anglais) qui permettent d'émettre le rayonnement cohérent par la surface du dessus de l'échantillon et non par les facettes [82].

Des contacts métalliques sont disposés sur le dessus de l'échantillon, recouvert d'une couche d'or, et à proximité de l'échantillon sur la couche dopée située sur le substrat GaAs, sur laquelle une autre couche d'or est déposée (cf figure 3.8). Les contacts métalliques servent à appliquer une tension de polarisation à l'échantillon. Les LCQ sont conçus de façon à ce que le courant traverse l'échantillon depuis le contact métallique supérieur vers le substrat. Entre le substrat et le LCQ, ainsi qu'entre la couche métallique déposée sur l'échantillon et le LCQ, on dépose une fine couche de GaAs fortement dopée. Elle permet d'éviter une barrière Schottky trop importante lors de

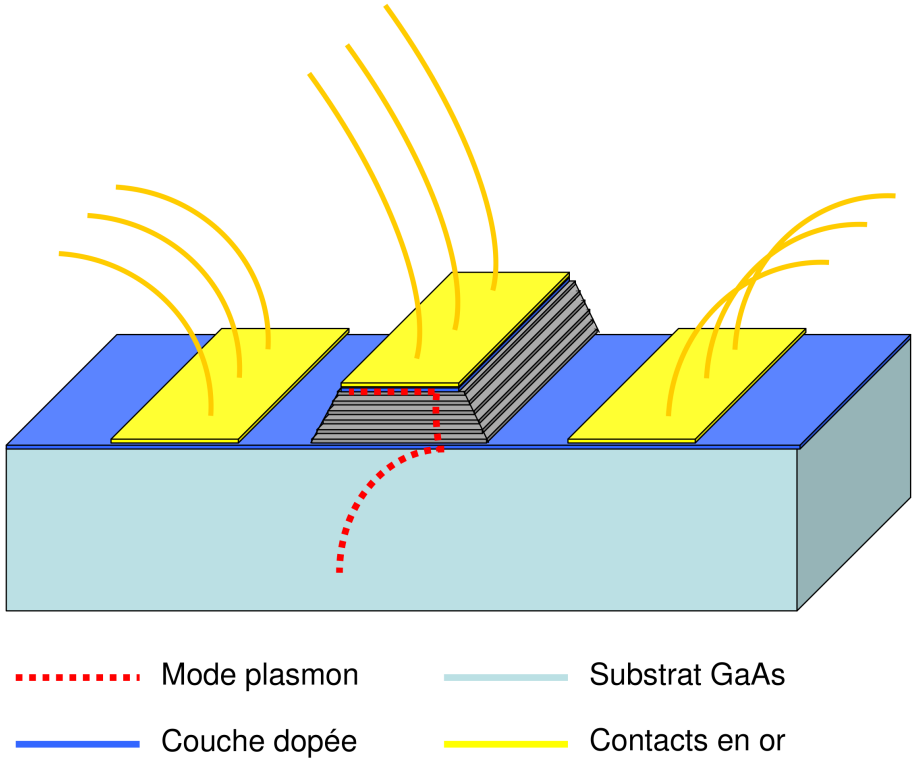


FIGURE 3.8: Représentation schématique d'un ruban laser à cascade quantique. Le mode plasmon servant à propager l'onde électromagnétique dans le guide est représenté en pointillés rouges.

l'injection du courant dans l'échantillon, et assure un contact entre la masse de l'échantillon, et la masse du circuit d'alimentation.

Guide d'onde à plasmon de surface

Les longueurs d'onde d'émission d'un laser à cascade quantique, quelques centaines de μm dans le THz, sont plus grandes que l'épaisseur de la zone active dans laquelle le rayonnement se propage (une dizaine de μm). Pour cette raison, afin de faire se propager une onde dans cette cavité d'épaisseur sub-longueur d'onde on utilise un plasmon de surface.

Les plasmons de surface sont des solutions particulières des équations de Maxwell qui apparaissent à l'interface entre deux matériaux ayant des permittivités diélectriques dont les parties réelles sont de signes opposés [83]. C'est le cas d'une interface constituée par un métal ($\Re(\epsilon) < 0$)) et un semi-conducteur ($\Re(\epsilon) > 0$). Les plasmons de surface sont des ondes évanescentes des deux côtés de l'interface, avec des épaisseurs de peau faibles dans le métal, où elles sont fortement absorbées, et des épaisseurs de peau plus grandes dans le semi-conducteur, qui leur permet de recouvrir toute la zone active d'un laser à cascade quantique.

Il existe deux types de guides d'onde à plasmon de surface utilisés dans les lasers à cascade quantique : les guides qui ne font intervenir qu'un seul plasmon, et les guides à cavité dite " double métal " faisant intervenir deux plasmons de surface. Les guides à un seul plasmon ont la particularité d'offrir un moins bon recouvrement du mode transverse avec la zone active (de l'ordre de 15% [84]), mais permet un couplage plus efficace d'une impulsion externe dans ce mode, et une meilleure extraction de ce dernier. Les miroirs de cavité du laser ont alors une réflectivité faible de l'ordre de 32% [85]. Les guides double métal offrent un très bon confinement du mode plasmon dans la zone active (avec un recouvrement de 98% [86]), mais le couplage d'une impulsion externe dans ce mode et l'extraction du rayonnement de la cavité sub-longueur d'onde sont plus difficiles. Les miroirs de cavité du laser ont dans ce cas une réflectivité élevée de l'ordre de 80% [85]. Dans le cas de nos expériences de spectroscopie THz nous étions contraints d'utiliser des guides à un seul plasmon de surface pour pouvoir coupler le plus de rayonnement THz possible dans nos échantillons.

3.2.5 Difficultés associées aux LCQ THz

Nous discutons brièvement des problèmes qui limitent l'optimisation des structures à cascade quantique dans la gamme THz. Il y a d'une part des difficultés liées à l'extraction de la lumière d'une cavité sub-longueur d'onde et d'autre part des difficultés liées à la physique des faibles énergies dans les semi-conducteurs.

Extraction de la lumière

Les cavités sub-longueur d'onde utilisées dans les lasers à cascade THz rendent difficile le couplage d'une impulsion externe dans le guide ainsi que l'extraction de l'impulsion. Cet effet concerne essentiellement les cavités à confinement double métal, les lasers reposant sur un seul plasmon ne confinant pas autant le mode électromagnétique dans la zone active. Des mesures du champ émis par un LCQ [87] ont montré que le faisceau émis par un LCQ THz à cavité double métal est très divergeant. Ceci rend difficile la collection du faisceau THz émis par le LCQ d'autant plus que son profil d'intensité n'est pas homogène [88].

Pour remédier à ce problème d'extraction de la lumière, il est possible d'utiliser un guide d'onde en forme de cornet posé sur le ruban laser et servant à adapter l'impédance sur la facette de sortie [89]. Dans le cas des lasers reposant sur un seul plasmon de surface pour guider l'onde THz, l'extraction de la lumière est facilitée par l'utilisation d'un revêtement anti-reflet sur la facette de sortie, qui permet d'abaisser la réflectivité de ce miroir [90].

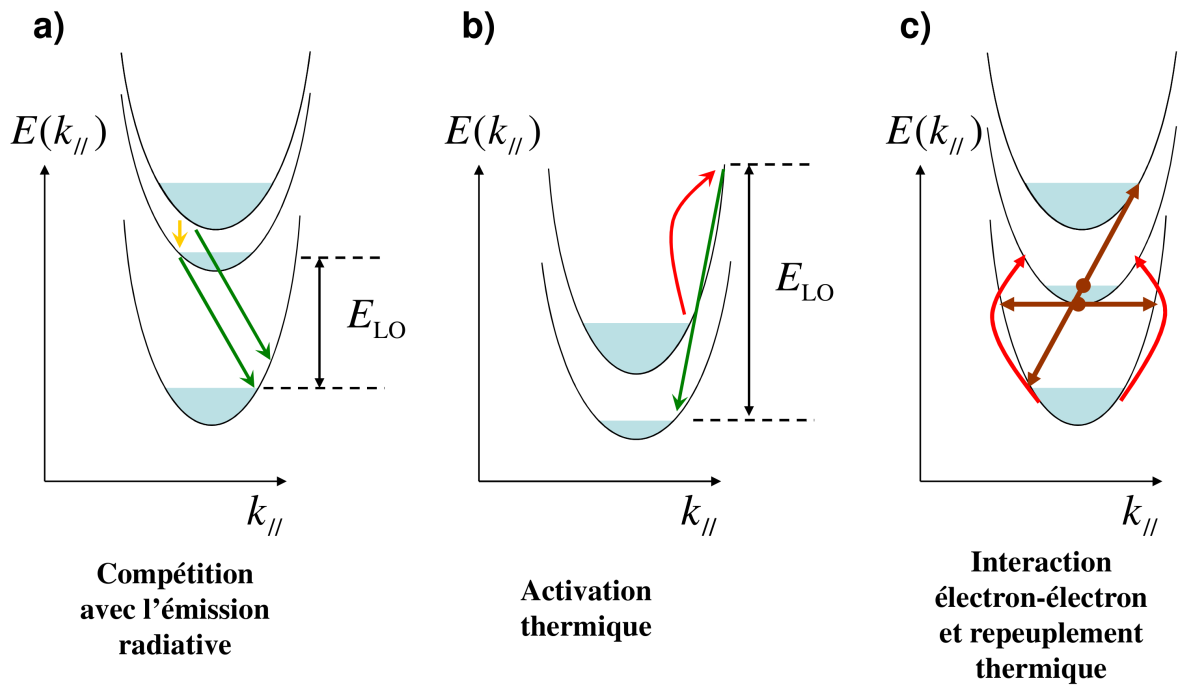


FIGURE 3.9: Représentations schématiques des principaux mécanismes de relaxation non radiatifs pouvant intervenir dans les lasers à cascade quantique sur des diagrammes de dispersion. a) Émission de phonons LO depuis le niveau excité et fondamental d'une transition THz. La flèche dorée représente la transition radiative. b) Activation thermique de l'émission d'un phonon LO. La flèche rouge représente la transition induite par excitation thermique. La flèche verte la relaxation par émission de phonon LO. c) Interactions électron-électron (flèches marrons) et excitation thermique (flèches rouges).

Phénomènes non radiatifs

L'utilisation d'une désexcitation rapide par émission de phonon LO dans les lasers à cascade est le procesus de relaxation non radiatif le plus efficace. Cependant, l'énergie d'un phonon LO dans le GaAs est de 36 meV ce qui correspond à 8 THz. La Reststrahlenband du GaAs (bande de fréquences correspondant à une forte absorption par les phonons) se situe entre 8 et 9 THz [91]. À ces fréquences, il est pratiquement impossible de concevoir un LCQ du fait de la rapide désexcitation des électrons par émission de phonons.

En dehors de la Reststrahlenband, on peut concevoir une transition résonante avec un phonon LO depuis le niveau fondamental pour utiliser la désexcitation rapide des électrons via ce canal. Cependant, la faible différence en énergie entre le niveau excité et fondamental de la transition radiative rend possible une désexcitation directe d'un électron depuis le niveau excité en émettant un phonon plutôt qu'un photon (cf figure 3.9 a)).

Une autre difficulté fondamentale dans la réalisation de lasers à cascade quantique THz est l'effet de la température sur les populations électroniques. Une température de 50 K suffit à exciter un électron sur une transition de 4 meV (1 THz). Par conséquent, les effets thermiques ont tendance à repeupler le niveau fondamental de la transition radiative et aller à l'encontre de l'inversion de population. Par ailleurs, une élévation de la température permet aussi d'activer l'émission de phonons LO en portant les électrons à des énergies élevées sur le bord d'une sousbande (cf figure 3.9 b)).

Finalement, d'autres mécanismes de relaxation non radiatifs, comme les interactions électron-électrons (cf figure 3.9 c)) ou la diffusion sur les impuretés ionisées ou les rugosités d'interface restent à ce jour peu étudiés expérimentalement ce qui rend plus difficile leur exploitation efficace pour améliorer les performances des lasers.

3.3 Gain dans un laser à cascade quantique

L'une des principales caractéristiques des lasers à cascade quantique que notre montage expérimental nous a permis d'étudier est le spectre du gain de nos échantillons. Le gain est un paramètre utile pour caractériser un échantillon dans la mesure où il est lié à la puissance absorbée ou amplifiée à la traversée de l'échantillon. Nous exposons ici des propriétés de base du gain dans les lasers à cascade quantique.

3.3.1 Expression théorique du gain intrinsèque

Dans les lasers à cascade quantique reposant sur des transitions intersousbandes, l'inversion de population est obtenue en adaptant les temps de relaxation des processus radiatifs et non radiatifs accessibles aux électrons. En admettant un profil lorentzien pour la raie d'émission du laser le gain intrinsèque est lié à l'inversion de population par la formule [92] :

$$G = \frac{4\pi e^2}{\epsilon_0 n \lambda} \frac{z_{ij}^2}{\Delta\nu} \Delta n \tag{3.4}$$

où e est la charge de l'électron, z_{ij} l'élément de matrice dipolaire entre les niveaux excité et fondamental de la transition laser, n l'indice optique du milieu perçu par le mode, $\Delta\nu$ la largeur à mi-hauteur de la raie d'émission et Δn la différence de densité volumique des électrons peuplant les niveaux de la transition optique (inversion de population).

Cette expression permet de faire ressortir trois paramètres importants dans l'élaboration d'un laser présentant un gain élevé : une largeur à mi-hauteur de la raie d'émission petite, un bon recouvrement entre les fonctions d'onde électroniques de la transition radiative (élément de matrice dipolaire grand), et une forte inversion de population.

3.3.2 Gain modal

Dans un laser à cascade quantique THz, le mode plasmon sur lequel l'onde se propage dans la cavité de l'échantillon n'a en général qu'un faible recouvrement avec la zone active du LCQ. Le gain intrinsèque introduit dans la partie (3.3.1) n'est défini que dans la zone active. Il devient alors nécessaire de connaître le facteur de recouvrement, noté Γ du plasmon avec la zone active pour pouvoir définir le gain associé à un mode plasmon, que l'on appelera gain modal par la suite.

Le facteur de confinement se calcule en faisant le rapport entre l'énergie de l'onde électromagnétique contenue dans la zone active et l'énergie totale de l'onde, ce qui correspond à la relation :

$$\Gamma = \frac{\int_{ZA} \mid E(V) \mid^2 \mathrm{d}V}{\int_{-\infty}^{\infty} \mid E(V) \mid^2 \mathrm{d}V} \tag{3.5}$$

Le gain modal γ est relié au gain intrinsèque G par la relation : $\gamma = G \times \Gamma$.

3.3.3 Dynamique du gain dans les lasers

Nous décrivons ici des résultats fondamentaux sur le comportement des lasers, qui ne sont pas propres aux lasers à cascade quantique et dont nous présentons des exemples concrêts issus d'expériences dans les chapitres suivants.

Régime transitoire et stationnaire

Lorsqu'un échantillon est porté au-dessus de son seuil laser on peut distinguer deux régimes de fonctionnement.

Dans un premier temps, l'apparition d'une inversion de population, c'est-à-dire l'existence d'une population plus élevée d'électrons sur le niveau excité que sur le niveau fondamental, permet une amplification rapide du champ issu de l'émission spontanée présent dans le laser. Ce régime transitoire se caractérise par une augmentation constante de l'onde électromagnétique parcourant l'échantillon laser sans aucune limitation sur son amplitude. En effectuant un tour de cavité complet dans le ruban laser, l'onde voit son amplitude augmenter. Durant ce régime transitoire, la différence entre les populations électroniques des niveaux excité et fondamental n'est pas constante.

Cette amplification ne peut pas durer indéfiniment et au bout d'un temps estimé comme étant égal à quelques centaines de picosecondes (cf chapitre 6), un régime stationnaire s'établit dans la cavité laser. La différence entre les populations électroniques des niveaux excité et fondamental est alors maintenue constante tout en conservant une inversion de population. Le champ

électromagnétique présent dans la cavité est alors une onde stationnaire dont l'amplitude garde une valeur constante après un tour de cavité. Cette condition peut se traduire par la relation suivante liant les réflectivités R_1 et R_2 des facettes de l'échantillon de longueur L, les pertes α_w dans le guide et le gain modal γ :

$$1 = R_1 R_2 \mathrm{e}^{\gamma L} \mathrm{e}^{\alpha_w L} \tag{3.6}$$

Cette relation a pour conséquence d'imposer en régime stationnaire une limite à la valeur du gain qui est exactement égal aux pertes totales constituées des pertes sur les miroirs de cavité et dans le guide. Nous nous référons à cette limite en parlant de " saturation " du gain.

Modes de cavité

Dans un laser, deux paramètres conditionnent la fréquence d'émission : la différence d'énergie entre les niveaux électroniques intervenant dans la transition optique, qui donne lieu à des raies d'émission pouvant être sujettes à un élargissement homogème ou inhomogène ; et la longueur de cavité qui sélectionne les longueurs d'onde qui permettent d'obtenir une interférence constructive de l'onde avec elle-même après un tour complet dans l'échantillon. La longueur L de la cavité d'un échantillon fait apparaître plusieurs modes longitudinaux espacés en fréquence d'une grandeur appelée intervalle spectral libre : $\Delta\nu = \frac{c}{2Ln}$. L'espacement entre ces modes est plus petit que la largeur de raie de la transition optique. Par conséquent, la plupart des lasers ont un comportement multimode, ce qui a également été le cas des échantillons que nous avons étudié dans le cadre de cette thèse.

3.4 Déroulement de l'étude des LCQ

L'utilisation de lasers à cascade quantique dans des expériences de spectroscopie THz permet d'en apprendre plus sur les transitions intersousbandes dans ces dispositifs complexes. Nous nous intéressons particulièrement à l'étude du spectre du gain des lasers à cascade quantique THz par cette technique expérimentale. L'étude du spectre du gain de différents échantillons est présentée dans le chapitre 4. Dans ce chapitre, la spectroscopie THz dans le domaine temporel sert à caractériser les LCQ afin de mieux comprendre les mécanismes qui régissent leur fonctionnement. Dans le chapitre 5 nous utilisons le laser à cascade quantique comme amplificateur THz et sondons le régime transitoire d'un LCQ. Le laser à cascade quantique est ensuite employé comme émetteur THz dans une expérience d'amorçage de l'émission laser présentée dans le chapitre 6.

Les lasers à cascade quantique sont donc pour nous à la fois un objet d'étude et un instrument permettant d'exploiter les possibilités offertes par la spectroscopie THz dans le domaine temporel.

Chapitre 4

Spectroscopie du gain dans les LCQ en régime stationnaire

Dans ce chapitre, nous présentons une méthode permettant de mesurer le spectre du gain de lasers à cascade quantique aussi bien en-dessous qu'au-dessus du seuil en utilisant la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous l'avons appliquée à des lasers " lié-continuum " ainsi qu'à un laser " LO-phonon ". Traditionnellement, la caractérisation d'un laser à cascade quantique passe par des mesures de puissance lumineuse émise et une courbe courant-tension. Le dispositif complexe que constitue un LCQ ne peut cependant pas être correctement étudié sans une étude approfondie des phénomènes de relaxation qui ont lieu entre niveaux d'énergie électroniques. Le spectre du gain contient des informations pertinentes pour caractériser ainsi un échantillon laser. Différentes techniques permettent de mesurer le gain dans des lasers, comme la méthode de Hakki-Paoli [93], la méthode de Henry [94], ou encore par l'étude du contraste des franges Fabry-Pérot [95]. Ces méthodes présentent toutes des désavantages et s'avèrent moins puissantes que celle décrite ici s'appuyant sur la spectroscopie THz dans le domaine temporel. La connaissance du spectre du gain offre des informations sur les transitions électroniques qui ont lieu dans l'échantillon étudié, que l'on peut identifier à l'aide de simulations. L'évolution du spectre du gain en fonction de la tension appliquée au LCQ permet d'étudier l'alignement des niveaux d'énergie dans un LCQ. Nous avons ainsi été en mesure d'observer expérimentalement la saturation du gain au-dessus du seuil et de constater un rétrécissement du spectre du gain avec l'augmentation du champ de polarisation du laser dans des lasers " lié-continuum ". Une comparaison de nos

mesures avec des simulations de la structure de bande des échantillons a permis une identification des transitions mises en jeu et leur évolution en fonction du courant injecté dans les LCQ. Le spectre du gain d'un laser " LO-phonon " a permis de mettre en évidence la présence d'une fuite de courant indésirable sous le seuil, permettant d'envisager une amélioration future du dessin de l'échantillon.

4.1 Études antérieures du gain dans les lasers

Un bon laser peut se définir par un courant seuil faible (basse consommation d'énergie), un rendement élevé (efficacité de la conversion de courant en lumière) et un gain élevé (puissance optique disponible). Les caractéristiques courant-tension (JV) et de luminescence (LJ) permettent de mesurer le courant seuil et le rendement des LCQ. L'étude du gain et de ses propriétés dans les lasers à base de semiconducteur à suscité un intérêt depuis les années 60 [96]. Depuis la désormais répandue méthode de Hakki-Paoli pour mesurer le spectre du gain, de nombreuses techniques expérimentales permettent d'étudier ce paramètre dans les lasers. Nous présentons ici un bref aperçu des grandes techniques qui permettent de mesurer le spectre du gain dans les lasers avant de parler des études réalisées à l'aide de la spectroscopie dans le domaine temporel sur des lasers à cascade quantique.

4.1.1 Techniques de mesure du gain

Plusieurs techniques expérimentales existent pour mesurer le gain d'hétérostructures semi-conductrices.

Jusqu'à présent, la plus répandue est la méthode dite de Hakki-Paoli [93], dans laquelle on détermine le gain en mesurant la variation de la puissance du signal d'électroluminescence en sortie d'un laser semi-conducteur en fonction de la longueur d'onde. Elle permet une étude du gain modal en-dessous du seuil, mais nécessite une connaissance du facteur de réflexion des facettes et la qualité de la mesure dépend de la capacité du spectromètre utilisé à détecter des franges convenablement contrastées. Cette technique expérimentale n'est donc pas très pratique pour connaître le gain au-dessus du seuil. Par ailleurs, le spectre du gain ne peut être connu par cette méthode que sur une petite gamme fréquentielle et la difficulté de la détection d'une luminescence aux fréquences THz rend cette technique inadéquate pour les lasers que nous étudions.

D'autres techniques, nécessitant un traitement particulier des échantillons [97] ou ne mesurant le gain qu'en-dessous du seuil ont été développées depuis pour mesurer le gain de lasers semi-conducteurs [94], [96].

Une autre technique efficace qui permet de connaître les pertes sous le seuil aussi bien qu'au-dessus du seuil consiste à mesurer le contraste des franges Fabry-Pérot d'une lumière externe transmise par le laser sondé [98], [95].

Récemment, cette technique a été utilisée par Benveniste *et al.* [99] pour étudier le gain modal et les pertes de lasers à cascade quantique émettant dans le moyen infrarouge sous le seuil et au-dessus du seuil. Les pertes sont évaluées en mesurant les franges Fabry-Pérot d'une imupulsion transmise par l'échantillon. Ce rayonnement est issu d'une autre source laser à rétroaction répartie (« Distributed Feedback » en anglais) dont on peut accorder la longueur d'onde. Cette technique est efficace pour mesurer le gain modal en-dessous et au-dessus du seuil laser. Cependant, elle ne donne pas accès au spectre du gain et nécessite une source externe accordable en fréquence. Cette technique est donc difficilement transposable dans le domaine THz.

4.1.2 Avantages de la spectroscopie THz dans le domaine temporel

Nos expériences de spectroscopie THz dans le domaine temporel se distinguent par leur aptitude à fournir une information complète pour toutes les tensions de polarisation (en-dessous et au-dessus du seuil), par la possibilité d'observer des phénomènes dépendant du temps par sélection de la fenêtre temporelle d'acquisition (ce qui permet d'étudier l'évolution d'impulsions transmises après avoir effectué plusieurs passages dans la cavité de l'échantillon), et par la résolution de la phase des champs transmis. D'autre part, nous mesurons le spectre intégral du gain, incluant les pertes pour toutes les fréquences accessibles par notre montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Cette technique s'avère donc extrêmement riche, bien qu'elle requière un équipement complexe et qu'elle présente aussi certains désavantages. L'une des sources d'erreurs réside dans la qualité du couplage des impulsions THz dans l'échantillon sondé et l'acquisition séparée du signal THz servant de référence pour le traitement des données. Cette mesure devient alors critique puisqu'elle influence toute l'interprétation faite par la suite. Cependant, ce défaut est compensé par une très bonne reproductibilité des mesures et un rapport signal sur bruit avantageux par rapport aux autres techniques.

D'autres groupes utilisent la spectroscopie THz dans le domaine temporel pour étudier les échantillons semi-conducteurs [100], [101]. L'application de cette technique expérimentale pour étudier le spectre du gain de lasers à cascade quantique a pour la première fois été mise en évidence par le groupe de Karl Unterrainer à Vienne [100], qui a développé l'activité parallèlement au groupe de spectroscopie térahertz ultra-rapide au LPA.

L'équipe de Karl Unterrainer a étudiée des lasers à cascade quantique émettant dans le

moyen infrarouge et le THz en s'intéressant principalement à l'évolution de l'indice complexe des échantillons en fonction de la tension qui leur est appliquée [102]. Ils ont observé une modulation de l'indice de réfraction dans les LCQ due à un phénomène de " hole burning " longitudinal [103]. Dans le moyen infrarouge, des expériences de type pompe-sonde avec des impulsions intenses permettant d'épuiser le gain d'un échantillon ont été réalisées pour étudier la dynamique du gain [104]. Elles ont permis de mettre en évidence les tensions de polarisation pour lesquelles le gain d'un LCQ moyen infrarouge a une dynamique optimale.

Une étude du spectre du gain a aussi été effectuée dans un LCQ émettant dans le moyen infrarouge [105]. Ce chapitre présente une étude portant exclusivement sur des lasers à cascade quantique THz.

4.2 Protocole expérimental

Le montage utilisé est le même que celui présenté au chapitre 2. Nous décrirons brièvement le matériel spécifique employé au cours de cette série d'expériences avant de présenter les méthodes utilisées pour caractériser nos échantillons laser à l'aide de ce dispositif expérimental.

4.2.1 Échantillons étudiés

Lors de ces expériences de mesure du spectre du gain, nous avons étudié 4 échantillons laser différents. Deux de ces échantillons sont des lasers " lié-continuum " émettant respectivement à 2.1 THz (ART 217) et 2.9 THz (TRT 295) de 3 mm de longueur. Ils nous ont été fournis par le laboratoire MPQ à Paris VII et leur croissance a été réalisée à Thalès. Leur dessin a été imaginé par Worrall *et al.* [106], et Barbieri *et al.* [107]. Un autre LCQ " lié-continuum " émettant à 2.6 THz (V 298), dont la croissance à été réalisée à Cambridge, également long de 3 mm, nous a été fourni par le groupe de Rafaelle Colombelli à l'IEF Orsay. L'autre échantillon est un laser LO-phonon émettant à 3.1 THz (L234) [108] développé par H. Luo et fourni par le groupe de Linfield et Davies de l'université de Leeds. Tous ces échantillons reposent sur un confinement à un seul plasmon dans la cavité. Par soucis de clarté, nous ne présenterons que les résultats de 2 de ces échantillons le 2.1 THz (ART 217) et le 3.1 THz (L234). En guise de comparaison, les mesures effectuées sur les échantillons TRT 295 et V 298 sont données en annexe B.

4.2.2 Matériel utilisé

Refroidissement des LCQ

Les échantillons lasers ne fonctionnent qu'à des températures cryogéniques. Pour cette raison, un système de refroidissement à l'He liquide a été nécessaire dans le cadre des expériences pré-

sentées ici. Les LCQ ont été placés dans un cryostat à doigt froid « Oxford Instruments » muni de fenêtres en picarin de 2 mm d'épaisseur. La thermalisation des LCQ à des températures de l'ordre de 4 K a été obtenue par un contact de l'échantillon avec un support en cuivre possédant une conductivité thermique élevée. Les LCQ sont placés sur une feuille en indium déposée sur une embase en cuivre. L'indium est porté à sa température de fusion (160 °C) pour former une couche homogène qui conduit bien la chaleur entre l'embase et le LCQ. Sous le substrat du LCQ, une couche de Ti/Au permet d'obtenir une bonne soudure entre le LCQ et l'indium. L'embase est placée sur un porte échantillon en cuivre intégré au doigt froid du cryostat, permettant d'abaisser la température de ce métal jusqu'à 4 K.

Polarisation des échantillons et de l'émetteur THz

Le fonctionnement des LCQ et de l'antenne photoconductrice a nécessité l'application de tensions alternatives pouvant aller jusqu'à 20 V et des courant pouvant atteindre 2 Ampères. Un générateur d'impulsion Agilent 8114A a été utilisé pour appliquer des créneaux de tension (0 V $\pm$ 20 V) à l'échantillon avec un rapport cyclique typique de 25 % et une fréquence de 25 kHz. Le choix du rapport cyclique est déterminé en fonction de la capacité de l'échantillon à dissiper efficacement la chaleur : un faible rapport cyclique chauffe moins le laser mais diminue l'amplitude du signal THz transmis par le LCQ. Dans les expériences présentées ici un rapport cyclique de 25 % correspond à un bon compromis. Un générateur « TEKTRONIC AFG 3021B » a servi à alimenter l'antenne avec un créneau de tension (0 V / + 4 V), un rapport cyclique allant jusqu'à 50 % et une fréquence de 50 kHz.

Caractérisation LJV

Pour effectuer une caractérisation préalable des échantillons lasers par des mesures courant-tension (JV) et de luminescence (LJ), le montage expérimental a été modifié conformément au schéma de la figure 4.1. Pour détecter la puissance lumineuse émise par le laser, un détecteur pyro-électrique « Spectrum Detector SPH » a été utilisé. La réponse lente de ce détecteur a nécessité une surmodulation du signal émis par le LCQ (impulsions de fréquence 25 kHz) à de basses fréquences de 20 à 60 Hz. C'est cette dernière fréquence qui sert alors de référence à la détection synchrone. Pour mesurer le courant aux bornes de l'échantillon, une sonde de courant branchée sur un oscilloscope « Agilent DSO 60314A » a été utilisée. Pour des échantillons au seuil laser élevé (les lasers « LO-phonon » étudiés ici), un transformateur branché en sortie du générateur d'impulsion, permettant d'envoyer des courants plus importants dans l'échantillon, a parfois été nécessaire.

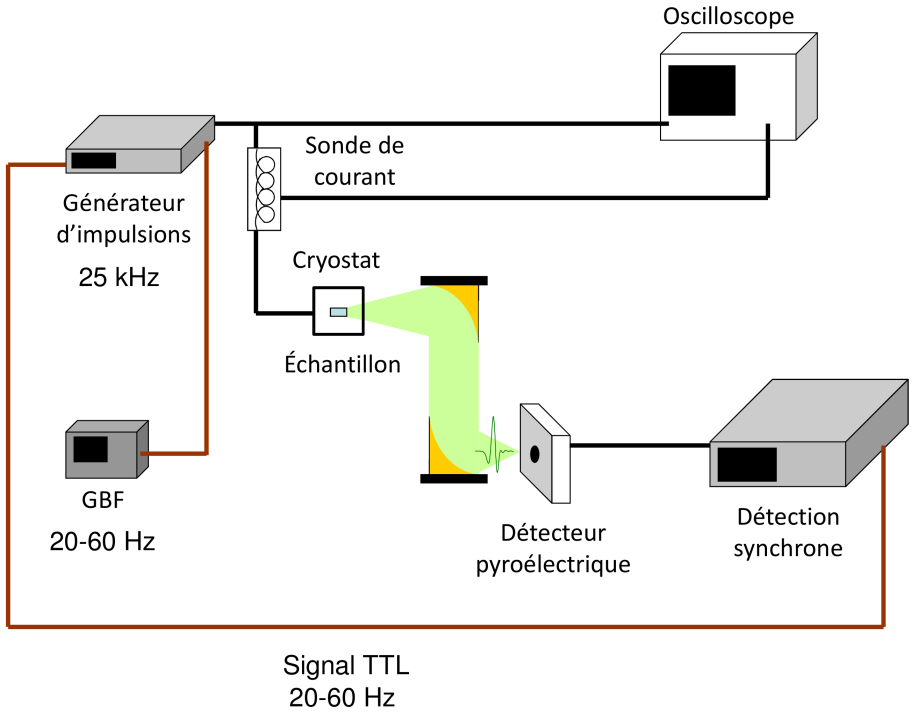


FIGURE 4.1: Représentation schématique du montage expérimental permettant d'effectuer une caratéristique courant-tension (JV) et une mesure de la puissance lumineuse émise par le LCQ (LV).

Les caractéristiques LJV servent à identifier les différents régimes de fonctionnement de l'échantillon testé, notamment la plage de tensions de polarisation correspondant au régime d'émission laser. Le courant seuil ainsi que le courant de désalignement de la structure laser sont alors identifiés. Cette étape permet également de vérifier si l'échantillon fonctionne correctement à différentes températures et pour différents rapports cycliques du signal appliqué au LCQ. En effet, des rapports cycliques élevés combinés avec de grandes tensions de polarisation élèvent la température et peuvent éventuellement endommager l'échantillon.

Couplage des impulsions THz dans l'échantillon

L'une des difficulté de la spectroscopie THz dans le domaine temporel est le couplage efficace avec l'échantillon étudié. Dans le cas des lasers à cascade THz, ayant une zone active d'épaisseur sub-longueur d'onde, les impulsions THz peuvent se coupler à des modes se propageant dans le substrat sur lequel repose le LCQ au détriment d'un couplage avec la zone active. Pour optimiser le couplage du rayonnement térahertz dans le LCQ, nous avons placé une plaque métallique de 50 μm d'épaisseur et percée d'un trou circulaire de 200 μm de diamètre près du ruban laser (cf figure 4.2). Ce cache métallique facilite la localisation de l'échantillon et permet d'éviter de coupler le

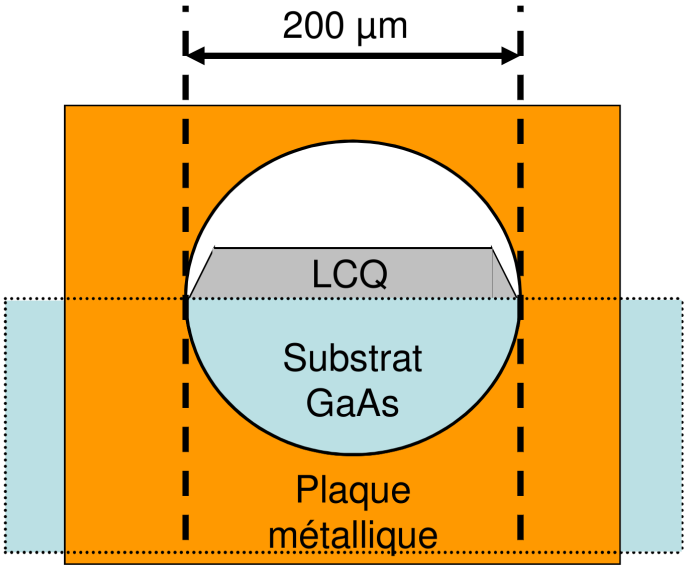


FIGURE 4.2: Représentation schématique de la position du ruban laser vu à travers l'orifice percé dans une plaque métallique apposée à l'échantillon servant à éviter un couplage de l'onde THz dans des modes transverses à fort recouvrement avec le substrat.

rayonnement dans le substrat uniquement. La présence de ce trou introduit un phénomène de résonance qui se manifeste par des coupures des composantes à 1.5 THz dans le signal THz qui nous sert de référence.

4.2.3 Principe de la mesure du spectre du gain

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés au spectre du gain de plusieurs échantillons laser. Nous décrivons ici comment, par des mesures de spectroscopie THz dans le domaine temporel, le spectre du gain peut être extrait de mesures effectuées en utilisant deux techniques de modulation différentes sur les échantillons.

Informations contenues dans le signal de réference

Les mesures de spectroscopie THz dans le domaine temporel donnent accès au champ électrique THz transmis par le laser à cascade quantique servant d'échantillon (cf chapitre 2). En guise de signal de référence, nous mesurons le champ THz transmis par le LCQ lorsqu'il n'est soumis à aucune tension extérieure. Ce signal correspond à un champ $E_{\text{THz ref}}(\vec{r},t) = t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\frac{\alpha_w L}{2}} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi} E_{\text{antenne}}(\vec{r},t)$, où t_1 et t_2 sont les facteurs de transmission des deux facettes, Φ la phase accumulée à la traversée du laser, α_w les pertes, définies pour l'intensité, par unité de longueur dues aux porteurs libres dans le laser non polarisé, et L la longueur de l'échantillon.

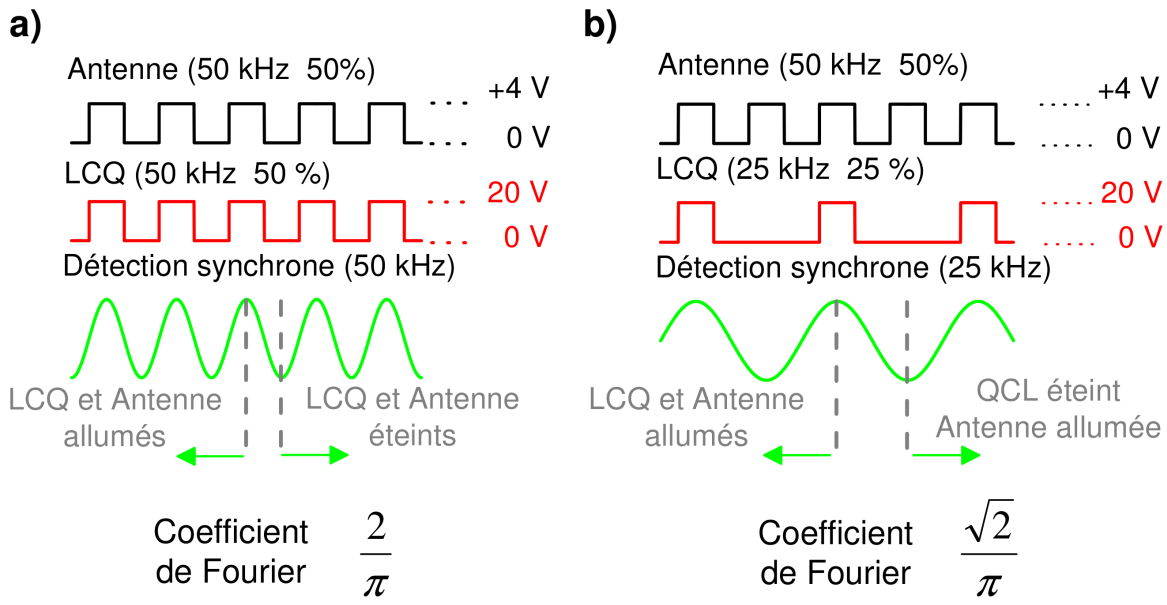


FIGURE 4.3: Représentation schématique des deux techniques de modulation utilisées pour mesurer le signal transmis par les échantillons laser. a) Antenne et LCQ sont modulés à la même fréquence et ont même rapport cyclique. b) Le LCQ est modulé à un rapport cyclique et à une fréquence égaux à la moitié de ceux de l'antenne.

Une série d'acquisitions de champs THz transmis par le laser polarisé avec différentes tensions en-dessous et au-dessus du seuil sont ensuite effectuées (cf partie 4.2.3).

Nous avons mis au point deux méthodes pour effectuer la mesure des champs THz transmis par le LCQ polarisé. Chacune présente des avantages et des inconvénients que nous allons discuter dans les deux paragraphes ci-dessous.

Modulation du LCQ à la fréquence de l'antenne

Une première façon d'effectuer la mesure du champ transmis consiste à appliquer des signaux ayant même fréquence et même rapport cyclique à l'antenne et au LCQ (cf figure 4.3 a)). Le champ THz transmis par le LCQ soumis à une tension U s'écrit alors $E_{\mathrm{THz\,U}}(\vec{r},t) = t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\frac{\alpha_w L}{2}} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi'} \mathrm{e}^{\frac{\gamma L}{2}} E_{\mathrm{antenne}}(\vec{r},t)$ où $\mathrm{e}^{\frac{\gamma L}{2}}$ est le terme d'amplification de l'onde due au gain. Nous faisons ici l'approximation que les pertes dues aux porteurs libres (α_w) sont les mêmes que celles intervenant dans le signal de référence. Cette hypothèse est légitime dans la mesure où les porteurs libres sont majoritairement contenus dans les couches dopées situées entre les contacts métalliques et la zone active du laser. Nous remarquons ici l'importance de la mesure de référence qui contient tous les termes inconnus (t_1, t_2 et α_w) également présents dans $E_{\mathrm{THz\,U}}(\vec{r},t)$.

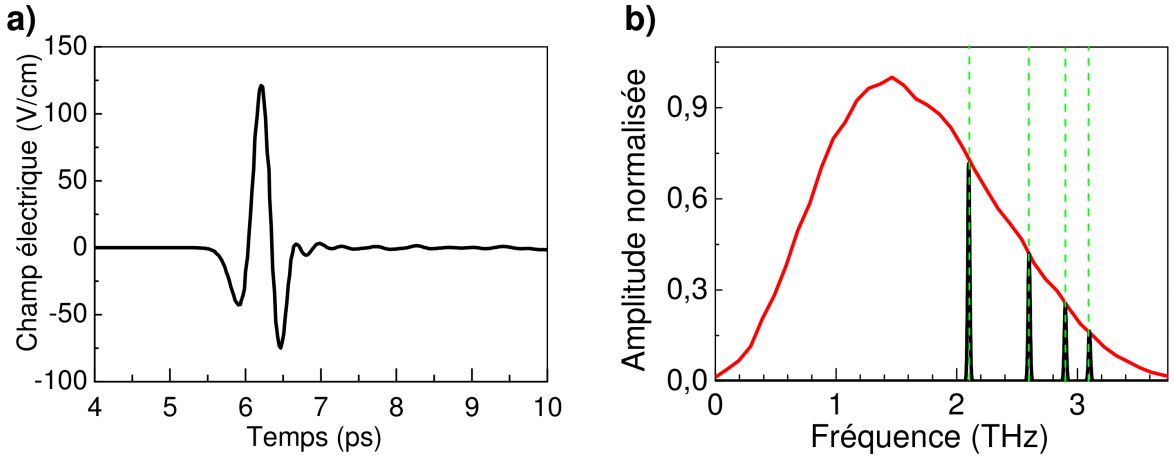


FIGURE 4.4: a) Champ THz typique émis par notre émetteur THz et b) sa transformée de Fourier. Les traits verts en pointillés indiquent les fréquences d'émission des échantillons laser étudiés lors de nos expériences. Des courbes gaussiennes modélisant les raies d'émission des lasers sont représentées en noir sur le spectre.

On effectue à partir de ces mesures une transformée de Fourier du champ THz de référence et des signaux $E_{\text{THz U}}(\vec{r},t)$. On obtient alors les spectres $S_{\text{THz ref}}(\omega) = t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\frac{\alpha_w L}{2}} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi} E_{\text{antenne}}(\omega)$ et $S_{\text{THz U}}(\omega) = t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\frac{\alpha_w L}{2}} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi'} \mathrm{e}^{\frac{\gamma(\omega) L}{2}} E_{\text{antenne}}(\omega)$. On extrait le spectre du gain en calculant le rapport :[23]

$$\gamma(\omega) = \frac{2}{L} \ln\left(\frac{|S_{\text{THz U}}(\omega)|}{|S_{\text{THz ref}}(\omega)|}\right) \tag{4.1}$$

Cette technique de modulation présente le désavantage de ne pas mettre clairement en évidence l'amplification de l'onde sur la trace temporelle acquise. En effet, le champ THz issu de l'antenne et transmis par le LCQ présente un spectre large dans lequel les raies d'émission des lasers ne représentent qu'une petite partie de l'énergie totale (cf figure 4.4 b)). L'allure dans le domaine temporel d'un champ THz est par conséquent définie en majeur partie par le spectre de l'antenne, ce qui ne permet pas de distinguer clairement la contribution spécifique du laser. Nous avons donc préféré une autre technique de modulation de nos échantillons pour éliminer la contribution de l'antenne dans le spectre mesuré et ainsi permettre une mesure plus sensible du spectre du gain.

Modulation du LCQ à la moitié de la fréquence de l'antenne

Une deuxième technique de mesure a été utilisée pour améliorer la sensibilité de la détection. Elle consiste à appliquer à l'antenne des créneaux de tension dont la fréquence et le rapport cyclique sont le double de ceux appliqués au LCQ (cf figure 4.3 b)). L'antenne est alimentée par un

créneau de tension à 50 kHz de rapport cyclique 50 %, tandis que le LCQ est alimenté par un créneau de tension en phase avec celui de l'antenne mais avec une fréquence de 25 kHz et de rapport cyclique 25 %. La détection synchrone reçoit le signal du LCQ comme fréquence de référence. Comme le montre la figure 4.3 b), on mesure alors un champ THz dont l'amplitude correspond à la différence entre le champ THz amplifié par le LCQ polarisé $t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\alpha_w L} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi'} \mathrm{e}^{\frac{\gamma L}{2}} E_{\mathrm{antenne}}(\vec{r},t)$ et le champ THz traversant le LCQ non polarisé $E_{\mathrm{THz\ ref\ 25\ \%}}(\vec{r},t)$. Le champ THz traversant le LCQ non polarisé est équivalent à un signal de référence obtenu avec un rapport cyclique de 25 % (courbe verte sur la figure 4.3 b)). Le champ mesuré lorsque le LCQ est polarisé s'écrit alors : $E_{\mathrm{THz\ U}}(\vec{r},t) = \pm t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\alpha_w L} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi'} \mathrm{e}^{\frac{\gamma L}{2}} E_{\mathrm{antenne}}(\vec{r},t) - E_{\mathrm{THz\ ref\ 25\ \%}}(\vec{r},t)$. Pour extraire le spectre du gain on reconstruit le signal mesuré en se servant du signal de référence, mesuré en polarisant l'antenne avec un créneau de fréquence 25 kHz et de rapport cyclique 25 %, pour obtenir une expression semblable à celle acquise avec la méthode de modulation décrite au paragraphe précédent : $t_1 t_2 \mathrm{e}^{-\alpha_w L} \mathrm{e}^{\mathrm{i}\Phi'} \mathrm{e}^{\frac{\gamma L}{2}} E_{\mathrm{antenne}}(\vec{r},t) = \pm E_{\mathrm{THz\ U}}(\vec{r},t) + E_{\mathrm{THz\ ref}}(\vec{r},t)$. L'incertitude sur le signe provient du fait que l'on ne connait que la phase du signal $E_{\mathrm{THz\ U}}(\vec{r},t)$ et pas celle de l'onde amplifiée. On trouve le spectre du gain en effectuant le même calcul que précédemment en remplaçant $S_{\mathrm{THz\ U}}(\omega)$ par la transformée de Fourier $S_{\mathrm{THz\ U}}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} (\pm E_{\mathrm{THz\ U}}(\vec{r},t) + E_{\mathrm{THz\ ref}}(\vec{r},t)) \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega t} \mathrm{d}t$. La formule permettant d'extraire le gain s'écrit alors sous la forme :

$$\gamma(\omega) = \frac{2}{L} \ln\left(\frac{|S_{\mathrm{THz\ U}}(\omega)|}{|E_{\mathrm{THz\ ref}}(\omega)|}\right) \tag{4.2}$$

Au cours de nos expériences, nous avons préféré la seconde méthode de modulation présentée ici, du fait de la meilleure sensibilité qu'elle permet d'atteindre. Cependant, la première méthode a toujours été utilisée en guise de vérification de la valeur de gain mesurée.

Il est important d'insister sur le fait que la spectroscopie THz dans le domaine temporel est sensible à la phase des champs THz mesurés. Pour cette raison, tout rayonnement THz ambiant ayant une phase aléatoire par rapport aux impulsions NIR fs (utilisés dans la détection électro-optique) génère par effet de moyenne une réponse nulle sur la détection synchrone (cf chapitre 2). C'est le cas, entre autres, de l'émission continue du LCQ, ce qui ne nous permet pas de détecter le champ émis par un LCQ. Ceci est par ailleurs un avantage puisque le signal utile n'est pas noyé dans le signal de forte amplitude de l'émission laser. Nous verrons dans le chapitre 6 comment il est possible de détecter l'émission THz continue d'un laser à cascade par spectroscopie THz.

Informations extraites des mesures effectuées

Sur la figure 4.5, un exemple de champs typiques mesurés par spectroscopie THz sont représentés. La trace THz a) correspond au champ émis par l'antenne photoconductrice avant de

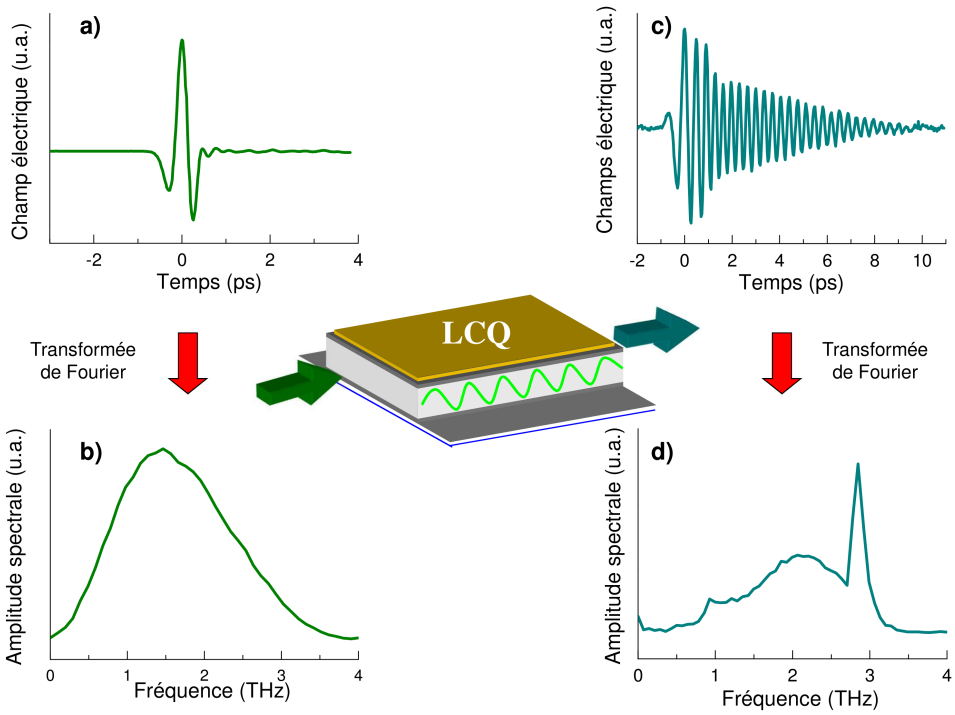


FIGURE 4.5: Représentation du principe de mesure des composantes amplifiées et absorbées par un échantillon laser dans une expérience de spectroscopie THz dans le domaine temporel. a) Champ THz généré par l'antenne. b) Spectre du champ généré par l'antenne. c) Champ THz mesuré en sortie du LCQ. d) Spectre du champ THz transmis par le LCQ.

traverser l'échantillon. La trace THz c) correspond au champ transmis par un laser à cascade quantique polarisé au-dessus de son seuil. Les transformées de Fourier permettent d'étudier les propriétés du milieu traversé dans le domaine fréquentiel. Le spectre b) de la figure 4.5, est celui du champ THz avant la traversée de l'échantillon. Le spectre d) met en évidence les composantes fréquentielles amplifiées et absorbées à la traversée du LCQ.

Dans la suite de ce chapitre, nous discutons à la fois les informations extraites de nos mesures dans le domaine temporel (champ électriques mesurés par spectroscopie THz), le domaine fréquentiel (spectres), ainsi que le spectre du gain extrait par la méthode décrite dans la partie (4.2.3).

4.3 Mesures effectuées sur le laser " lié-continuum " ART 217 (2.1 THz)

Nous présentons les résultats expérimentaux obtenus sur un échantillon laser " lié-continuum " [24], dont la structure de bande est disponible sur la figure 3.6 du chapitre 3 avant de nous intéresser à l'interprétation de ces résultats qui fera appel à des simulations de la structure de bande

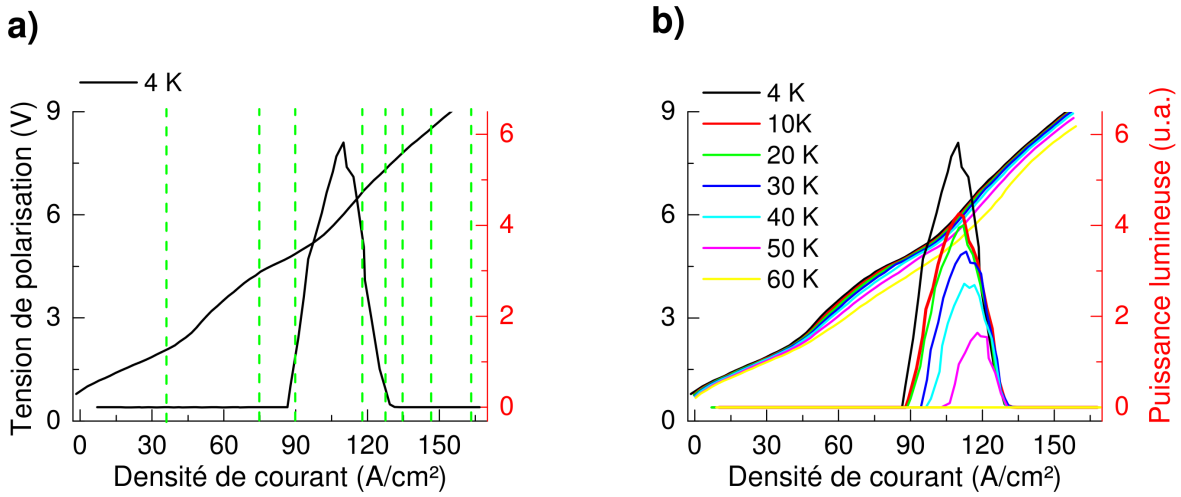


FIGURE 4.6: Caractéristiques de luminescence (LJ) et courant-tension (JV) de l'échantillon ART 217 (2.1 THz). a) Caractéristiques de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) pour une température de 4 K. b) Dépendance des caractéristiques LJ et JV du laser ART 217 (2.1 THz) en fonction de la température. Les traits verts en pointillés marquent les tensions de polarisation pour lesquelles des données expérimentales sont présentées dans ce chapitre.

et du mode optique (cf partie 4.4.2).

4.3.1 Caractérisation LJV du laser ART 217 (2.1 THz)

Les mesures de puissance lumineuse émise et les caractéristiques JV du laser ART 217 polarisé avec une tension de rapport cyclique 25 % sont représentées sur la figure 4.6 a). On distingue le régime de fonctionnement laser pour des densités de courant injectées comprises entre 87 A/cm^2 et 130 A/cm^2. La transition vers le régime laser s'accompagne d'un changement de la résistance différentielle. Le passage au régime laser se caractérise par une meilleure conduction du courant à travers le LCQ lorsque les niveaux d'énergie de ce dernier sont alignés de façon à permettre une relaxation rapide des électrons dans ce dispositif. Pour des densités de courant injectées inférieures à 87 A/cm^2, le régime de luminescence ne peut pas être étudié par ces mesures. Il en va de même pour des densités de courant supérieures à 130 A/cm^2, correspondant à un régime de luminescence dans lequel les niveaux dans le LCQ sont désalignés et l'action laser cesse.

Sur la figure 4.6 b), représentant l'évolution des caractéristiques LJV (luminescence et courant-tension) en fonction de la température du LCQ, on constate une baisse progressive de la puissance lumineuse émise et une augmentation de la tension seuil lorsque la température à laquelle le LCQ est soumis augmente. Pour bénéficier du meilleur régime de fonctionnement du LCQ, nous le maintenons à une température de 4 K.

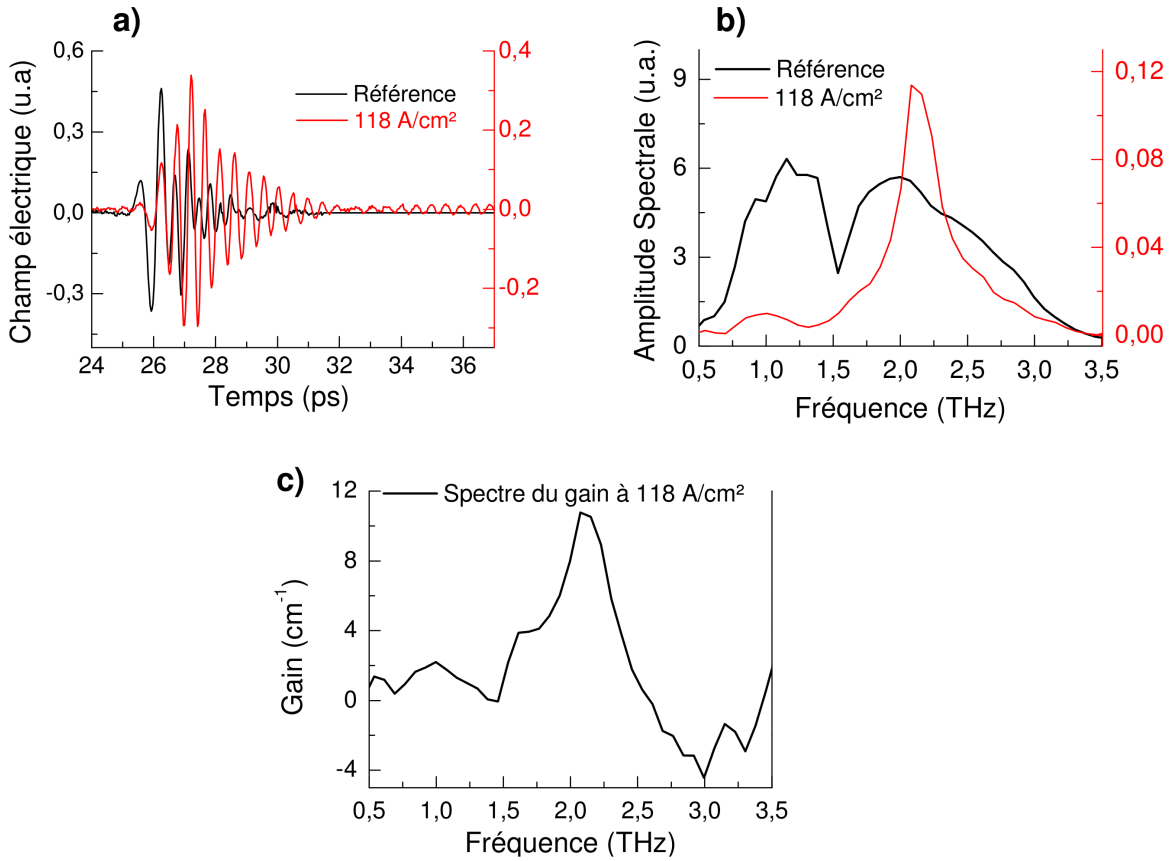


FIGURE 4.7: a) Champs THz servant de référence (courbe noire) et transmis par l'échantillon ART 217 (2.1 THz) polarisé au-dessus du seuil. b) Transformée de Fourier du signal de référence et du signal transmis par le LCQ polarisé au-dessus du seuil. c) Spectre du gain extrait d'une mesure effectuée pour une densité de courant injectée dans le LCQ de 118 A/cm^2.

4.3.2 Spectroscopie THz dans le domaine temporel appliquée au laser ART 217 (2.1 THz)

Connaissant les tensions à appliquer au laser, nous effectuons des mesures de spectroscopie THz en transmission. Sur la figure 4.7 a), le champ THz servant de référence ainsi qu'un champ THz mesuré en transmission pour une tension de polarisation au-dessus du seuil sont représentés. La fenêtre temporelle choisie correspond à un seul passage par l'échantillon laser et n'inclut aucun écho. Les spectres associés à ces mesures sont représentées sur la figure 4.7 b). Sur le spectre du signal de référence, l'absorption à 1.5 THz est attribuée à un phénomène de résonance dû à la présence de l'orifice percé dans la plaque métallique apposée à l'échantillon pour favoriser le couplage de l'onde dans la zone active (cf partie 4.2.2). En appliquant la formule (4.1) on obtient

le spectre du gain représenté sur la figure 4.7 c). Ce type de mesure à été effectué pour un grand nombre de tensions de polarisation appliquées au laser.

Les champs électriques THz mesurés pour 8 valeurs différentes de la densité de courant injectée dans le LCQ, couvrant les trois régimes de fonctionnement de l'échantillon, sont représentés figure 4.8 a). Sous le seuil deux courbes représentées dans la zone présentant un fond vert témoignent d'une amplitude THz faible. Dans la zone présentant un fond blanc correspondant au régime de fonctionnement laser, l'amplitude des ondes THz ainsi que la durée des oscillations du champ sont plus grandes, témoin d'un rétrécissement spectral caractéristique d'une transition laser. Dans ce régime, le spectre (transformée de Fourier des traces temporelles) s'affine à mesure que la tension de polarisation appliquée au laser augmente (cf 4.8 c)). La zone présentant un fond beige correspond aux traces temporelles acquises pour des densités de courant injectées élevées, pour lesquelles la structure du LCQ se désaligne. On remarque que les oscillations ressemblent d'avantage à celles observées pour les faibles tensions de polarisation en-dessous du seuil. Ceci se confirme sur les spectres des traces temporelles prises sous le seuil et au-delà de la tension de désalignement du LCQ (cf figure 4.8 b) et d)).

Les spectres de la figure 4.8 c) présentent un maximum à 2.1 THz, fréquence d'émission du laser à cascade quantique. Ceci représente une première indication de la présence de gain à cette composante fréquentielle. Nous avons par la suite effectué une analyse de ces spectres THz conformément à la méthode présentée dans la partie (4.2.3) pour en extraire le spectre du gain que nous présentons dans la partie ci-dessous.

4.3.3 Étude du spectre du gain du laser ART 217 (2.1 THz)

La connaissance du spectre du gain donne accès à un ensemble d'informations pertinent pour la compréhension du fonctionnement d'un laser à cascade quantique. Nous analysons ici plusieurs paramètres en fonction de la tension de polarisation appliquée au LCQ : la valeur du gain modal par unité de longueur, le décalage en fréquence de la courbe de gain, l'évolution du gain modal à la fréquence d'émission de 2.1 THz de l'échantillon et la largeur à mi-hauteur du spectre du gain.

Valeur du gain modal par unité de longueur

Les spectres du gain pour les mêmes densités de courant injectées que dans la partie précédente (cf figure 4.9 a) et b) c)) permettent de voir l'ensemble des composantes fréquentielles amplifiées et absorbées par l'échantillon. On voit une nette différence entre les tensions de polarisation en-dehors du régime de fonctionnement laser (cf figure 4.9 a) et c)) et les tensions de

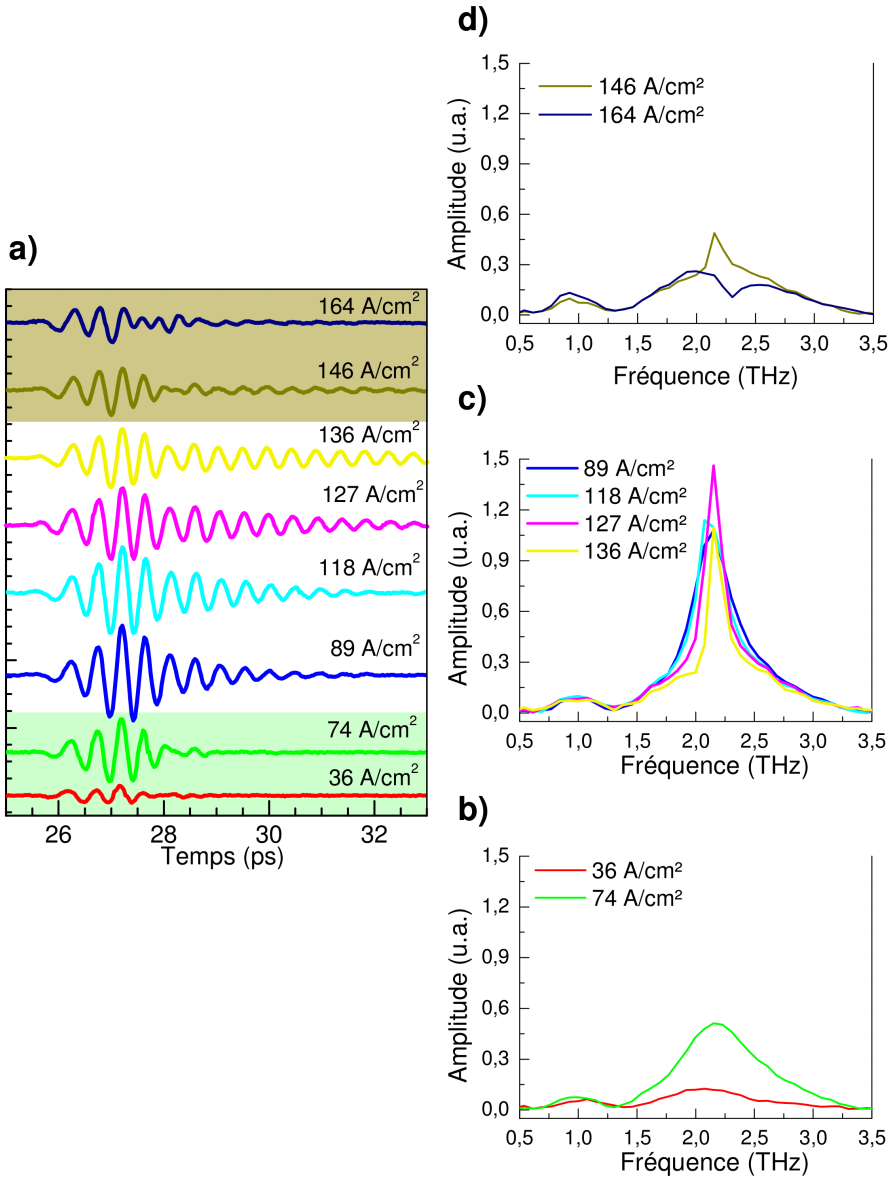


FIGURE 4.8: a) Champs THz transmis par l'échantillon ART 217 (2.1 THz) pour 8 tensions de polarisation appliquées différentes, identifiées par les densités de courant injectées correspondantes. b) Transformée de Fourier des champs THz transmis pour le régime de luminescence sous le seuil. c) Transformée de Fourier des champs THz transmis par l'échantillon lorsque ce dernier est dans le régime de fonctionnement laser. d) Transformée de Fourier des champs THz mesurés pour des courants injectés supérieurs aux courants qui désalignent la structure du LCQ.

polarisation en régime laser (cf figure 4.9 b)). Au-dessus du seuil, en régime laser, le gain par unité de longueur à 2.1 THz atteint 11.28 cm^{-1}. Sous le seuil, pour une densité de courant injectée dans le LCQ de 110 A/cm^2, le gain à 2.1 THz vaut 2.5 cm^{-1} ; tandis que pour une densité

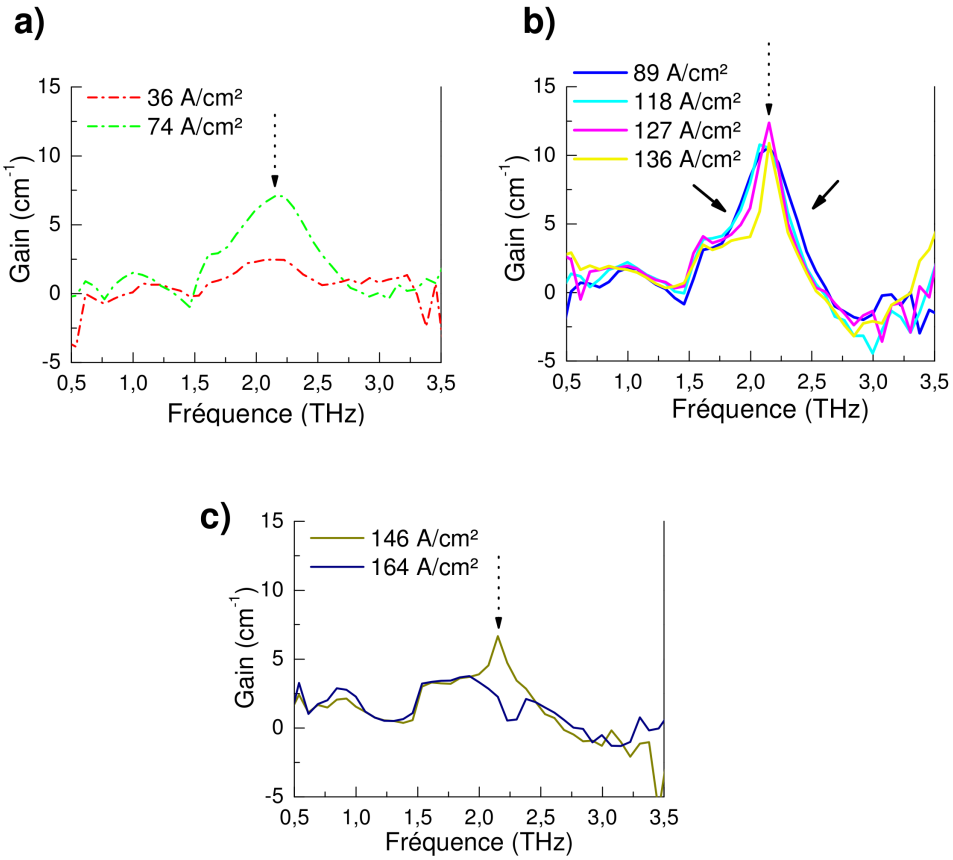


FIGURE 4.9: Spectres du gain de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) pour différentes densités de courant injectées. a) Spectres du gain sous le seuil. b) Spectres du gain dans le régime laser. c) Spectres du gain au-delà de la densité de courant désalignant la structure du LCQ.

de courant injectée de 164 A/cm^2 (au-delà de la valeur pour laquelle la structure du LCQ se désaligne), le gain à 2.1 THz vaut 2.9 cm^{-1}.

Stabilité de la fréquence d'émission

La résistance du LCQ est plus faible pendant le régime laser que pendant les phases de luminescence. Pour cette raison, la tension appliquée au LCQ change peu comparé aux variations observées en-dehors du régime laser. On ne s'attend donc pas à observer de grands décalages de la fréquence d'émission lorsque l'échantillon émet du rayonnement laser.

Il y a cependant une différence entre la polarisation appliquée au laser au seuil et au courant qui désaligne la structure de l'échantillon. Un effet Stark conduisant à un décalage du maximum d'émission du LCQ peut intervenir. Cependant aucun décalage du maximum dans le spectre du gain n'est observé dans le régime de fonctionnement laser, ce qui tend à indiquer qu'il n'y

a pas d'effet Stark lorsqu'un champ laser parcourt le LCQ. Il est toutefois important de noter que la résolution en fréquence des spectres du gain est limitée par la fenêtre temporelle choisie pour acquérir les champs électriques THz. Ici, la résolution fréquentielle est de 76 GHz pour l'échantillon ART 217 (2.1 THz). Un éventuel décalage en fréquence inférieure à 80 GHz n'est donc pas mesurable.

Saturation du gain au-dessus du seuil

Dans les parties précédentes, nous avons regardé le spectre du gain du laser ART 217. Il est tout aussi intéressant d'étudier le comportement du gain modal ou des pertes à des fréquences spécifiques en fonction de la tension de polarisation appliquée au LCQ. Il est naturel de regarder ce qu'il advient du gain modal à la fréquence à laquelle le LCQ émet au-dessus du seuil, à 2.1 THz. La courbe constituée de ronds blancs sur la figure 4.10 b) représente l'évolution du gain modal à 2.1 THz en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ. On remarque que le gain à cette fréquence croît progressivement dès qu'une tension est appliquée au laser, bien avant le seuil. Cette augmentation cesse et le gain sature une fois que le seuil laser est atteint. Le gain modal à 2.1 THz reste bloqué à une valeur de 11.3 cm^{-1} durant tout le régime laser. Une fois que la structure du LCQ se désaligne, cette valeur diminue rapidement.

La saturation du gain à sa valeur au seuil traduit la présence d'une onde stationnaire dans le laser. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 3 avec la relation (3.6), l'existence de cette onde stationnaire dans la cavité d'un laser impose que le gain modal soit égal aux pertes totales (dans le guide dues aux porteurs libres et sur les miroirs de la cavité, constitué par les facettes du ruban laser).

Rétrécissement du spectre du gain au-dessus du seuil

La courbe marquée par des points bleus sur la figure 4.10 b) représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur du spectre du gain en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ. Cette courbe permet de distinguer trois régimes : sous le seuil, la largeur à mi-hauteur décroit fortement de 800 GHz à 490 GHz à mesure que la densité de courant injectée augmente. Au-dessus du seuil, pour des densités de courant injectées comprises entre 87 A/cm^2 et 110 A/cm^2, le spectre du gain s'affine peu passant de 484 GHz à 466 GHz. Dans un deuxième temps pour des densités de courant injectées dans le LCQ supérieures à 110 A/cm^2, l'affinement du spectre du gain devient très marqué passant de 466 GHz jusqu'à 223 GHz. Il est a noté que ces valeurs sont limitées par la résolution en fréquence de nos mesure (76 GHz). La densité de courant de 110 A/cm^2 correspond au point où l'émission laser du LCQ est maximale comme en

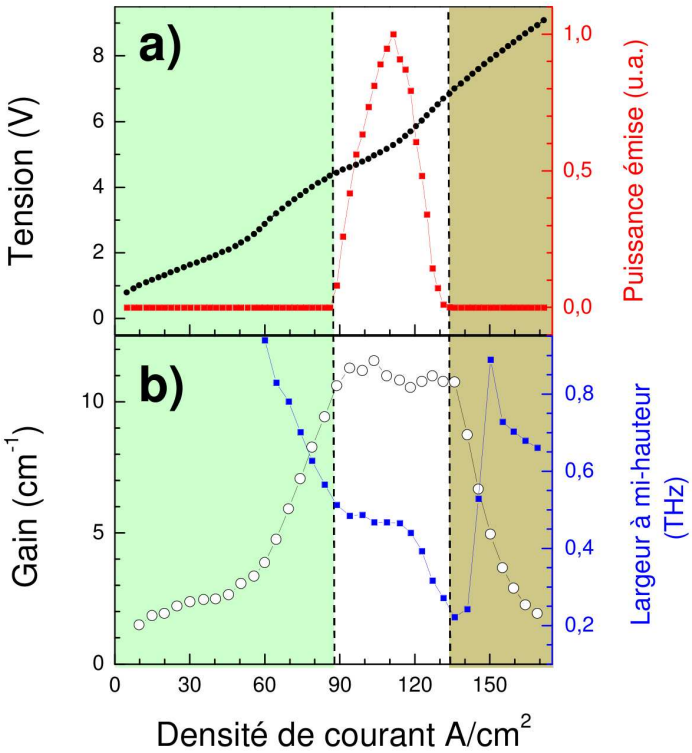


FIGURE 4.10: a) Caractéristiques (LJV) de l'échantillon ART 217 (2.1 THz). b) Évolution du gain modal et de la largeur à mi-hauteur du spectre du gain de l'échantillon ART 217 (2.1 THz) en fonction de la tension de polarisation appliquée. Les zones colorées vertes représentent les tensions de polarisation inférieures au seuil laser et les zones marrons aux tensions de polarisation pour lesquelles les structures sont désalignées.

témoigne la caractéristique LV de la figure 4.10 a).

Nous avons observé les mêmes tendances dans les deux autres échantillons " lié-continuum " (TRT 295 (2.9 THz) et V 298 (2.6 THz)). Les résultats pertinents associés à ces observations sont fournis en annexe B. Nous avons effectué une simulation des pertes totales dans les LCQ étudiés, égales au gain en régime laser, pour vérifier que les mesures du gain modal sont réalistes. Afin d'identifier les transitions à l'origine du gain dans l'échantillon ART 217 (2.1 THz) et pour mieux comprendre l'origine du rétrécissement du spectre du gain que nous venons d'observer, nous avons effectué une simulation de la structure de bande de ce LCQ.

4.4 Simulations du gain modal et de la structure de bande dans le laser ART 217

Nous avons observé la saturation du gain au-dessus du seuil qui est alors exactement égal aux pertes totales dans la cavité du ruban laser. Un calcul numérique des pertes totales permet donc de connaître le gain modal au-dessus du seuil. D'une part, la connaissance du coefficient de réflexion des facettes de notre échantillon permet de calculer les pertes miroirs. D'autre part, les informations contenues dans la feuille de croissance de l'échantillon (fournie en annexe A) permettent d'estimer la permittivité de la zone active du LCQ et en déduire les parties réelle et imaginaire de l'indice optique, cette dernière donnant le coefficient d'absorption, ou pertes, dans le guide.

Nous avons utilisé un programme initialement développé par Alfredo de Rossi à Thalès utilisant la méthode des matrices de transfert pour calculer l'indice complexe dans les différentes couches d'un LCQ à partir des informations issues de leur feuille de croissance (dopage, épaisseur des puits et barrière, concentration en Al etc) et en déduire les pertes dues aux porteurs libres dans la cavité. Ce programme calcule également la répartition de l'énergie à une dimension dans les modes de plasmons de surface se propageant dans le laser et le facteur de recouvrement du mode avec la région active [109].

4.4.1 Simulations du gain modal du mode plasmon

Nous présentons ici les résultats des simulations effectuées pour calculer le gain modal et affichons la répartition de l'énergie du mode plasmon à une dimension issue de nos simulations.

Calcul des pertes miroir

En reprenant la relation (3.6), une analyse dimensionnelle permet de mettre en évidence la relation liant les coefficients de réflexion des facettes aux pertes miroir : $R = \mathrm{e}^{-\alpha_m L}$. Par conséquent les pertes sur les miroirs de la cavité s'écrivent $\alpha_m = \frac{1}{L}\ln(\frac{1}{R})$ où la réflectivité R vaut 0.32 pour les lasers émettant entre 2 THz et 3 THz [85]. Ce calcul estime les pertes sur les miroirs à 3.8 cm^{-1} (L étant la longueur du ruban laser considéré).

Calcul des pertes dans le guide

La figure 4.11 fournit une représentation du carré du champ électrique se propageant dans la cavité du laser ART 217 issue d'une simulation. Le facteur de recouvrement avec la zone active du LCQ (Γ) ainsi que les pertes dans le guide (α_w) sont également indiquées. Les pertes dans le guide pour le laser ART 217 ainsi que les deux autres lasers " lié-continuum " sont résumées

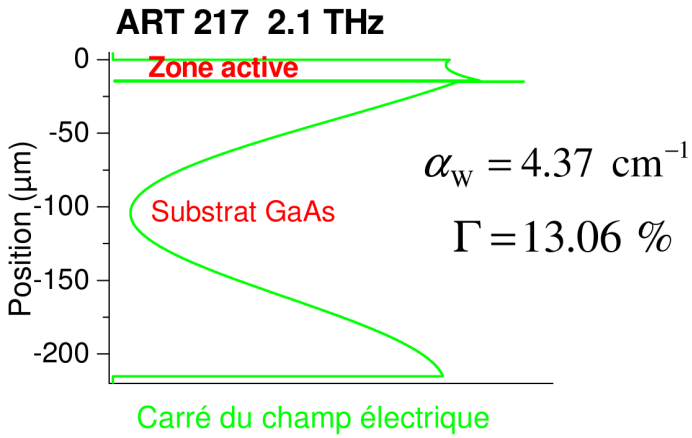


FIGURE 4.11: Représentation du champ électrique au carré (mode plasmon TM sur lequel l'échantillon ART 217 (2.1 THz) se couple au-dessus du seuil) en fonction de la position. Les pertes dues aux porteurs libres ainsi que le facteur de recouvrement avec la région active sont donnés. La contribution du métal situé sous le substrat pour le confinement du mode est ici prise en compte du fait de la grande longueur d'onde du laser.

dans le tableau de la figure 4.12. Ce tableau présente un récapitulatif du gain modal calculé et mesuré expérimentalement pour les trois échantillons. On remarque qu'il existe un écart entre les valeurs de gain expérimentales et estimées à partir des simulations. Plusieurs hypothèses permettent d'expliquer la présence des écarts relatifs, parfois importants, qui apparaissent entre le gain calculé et le gain mesuré.

Une première source d'erreur dans l'estimation du gain modal provient d'un biais expérimental. L'extraction du gain à partir de nos mesures fait intervenir un signal de référence. Or plusieurs modes plasmons transverses magnétiques (TM) peuvent se propager dans l'échantillon. Sous le seuil, lorsque le LCQ n'est pas polarisé, l'onde THz qui sert de référence peut se coupler à plusieurs modes transverses. Par contre, l'onde THz traversant l'échantillon lorsque ce dernier est polarisé au-dessus du seuil se couple préférentiellement sur un seul mode TM [106]. Dans le cas de l'échantillon ART 217, il s'agit du mode TM d'ordre 2. Lors de l'analyse du signal mesuré pour en extraire le gain, on utilise le spectre de l'onde THz de référence comportant de l'information issue de plusieurs modes transverses. Ainsi, le spectre du gain extrait des données expérimentales est toujours sous-évalué par rapport au vrai spectre du gain.

D'autre part, il nous est difficile de savoir exactement sur quel mode TM le rayonnement THz issu de l'antenne se couple dans l'échantillon au-dessus du seuil. Pour déterminer le mode TM sur lequel le plasmon de surface se propage, on introduit un facteur de mérite χ défini comme

Laser	pertes guide α_w (cm^{-1})	pertes miroir α_m (cm^{-1})	pertes totales $\alpha_w + \alpha_m$ (cm^{-1})	gain mesuré (cm^{-1})	écart relatif
ART 217 (2.1 THz)	4.37	3.8	8.17	11.28	27.6 %
TRT 295 (2.9 THz)	8.34	3.8	12.1	6.95	42.6 %
V 298 (2.6 THz)	7.1	3.8	10.9	9.71	10.9 %

FIGURE 4.12: Tableau récapitulatif des différentes valeurs de gain mesurées et calculées pour les trois échantillons " lié-continuum " étudiés.

le rapport entre le taux de recouvrement avec la zone active du LCQ (Γ) et les pertes dans le guide (α_w) : $\chi = \frac{\Gamma}{\alpha_w}$. Le mode présentant le plus grand facteur de mérite est celui sur lequel le plasmon se propage. Cependant, ce facteur de mérite est souvent proche pour des modes voisins. Par conséquent, la simulation du gain modal ne permet pas toujours d'identifier la valeur des pertes associé au bon mode transverse dans le guide et par extension la bonne valeur du gain modal.

Compte tenu de toutes ces sources d'erreurs possibles dans l'estimation du gain par le calcul ou à partir des données expérimentales, les écarts relatifs de 10.9 % et 27.6 % témoignent d'un bon accord entre simulations et expériences. L'écart plus important obtenu avec l'échantillon TRT 295 pourrait être attribué aux sources d'erreur discutées précédemment.

4.4.2 Simulation de la structure de bande

Une simulation des niveaux d'énergie dans les échantillons en fonction de la position dans l'espace réel suivant l'axe de croissance, qui correspond à l'équivalent d'une structure de bande (cette dernière représentant traditionnellement l'énergie en fonction du vecteur d'onde dans l'espace réciproque), permet d'identifier les transitions électroniques responsables du gain dans les lasers. Sur les structures de bande que nous représentons ici (cf figure 4.14), nous affichons les modules au carré des fonctions d'onde électroniques sur chaque niveau d'énergie pour connaître la probabilité de présence des électrons dans les différents puits du laser à cascade étudié. Nous ne présentons ici que les simulations réalisées sur l'échantillon ART 217 (2.1 THz) afin de trouver l'origine du rétrécissement du spectre du gain observé dans les lasers " lié-continuum ".

Le programme utilisé pour simuler cette structure de bande résoud l'équation de Schrödinger

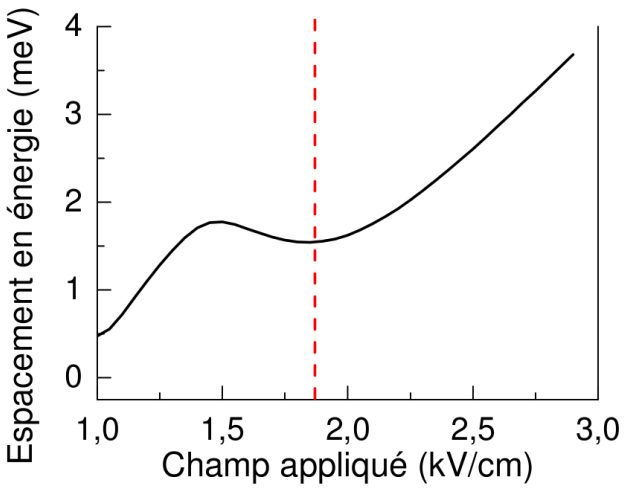


FIGURE 4.13: Évolution de la différence d'énergie entre niveau injecteur et niveau excité dans les simulations de la structure de bande en fonction de la tension de polarisation appliquée au LCQ ART 217.

dans la structure multipuits définie à partir des dimensions des couches AlGaAs et GaAs de la zone active (cf annexe A). En plus de nous fournir les probabilités de présence des électrons sur les différents niveaux d'énergie présents dans le LCQ, ce programme permet de calculer la force d'oscillateur entre deux niveaux, qui permet de connaître l'efficacité du recouvrement entre les fonctions d'onde de deux niveaux de la structure. Avec ces informations il nous est possible d'identifier les transitions électroniques à l'origine d'une amplification ou d'une absorption.

Alignement de l'injecteur avec le niveau haut de la transition optique

Des simulations à différentes tensions de polarisation ont permis de faire apparaître trois niveaux d'énergie particulièrement importants dans le fonctionnement des lasers " lié-continuum " : le niveau le plus bas en énergie des mini-bandes appelé injecteur du fait de son rôle dans le couplage des électrons par effet tunnel résonnant sur le niveau excité de la transition radiative (les électrons de l'injecteur sont fortement localisés dans un seul puits du LCQ, ce qui permet de l'identifier facilement sur les structures de bandes représentées ici) ; le niveau excité de la transition radiative, ayant un recouvrement plus faible avec les autres niveaux de la mini-bande ; et le niveau le plus haut en énergie des mini-bandes, qui correspond au niveau fondamental de la transition radiative.

Dans un premier temps, nous avons regardé l'évolution de l'écart en énergie entre l'injecteur et le niveau excité de la transition radiative en fonction de la tension de polarisation appliquée au

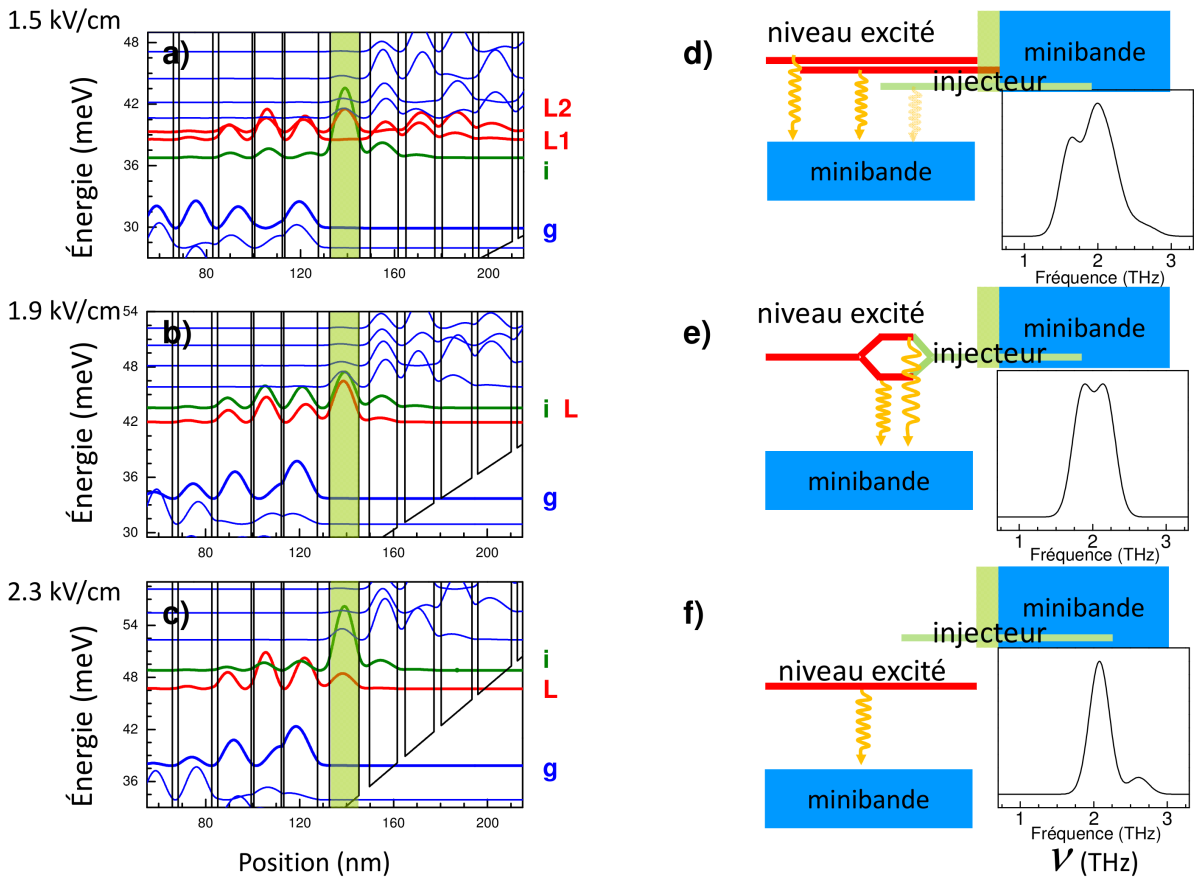


FIGURE 4.14: a), b) et c) Structure de bande obtenue en résolvant l'équation de Schrödinger pour différentes tensions de polarisation appliquées au LCQ ART 217 (2.1 THz). d), e) et f) Schématisation de la position du niveau excité par rapport aux mini-bandes pour les trois tensions de polarisations représentées, ainsi qu'une simulation du spectre du gain par des gaussiennes centrées sur les fréquences des transitions identifées par les simulations en a), b) et c), de largeur à mi-hauteur égale à 0.2 THz, et d'amplitude proportionnelle à la force d'oscillateur.

LCQ (cf figure 4.13). On remarque un minimum local dans cet écart en énergie, qui correspond aux tensions pour lesquelles on observe un anti-croisement entre injecteur et niveau excité, atteint pour une tension de polarisation de 1.9 kV/cm. À cette tension, injecteur et niveau excité sont fortement couplés permettant d'atteindre un effet tunnel optimum entre les deux niveaux : cette situation correspond au maximum d'émission du LCQ.

Dans un deuxième temps, le calcul des valeurs des forces d'oscillateur associées aux transitions intervenant dans l'échantillon étudié ont permis de mettre en évidence les niveaux mis en jeu dans l'émission radiative.

Émission sous le seuil

En-dessous du seuil, l'injecteur (nommé i et représenté en vert sur les figures 4.14 a) b) et c)) se situe à une énergie plus petite que le niveau excité de la transition radiative (nommé L et représenté en rouge sur les figures 4.14 a) b) et c)). Le transfert des électrons sur ce dernier par effet tunnel résonnant n'est pas efficace.

Pour des tensions appliquées proches du seuil (1.5 kV/cm sur la figure 4.14 a)), à mesure que l'injecteur atteint des énergies voisines du niveau excité, deux niveaux contribuent de façon quasi-identique à l'émission du fait de forces d'oscillateurs proches. Ces niveaux sont appelés L1 et L2 sur la figure 4.14 a) sur laquelle ils sont représentés par des traits rouges. Ils interviennent alors tous les deux dans l'émission radiative ce qui est à l'origine d'un spectre du gain de largeur à mi-hauteur de 0.5 THz. On nomme g le niveau fondamental de transition radiative, qui est représenté en bleu sur les figures 4.14 a) b) et c).

La figure 4.14 d) représente une modélisation du spectre du gain par des gaussiennes centrées sur les fréquences des raies d'émission des transitions L1-g, L2-g et i-g, d'amplitude (gain) proportionnel à la force d'oscillateur de chaque transition et de largeur à mi-hauteur de 0.32 THz. La largeur à mi-hauteur de cette courbe modélisée est de 0.76 THz, proche de la valeur de la largeur à mi-hauteur expérimentale de 0.5 THz [24].

Émission en régime laser

Pour des tensions de polarisation plus élevées (1.9 kV/cm), au voisinage du maximum d'émission laser, injecteur et niveau excité sont très proches en énergie. Un anti-croisement empêche la superposition exacte des deux niveaux. Lorsque la séparation en énergie entre ces deux niveaux est minimale, le couplage entre injecteur et niveau excité est optimal et les deux niveaux ont des fonctions d'onde quasi-identiques (cf figure 4.14 b), sur laquelle l'injecteur i et le niveau excité L de la transition optique sont représentés par des traits vert et rouge). Ces deux niveaux participent de façon similaire à l'émission radiative THz, ce qui se manifeste par un spectre du gain d'une largeur à mi-hauteur de 0.46 THz.

Une modélisation du spectre du gain en considérant les deux transitions i-g et L-g est représentée sur la figure 4.14 e). On trouve une largeur à mi-hauteur sur ce spectre du gain modélisé de 0.61 THz. La modélisation reproduit un rétrécissement du spectre du gain par rapport à une tension de polarisation sous le seuil, et reproduit également bien la largeur à mi-hauteur obtenue expérimentalement.

Émission dans le régime désaligné

Pour des tensions de polarisation au-delà du maximum d'émission laser, l'injecteur se situe plus haut en énergie que le niveau excité. L'injection du courant est moins efficace qu'à 1.9 kV/cm et seul le niveau excité contribue de façon significative au gain. Le spectre du gain est alors progressivement réduit à mesure que le rôle de la transition injecteur-niveau fondamental diminue (cf figure 4.14 c), sur laquelle le recouvrement du module au carré de la fonction d'onde électronique de l'injecteur avec le niveau excité est considérablement plus faible que dans les figures a) et b) commentées précédemment). La plus petite largeur à mi-hauteur mesurée pour le spectre du gain vaut alors 0.22 THz.

La figure 4.14 f) présente une modélisation du spectre du gain réalisée de la même façon que dans les deux cas précédents. La largeur à mi-hauteur de cette courbe est de 0.32 THz, ce qui reproduit bien l'allure de la courbe expérimentale.

Comparaison des simulations aux résultats expérimentaux

Les simulations effectuées dans la partie 4.4.2 ne reproduisent pas toutes les données obtenues expérimentalement. Par exemple, l'écart en énergie entre niveau excité et niveau fondamental reste constant dans nos mesures, ce que nous attribuons à l'absence d'un effet Stark détectable, mais augmente dans les simulations de structure de bande.

Cette différence entre expérience et simulation pourrait s'expliquer par l'effet sur le potentiel local dans la structure du dopage présent dans certains puits, qui nécessiterait une résolution des équations couplées de Schrödinger et Poisson.

D'autre part, les caractéristiques LJV (cf figures 4.6 et B.1) ont mis en évidence que le LCQ possède une résistance plus faible en régime laser que dans les régimes de luminescence en-dessous et au-dessus du seuil. Pour cette raison, le régime laser correpond à un petit intervalle de tensions de polarisation appliquées (autour de 1.9 kV/cm), dans lequel l'énergie de la transition radiative varie peu.

Malgré ces différences entre simulations et données expérimentales, nous reproduisons qualitativement le rétrécissement du spectre du gain ce qui valide notre explication de l'origine de ce phénomène.

4.4.3 Conclusions

L'étude de la structure de bande est efficace pour identifier les transitions électroniques à l'origine du gain dans un laser. Notre étude a permis de fournir une explication réaliste du mécanisme à l'origine d'un rétrécissement du spectre du gain. Nous avons mis en évidence l'importance

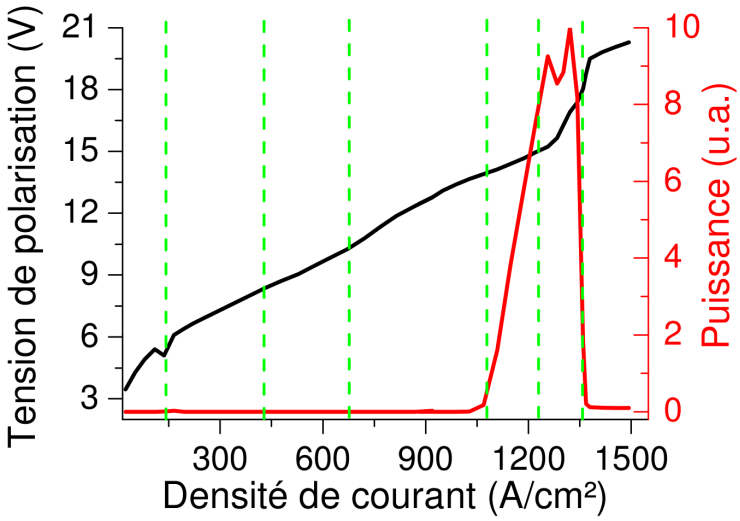


FIGURE 4.15: Caractéristiques de luminescence (LJ) et courant-tension (JV) de l'échantillon laser LO-phonon L234. Les traits verts en pointillés marquent les tensions de polarisation étudiées sur cet échantillon.

du niveau injecteur dans le fonctionnement d'un LCQ " lié-continuum " en expliquant comment son couplage avec les autres niveaux influence l'émission THz. L'alignement de l'injecteur avec le niveau excité donne lieu à un recouvrement optimal entre ces deux niveaux légèrement espacés en énergie qui participent tous les deux à l'émission THz. Le désalignement du LCQ lorsque la tension appliquée au laser augmente atténue ce recouvrement entre injecteur et niveau excité conduisant à une situation dans laquelle seul le niveau excité de la transition optique participe à l'émission de lumière THz.

4.5 Étude du laser LO-phonon L234 (3.1 THz) par spectroscopie THz

Les lasers LO-phonon sont des dispositifs fonctionnant sur un principe différent (cf partie 3.2.3). Ils présentent un intérêt majeur du fait de températures maximales de fonctionnement typiquement supérieures à 100 K. L'utilisation de notre technique expérimentale est motivée par la volonté de mieux comprendre les mécanismes intervenant dans l'émission ou l'absorption dans ces LCQ. Nous présentons ici les résultats de nos mesures avant de les analyser à l'aide de simulations semblables à celles effectuées dans la partie (4.4.2). Les résultats discutés dans cette partie ont été publiés dans l'article [25].

4.5.1 Caractérisation LJV du laser L234 (3.1 THz)

L'échantillon LO-phonon étudié a pour particularité d'avoir un courant seuil bien plus élevé que les lasers " lié-continuum " de la partie précédente. Afin d'atteindre le régime de désalignement de la structure laser, il nous a fallu utiliser un transformateur permettant d'appliquer des courants allant au-delà de 2 Ampères. Pour réduire le courant seuil de notre échantillon, nous l'avons découpé en un ruban de 1 mm de longueur. Les caractéristiques courant-tension (JV) et de puissance lumineuse émise (LJ) de cet échantillon sont représentées sur la figure 4.15. Sur ces caractéristiques, on remarque que la densité de courant seuil est dix fois plus élevée que dans le cas du laser ART 217 (2.1 THz) étudié précédemment. La structure de bande de cet échantillon est disponible à la figure 3.7 du chapitre 3.

4.5.2 Spectroscopie THz dans le domaine temporel appliquée au laser L234 (3.1 THz)

Nous représentons 6 champs électriques THz mesurés par spectroscopie dans le domaine temporel sur la figure 4.16. Les faibles densités de courant correspondent au régime de luminescence sous le seuil et les trois autres densités de courant au régime laser.

Durée des oscillations du champ THz transmis

Les oscillations du champ THz au-dessus du seuil ont une durée plus courte que celles observées dans les échantillons " lié-continuum " à cause d'un gain plus élargi et d'une longueur de cavité plus petite (1 mm contre 3 mm pour les lasers lié-continuum).

Les spectres associés à ces champs THz (transformées de Fourier des traces temporelles, cf figure 4.16 b) et c)) confirment que l'échantillon émet à 3.1 THz au-dessus du seuil. Sur la figure 4.16 b), correspondant aux densités de courant sous le seuil laser, on distingue des composantes spectrales de grande amplitude à 4 THz et entre 1.5 et 3 THz. Sur la figure (4.16 b)) on remarque que le spectre est plus large que dans le laser " lié-continuum " présenté plus haut. Cet élargissement de la raie d'émission peut s'expliquer par une zone active plus grande composée de 226 périodes (contre 110 pour le laser ART 217 (2.1 THz) et 90 pour le TRT 295 (2.9 THz)) dans laquelle des phénomènes d'élargissement spectral inhomogène sont susceptibles d'apparaître.

L'élargissement du spectre s'explique aussi par le fait que la longueur de la cavité intervient dans l'expression du champ THz transmis par le LCQ. Si l'on note $\vec{E_i}$ l'onde THz avant son couplage dans la cavité, son expression devient $e^{L\frac{(\gamma-\alpha_w-\alpha_m)}{2}}\vec{E_i}$ en sortie de la cavité (où γ désigne le gain, α_w les pertes dans le guide et α_m les pertes au niveau des miroirs de cavité). Du fait

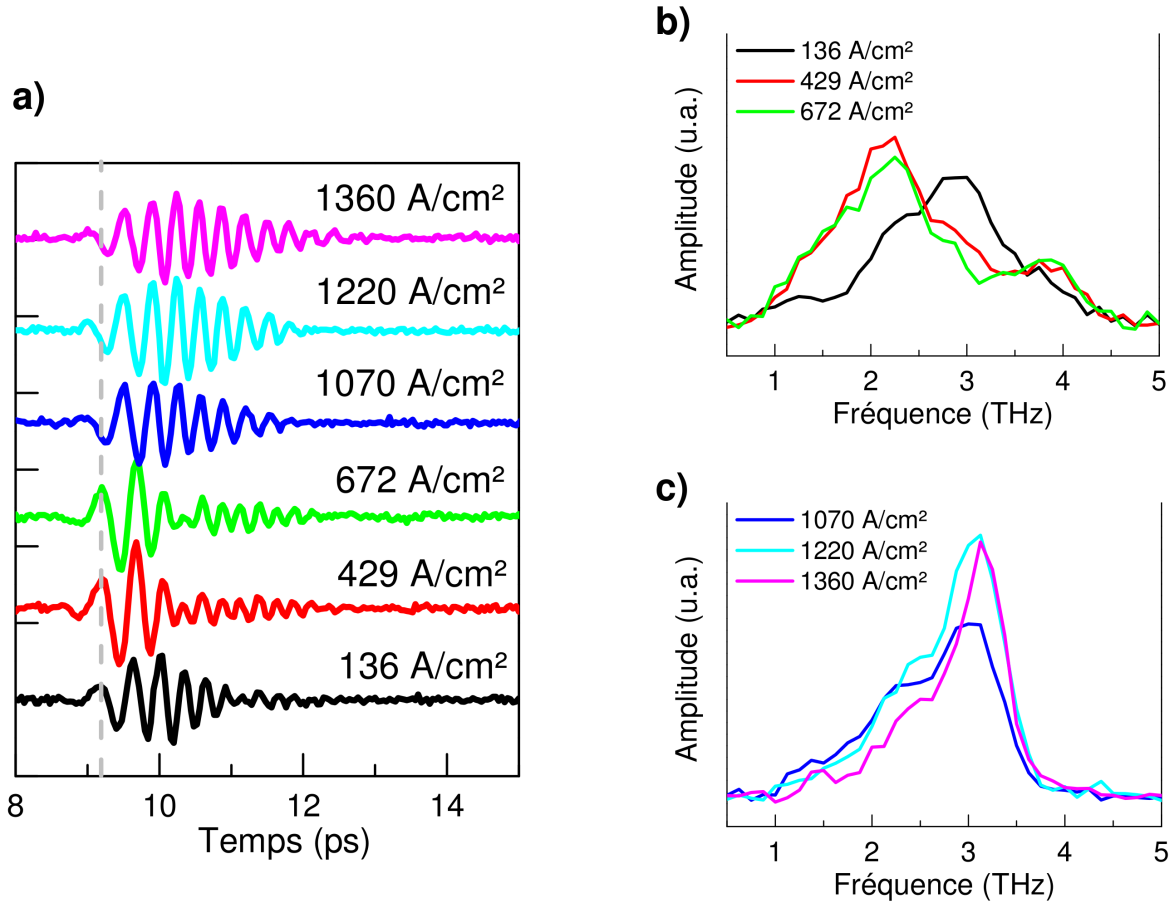


FIGURE 4.16: a) Champs THz transmis par l'échantillon L234 (3.1 THz) pour différentes densités de courant injectées dans le LCQ. Le trait gris en pointillé met en évidence un changement de la phase du signal transmis lors du passage au-dessus du seuil, traduisant un passage d'une cavité absorbante à une cavité amplificatrice.b) Transformées de Fourier des champs THz transmis par le LCQ polarisé sous le seuil. c) Transformées de Fourier des champs THz transmis par le LCQ en régime de fonctionnement laser.

de la saturation du gain au-dessus du seuil, les pertes $\alpha_w + \alpha_m$ sont égales au gain modal $\gamma(\nu_0 = 3.1THz)$. Le spectre du champ THz transmis est alors proportionnel à $e^{\frac{(\gamma(\nu)-\gamma(\nu_0))L}{2}} < 0$. Il en découle que plus la longueur de la cavité est courte, plus la composante du champ à la fréquence ν sera grande, conduisant à un élargissement du spectre du champ THz détecté.

4.5.3 Étude du spectre du gain du laser L234 (3.1 THz)

Le spectre du gain du laser L234 (3.1 THz) est représenté sur la figure 4.18 a) et b). Nous affichons le spectre du gain sous le seuil sur la figure 4.18 a) et le gain dans le régime laser

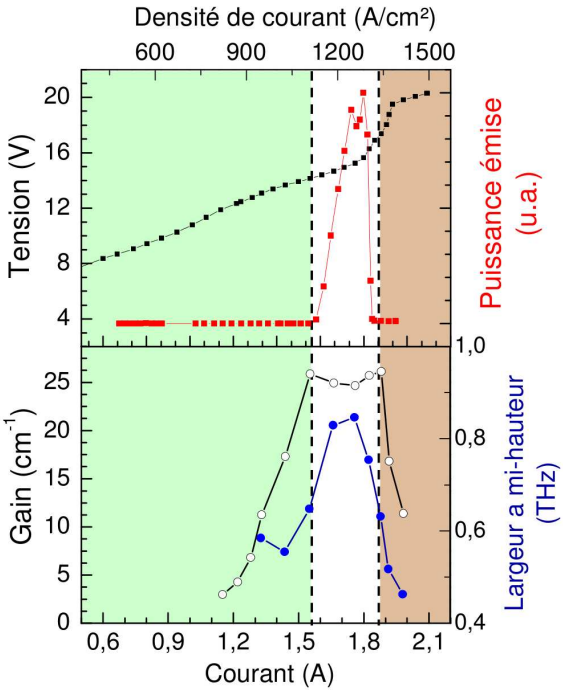


FIGURE 4.17: a) Caractéristique LJV du laser LO-phonon L234. b) Représentation du gain modal à 3.1 THz du laser L234 en fonction du courant injecté dans cet échantillon.

au-dessus du seuil sur la figure 4.18 b).

Largeur à mi-hauteur du spectre du gain

Outre la confirmation de la présence de gain à 3.1 THz au-dessus du seuil, ces courbes confirment les observations effectuées sur les transformées de Fourier des champs THz transmis par le LCQ : la présence d'un gain avec une largeur à mi-hauteur plus élevée que dans le cas des lasers " lié-continuum ". On observe en effet une largeur à mi-hauteur de 600 GHz au niveau du seuil laser, qui se situe à une densité de courant injectée de 1030 A/cm^2, contre 484 GHz dans le cas du laser " lié-continuum " ART 217. Contrairement au cas des lasers " lié-continuum ", la largeur à mi-hauteur du spectre du gain augmente jusqu'à atteindre 850 GHz au maximum d'émission laser. Ensuite, tout comme dans le cas des lasers " lié-continuum " on observe un rétrécissement de 200 GHz du spectre du gain à mesure que la tension de polarisation appliquée au LCQ augmente dans le régime laser.

Valeur du gain modal par unité de longueur

À l'instar de ce que nous avons observé avec le laser ART 217 (2.1 THz), la saturation du gain dans le régime laser a été mise en évidence dans cette expérience de spectroscopie appliquée

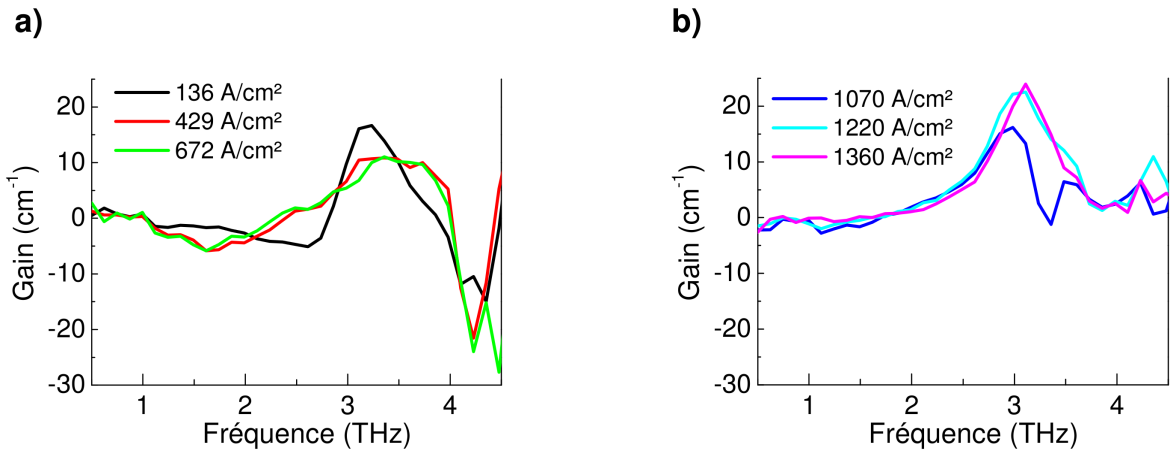


FIGURE 4.18: a) Spectres du gain de l'échantillon LO-phonon L234 pour 3 densités de courant injectées sous le seuil. b) Spectres du gain de l'échantillon LO-phonon L234 pour 3 densités de courant injectées au-dessus du seuil.

au LCQ LO-phonon, comme en témoigne la figure 4.17 b). Le gain modal par unité de longueur dans le régime laser atteint une valeur de 25 cm^{-1}.

4.5.4 Absorption sous le seuil

Le laser L234 présente un courant seuil très élevé. De nombreux phénomènes intervenant dans le fonctionnement de ce dispositif peuvent donc être étudiés en-dessous du seuil, notamment les absorptions qui apparaissent dans les spectres du gain. Nous analysons dans cette partie les propriétés des absorptions présentes sous le seuil du LCQ L234.

Changement de phase lors du passage au régime laser

La figure 4.16 a) permet de distinguer un changement de phase important lors du passage au régime laser sur les traces temporelles représentées. Le trait gris en pointillés sur cette figure indique que le changement de phase est de 180° environ, puisque le champ est déphasé d'une demi-période. Ceci traduit le passage d'un milieu présentant de l'absorption à un milieu présentant du gain, ce qui nous invite à étudier la présence d'absorptions sous le seuil dans les spectres du gain.

Absorptions sous le seuil

Les spectres du gain (cf figure 4.18 a)) se distinguent de ceux observés pour les lasers " lié-continuum " par la présence d'absorptions à basses (1-2.5 THz) et hautes (4 THz) fréquences sous le seuil laser. Ces absorptions sont mises en évidence sur la figure 4.19 a), qui indique l'évolution

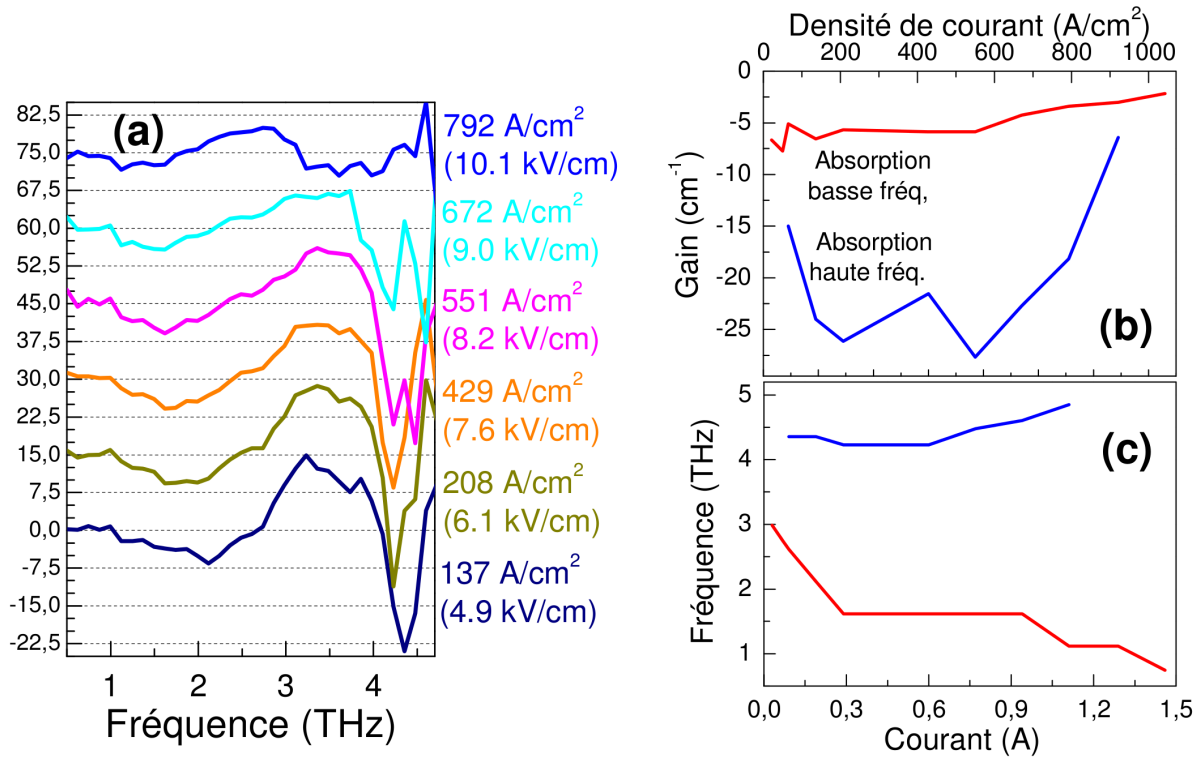


FIGURE 4.19: a) Spectres du gain sous le seuil de l'échantillon L234 (3.1 THz), mettant en évidence des absorptions à basse et haute fréquence. b) Variation des coefficients d'absorption en fonction de la densité de courant injectée sous le seuil. c) Décalage en fréquence des pics d'absorption basse et haute fréquence en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ sous le seuil.

de ce gain négatif pour 6 valeurs différentes de la densité de courant injectée dans le LCQ sous le seuil.

La figure 4.19 b) permet de mettre en évidence que l'absorption à 4 THz présente un coefficient d'absorption plus grand (gain de -20 cm^{-1}) que l'absorption autour de 1-2.5 THz (gain de -5 cm^{-1}). Le coefficient d'absorption aux basses fréquences reste stable tandis que l'absorption aux hautes fréquences présente de fortes variations. Dans les deux cas, le gain remonte vers des valeurs proches de zéro à mesure que la densité de courant injectée dans le LCQ approche la valeur seuil de 950 A/cm^2.

La figure 4.19 c) montre que l'absorption aux hautes fréquences (4 THz) ne se décale pas à mesure que la densité de courant injectée dans le LCQ augmente, ce qui est le signe d'une transition intersousbande verticale entre deux niveaux d'énergie dans le LCQ. Dans le cas de l'absorption basse fréquence il y a un décalage important. Ces dernières passent en effet de 3 THz à moins de 1 THz à mesure que la densité de courant injectée dans le LCQ atteint la valeur

du seuil, ce qui est le signe d'une transition intersousbande diagonale entre niveaux adjacents dans le LCQ.

Ces absorptions peuvent être nuisibles au fonctionnement de l'échantillon dans la mesure où ils correspondent à des pertes THz dans la cavité et traduisent un peuplement de certains niveaux d'énergie dans le LCQ, similaire aux effets thermiques. Le fait d'absorber du rayonnement et de repeupler des niveaux d'énergie supérieure dans un LCQ peut constituer un obstacle à l'inversion de population. Il est donc intéressant d'identifier plus précisément l'origine de ces absorptions en vue éventuellement d'améliorer le dispositif LO-phonon étudié ici.

4.6 Simulations du gain modal et de la structure de bande dans le laser LO-phonon L234 (3.1 THz)

4.6.1 Simulations du gain modal

Les pertes miroir de ce ruban laser sont plus élevées que pour les lasers " lié-continuum " étudiés précédemment en raison d'une longueur de cavité plus petite. En prenant une réflectivité de 0.32 [85] on trouve des pertes miroir de 11 cm^{-1}. Les simulations de l'indice complexe et du mode plasmon dans l'échantillon L234 permettent de trouver des valeurs de pertes dues aux porteurs libres de 9.8 cm^{-1}. On trouve des pertes totales calculées de 20.8 cm^{-1} contre un gain saturé mesuré expérimentalement de 25 cm^{-1}. L'accord entre calcul et expérience s'avère satisfaisant, avec un écart relatif de 16.8 %.

4.6.2 Simulations de la structure de bande

Du fait de la présence d'un nombre limité de niveaux d'énergie dans les structures LO-phonon, les simulations de la structure de bande s'avèrent plus simples que dans le cas des lasers " lié-continuum " et nous permettent de représenter l'évolution des forces d'oscillateur associées aux différentes transitions en fonction de la tension de polarisation avec des courbes de niveau. La figure 4.21 réprésente l'ensemble des transitions intervenant dans le laser L234 avec leurs forces d'oscillateur. Nous avons donc utilisé ces courbes de niveau pour identifier les transitions à l'origine du gain et des absorptions dans l'échantillon LO-phonon que nous venons de caractériser.

Identification des transitions

On identifie l'anti-croisement entre niveau injecteur ($|4\rangle$) et niveau excité ($|3\rangle$) de la transition radiative pour une tension de polarisation de 12.5 kV/cm. Cet anti-croisement s'observe lorsque les transitions $|1\rangle - |4\rangle$ et $|1\rangle - |3\rangle$ sont les plus proches en énergie , comme en témoigne la figure 4.21 sur laquelle cette tension de polarisation est représentée par un trait vert. Le couplage de

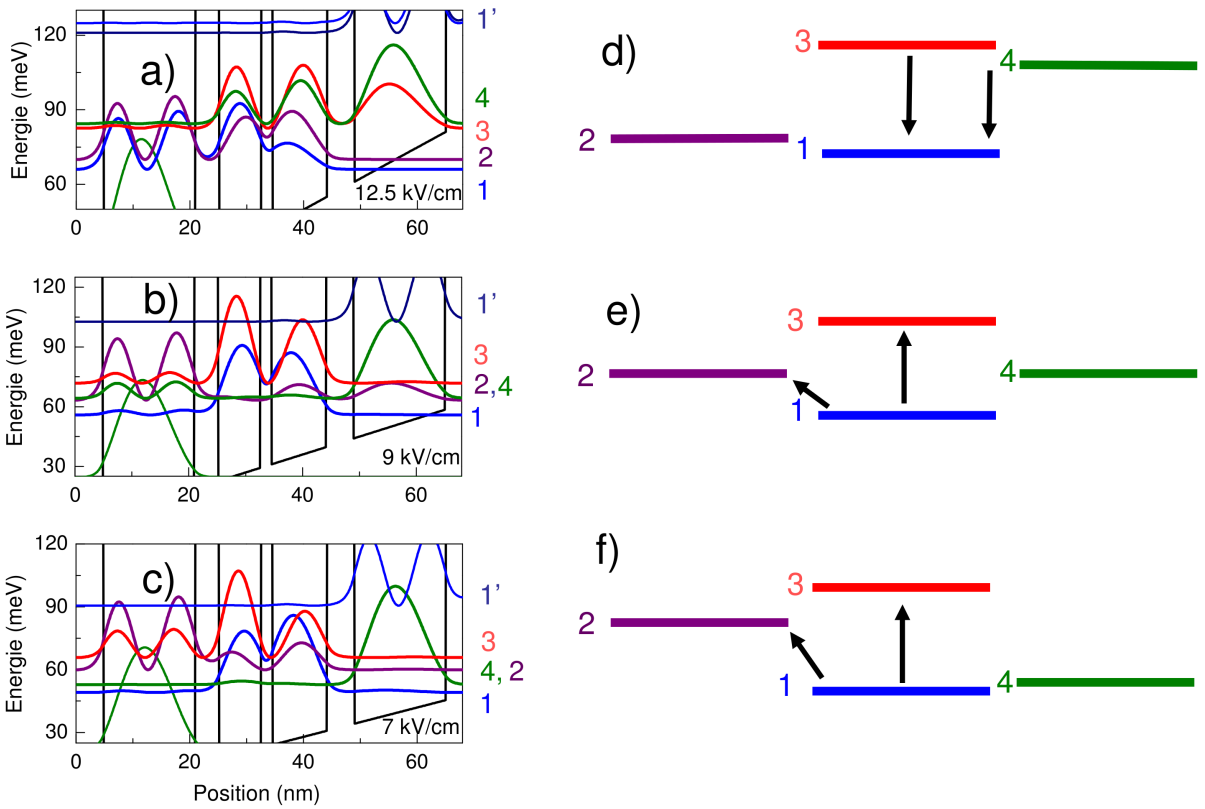


FIGURE 4.20: a), b) et c) Structures de bandes simulées pour trois tensions de polarisation appliquées à la structure de l'échantillon L234. c), d) et e) Représentation schématique des transitions électroniques entre niveaux injecteur, excité, fondamental et éjecteur.

l'injecteur avec le niveau excité est optimal pour cette tension de polarisation et la structure laser est alignée. Les écarts en énergie entre injecteur et niveau excité (transition $|4\rangle - |3\rangle$) et entre niveau fondamental ($|1\rangle$) et niveau « éjecteur » ($|2\rangle$) sont minimaux avec un maximum local des forces d'oscillateurs, traduisant un couplage efficace. Le niveau éjecteur est celui depuis lequel les électrons se désexcitent en émettant un phonon longitudinal optique. Un bon couplage entre niveau fondamental et éjecteur est donc nécessaire pour libérer le niveau fondamental et garantir l'inversion de population. La structure de bande simulée pour cette tension de polarisation, représentée sur la figure 4.20 a), met en évidence un bon recouvrement des modules au carré des fonctions d'onde électroniques des niveaux injecteur ($|4\rangle$) et excité ($|3\rangle$), ainsi qu'entre le niveau éjecteur ($|2\rangle$) et fondamental ($|1\rangle$).

En-dessous du seuil laser, la figure 4.21 permet d'identifier les transitions $|1\rangle - |2\rangle$ du niveau fondamental vers le niveau éjecteur et $|1\rangle - |3\rangle$ du niveau fondamental vers le niveau excité comme

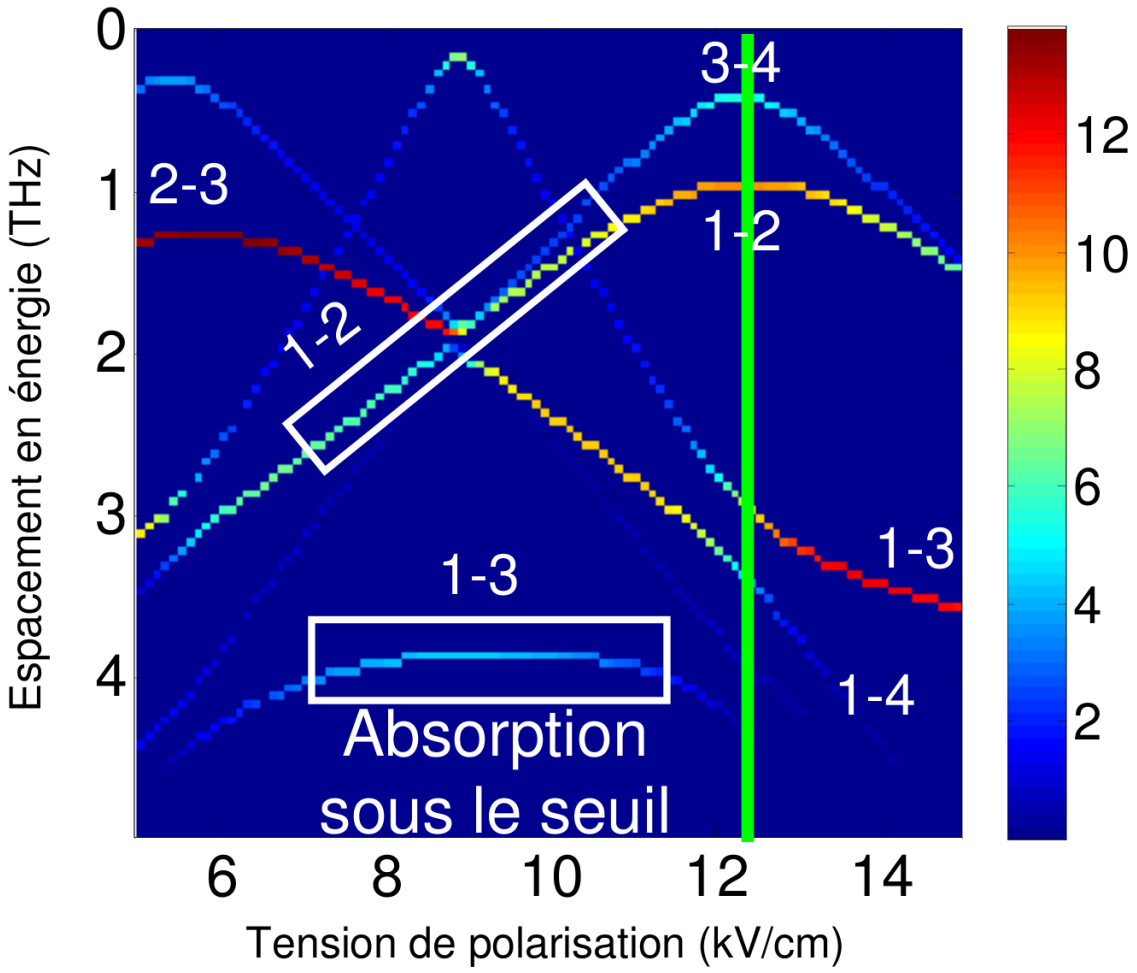


FIGURE 4.21: Courbes de niveaux des forces d'oscillateur entre différents niveaux d'énergies présents dans l'échantillon L234. L'axe des abscisses représente la tension de polarisation et l'axe des ordonnées l'espacement en énergie entre niveaux. Le trait vert représente la position du seuil laser à 12.5 kV/cm.

étant les absorptions respectivement aux basses et hautes fréquences. On les identifie par leurs énergies et leur décalage en fréquence, qui se fait vers les basses fréquences pour la transition $|1\rangle - |2\rangle$ et demeure quasiment nul pour la transition $|1\rangle - |3\rangle$.

Inventaire des canaux d'absorption et d'émission

Les représentations schématiques de la figure 4.20 e) et f) permettent de mettre en évidence ces deux canaux d'absorption basse et haute fréquence présents sous le seuil. Une simulation de la structure de bande faisant apparaître les probabilités de présence des électrons sur les différents niveaux d'énergie dans le LCQ sous le seuil est représentée sur les figures 4.20 b) et

c). On remarque que les canaux d'absorption repeuplent le niveau éjecteur ($|2\rangle$) et le niveau excité ($|3\rangle$) de la transition optique depuis le niveau fondamental. Ceci implique l'existence d'un nombre important de porteurs sur le niveau fondamental, probablement injecté depuis le niveau injecteur sous le seuil. L'alignement de la structure ne s'effectue que lorsque ces canaux d'absorption disparaissent, et que le niveau fondamental est à nouveau peu peuplé. Il semblerait donc que cette fuite de courant pourrait être à l'origine du seuil élevé de ce LCQ.

4.6.3 Conclusions

Les simulations de la structure de bande ont permis d'identifier les transitions électroniques à l'origine du gain et des absorptions dans le laser L234. Un canal de peuplement du niveau fondamental de la transition radiative a été mis en évidence, ainsi que le peuplement d'un niveau nécessaire à l'évacuation des porteurs. Ces informations sont susceptibles d'aider à la conception de dispositifs plus performants s'appuyant sur des structures à cascade de ce type. Toutefois, ces simulations présentent certains défauts. Premièrement, elles ne permettent pas de connaître avec précision la plage de tensions correspondant au régime laser. On remarque un décalage vers les hautes fréquences de la transition radiative dans nos simulations alors que cette dernière reste constante en énergie dans les données expérimentales. Il y a là un désaccord entre résultats expérimentaux et simulations, déjà observé avec les échantillons laser " lié-continuum ". Les simulations ne prennent en compte qu'un nombre limité de périodes et ne permettent pas de reproduire un éventuel élargissement inhomogène qui aurait pu être attribué à la présence de 226 périodes dans ce LCQ LO-phonon.

4.7 Comparaison des lasers " lié-continuum " avec le laser LO-phonon

Nous avons mesuré le gain modal de différentes structures laser à cascade quantique. La saturation du gain à sa valeur au seuil nous empêche de comparer le gain mesuré dans des lasers ayant des cavités de dimensions différentes. Pour pouvoir comparer le gain des différents lasers étudiés, nous extrapolons l'évolution du gain modal mesuré par spectroscopie THz dans le domaine temporel, par une courbe linéaire sous le seuil et au-delà du champ de désalignement du LCQ, ce qui nous permet de trouver une valeur approchée du gain intrinsèque dans la cavité, en l'absence de saturation. La figure 4.22 a) représente le gain modal à 2.1 THz du laser ART 217 ainsi que son évolution obtenue par extrapolation linéaire. Nous trouvons ainsi un gain modal non saturé de 17.6 cm^{-1} pour ce laser. Sur la figure 4.22 nous représentons le gain modal à 3.1 THz du laser L234. Pour ce dispositif, nous extrapolons une valeur de gain modal non saturé de

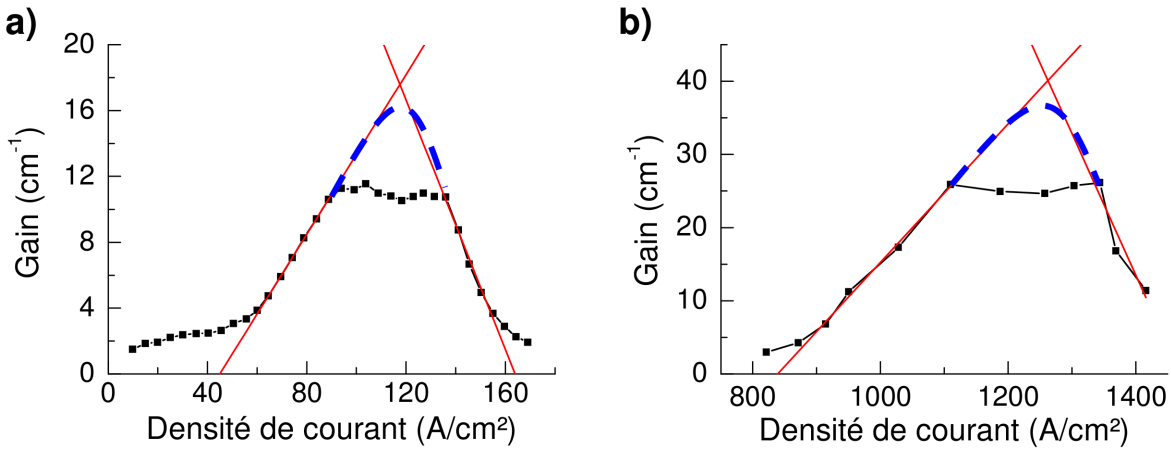


FIGURE 4.22: a) Courbe d'évolution du gain modal à 2.1 THz du laser ART 217. Les lignes rouges représentent l'extrapolation linéraire du gain en-dessous et au-dessus du seuil. Le trait bleu en pointillés correspond à une représentation de l'allure probable d'évolution du gain réel en régime laser en l'absence de saturation. b) Les mêmes informations relatives à l'échantillon L234 émettant à 3.1 THz.

	ART 217 (2.1 THz) lié-continuum	TRT 295 (2.9 THz) lié-continuum	V 298 (2.6 THz) lié-continuum	L234 (3.1 THz) LO-phonon
gain intrinsèque (cm^{-1})	134.6	46.1	80.8	170.4

FIGURE 4.23: Tableau récapitulatif des différentes valeurs de gain intrinsèque estimées pour les lasers présentés dans ce chapitre.

40.1 cm^{-1}.

Pour pouvoir comparer les valeurs de gain modal de différents laser, il est nécessaire de tenir compte du recouvrement du mode plasmon avec la zone active. Nous divisons le gain modal non saturé évalué pour les LCQ présentés dans ce chapitre par le facteur de recouvrement Γ du mode plasmon avec la zone active. Les valeurs de gain intrinsèque dans la zone active ainsi calculées sont représentées sur le tableau de la figure 4.23. Ce tableau permet de mettre en évidence que le laser LO-phonon présente un gain modal environ 2 fois plus élevé que les lasers " lié-continuum ". Ceci le rend plus intéressant pour une émission THz de forte intensité.

Ces valeurs de gain restent cependant bien inférieures à celles des diodes laser semiconductrices. Ces dispositifs permettent d'atteindre un gain de plusieurs milliers de cm^{-1} [110].

4.8 Conclusions générales et perspectives

L'étude des lasers " lié-continuum " et LO-phonon par spectroscopie THz a permis de comprendre plus en détail le fonctionnement des lasers à cascade quantique, en mettant en évidence le rôle essentiel de l'injection du courant sur le niveau excité et en identifiant les transitions mises en jeu dans chaque échantillon aux différentes tensions de polarisation appliquées.

Le gain dans un laser à semiconducteur émettant dans le visible, pouvant atteindre 4000 cm^{-1} [110], reste bien supérieur au gain modal extrapolé à partir des mesures effectuées ici. Pour une émission de rayonnement THz puissante, les lasers LO-phonon semblent plus efficace du fait de leur gain plus élevé que celui des lasers " lié-continuum ".

L'étude du gain en régime stationnaire pourrait être complétée par des expériences de type pompe-sonde en envoyant des ondes THz plus intenses, grâce à l'utilisation d'un amplificateur régénératif permettant d'atteindre des valeurs de plusieurs kV/cm à 2 THz. Ainsi, en faisant varier le délai entre impulsion THz pompe et impulsion THz sonde sur des échelles de temps sub-piconseconde, il serait possible de mesurer la dynamique de repeuplement du niveau excité d'une transition radiative [111], [112], comme celà a déjà été fait dans des lasers à cascade quantique émettant dans le moyen infrarouge [104], [113].

Une autre étude intéressante consisterait à mesurer le spectre du gain dans des échantillons à confinement double métal, pour lesquelles le gain modal est pratiquement égal au gain intrinsèque ce qui rendrait les mesures de gain moins dépendantes des biais dans les simulations donnant le facteur de recouvrement. Les informations acquisent sur le fonctionnement de tous ces LCQ pourrait permettre d'envisager de nouveaux dessins de zone active, évitant les fuites de courant.

Dans le prochain chapitre, nous présentons une autre étude qui consiste à étudier le gain en régime non stationnaire dans les premiers instants où un échantillon laser est polarisé au-dessus de la tension seuil.

Chapitre 5

Commutation du gain dans un LCQ

La spectroscopie THz dans le domaine temporel permet de voir des phénomènes intervenant à des échelles de temps picoseconde. Dans le chapitre précédent, nous n'avons pas exploité ce potentiel et avons étudié les propriétés statiques de nos échantillons. Nous avons ainsi observé la saturation du gain dans les lasers à cascade THz, qui est alors égal aux pertes totales. Cette limite imposée par la présence d'une cavité dans le LCQ rend l'amplification d'une impulsion THz externe se propageant dans le laser peu efficace. Plusieurs solutions ont été envisagées pour augmenter le gain accessible à l'amplification dans un laser à cascade quantique. L'une d'entre elle consiste à réduire au maximum le facteur de qualité de la cavité en fabriquant des facettes non parallèles [114]. Elle présente toutefois le désavantage de rendre plus difficile le couplage et l'extraction du rayonnement. Il est également possible d'augmenter les pertes des facettes d'un ruban laser en les recouvrant d'une couche anti-reflet, comme de la silice [115] ou du parylène [90], [116]. Ce traitement s'avère cependant délicat et nécessite des matériaux présentant un indice adapté, intermédiaire entre celui du laser et du milieu extérieur. Ici, nous présentons des expériences de commutation du gain dans un laser à cascade quantique, qui permettent d'étudier et exploiter le régime transitoire (non stationnaire) pendant lequel la cavité du laser n'est pas encore parcourue par une onde stationnaire imposant au gain d'être égal aux pertes totales. La commutation du gain est un procédé couramment utilisé dans les lasers pour générer des impulsions intenses et de durée de l'ordre de la dizaine de ps par l'application d'une décharge électrique ultra-rapide d'une durée d'une centaine de ps [117], [118]. La commutation du gain a été utilisée dans des lasers à cascade quantique émettant dans le moyen infrarouge pour générer des impul-

sions laser courtes [119]. Dans ce chapitre, la commutation du gain est réalisée dans le but de générer des ondes THz intenses.

Dans de nombreux systèmes, il est nécessaire d'envoyer du rayonnement intense pour exciter des transitions intersousbandes. Par exemple pour espérer étudier des phénomènes non-linéraires dans les semicondcuteurs aux fréquences THz [120], [121]. Les sources THz utilisées dans nos expériences ne permettent aux mieux d'atteindre que des puissances de quelques centaines de μW répartis sur une gamme fréquentielle de plusieurs THz. Pour espérer étudier des phénomènes non-linéaires dans le THz, il faut disposer d'une onde beaucoup plus intense et qui concentre l'énergie sur une bande étroite. Pour cette raison, il est utile de développer des amplificateurs THz s'appuyant sur des lasers. Jusqu'à présent, la meilleure amplification THz obtenue dans un laser était de 13 dB [122]. Dans ce chapitre nous mesurons le gain d'un laser au-dessus du seuil avant sa saturation[1]*, et nous nous en servons pour amplifier au maximum l'onde THz émise par l'antenne photoconductrice qui nous sert de source jusqu'à obtenir une amplification de 26 dB sur la puissance optique en sortie du laser. La commutation du gain nécessite un contrôle à des échelles de temps picoseconde du déclenchement du LCQ au-dessus de son seuil. Ce dernier a été obtenu par l'utilisation d'un interrupteur optique de type Auston. Nous exploitons donc deux nouvelles possibilités offertes par la spectroscopie THz : la possibilité de sonder des phénomènes ultra-rapides, et la possibilité de sélectionner la fenêtre temporelle d'acquisition, qui nous permet ici de regarder l'amplification d'une onde THz après plusieurs passages effectués par la cavité de l'échantillon.*

5.1 Protocole expérimental

Lorsqu'un LCQ est porté au-dessus de son seuil, le régime stationnaire s'établit rapidement, sur des échelles de temps mesurées et calculées dans le chapitre 6 comme étant égales à quelques centaines de ps. Pour cette raison, il n'est pas possible de sonder le régime non stationnaire d'un LCQ en le polarisant avec une tension créneau du type de celles délivrées par nos générateurs de courant. La figure 5.1 représente schématiquement la durée du régime stationnaire par rapport à la durée d'un créneau de tension appliqué au LCQ. Le régime transitoire a une durée négligeable par rapport à la durée de fonctionnement du LCQ et ne peut par conséquent pas être étudié avec le montage présenté au chapitre 2. La principale innovation de l'expérience présentée dans ce

1. Nous appelons saturation le blocage du gain à sa valeur seuil, alors exactement égal aux pertes totales dans l'échantillon. Il ne faut pas confondre ce phénomène avec l'épuisement du gain par des champs intenses qui vident le niveau excité d'une transition radiative, qui est également communément appelé saturation du gain

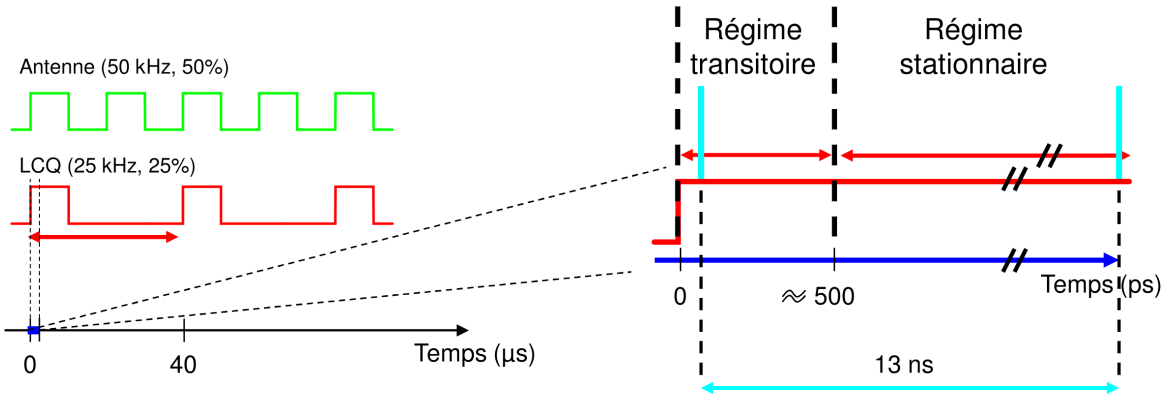


FIGURE 5.1: Représentation schématique des échelles de temps intervenant dans l'expérience. En vert et rouge, les signaux électriques servant à polariser l'antenne photoconductrice et le LCQ. En bleu clair, les impulsions THz générées par l'antenne. La durée du régime transitoire a été calculée et mesurée grâce aux résultats présentés dans le chapitre 6.

chapitre repose sur le contrôle du déclenchement du laser au-dessus du seuil à des échelles de temps de l'ordre de la picoseconde, permettant de n'observer que le régime transitoire d'un LCQ. Pour ce faire, nous avons utilisé un interrupteur optique appelé interrupteur Auston [123], activé par un faisceau NIR fs dont le temps d'arrivée sur l'interrupteur peut être ajusté à l'aide d'une ligne à retard. Cet interrupteur est incorporé à l'échantillon employé pour ces expériences. L'ajout de cette ligne à retard dans le dispositif expérimental décrit au chapitre 2 (cf figure 2.7) nécessite certaines modifications que nous décrivons dans la partie ci-dessous.

5.1.1 LCQ muni d'un interrupteur optique

Propriétés du LCQ

Le laser à cascade quantique L 182 utilisé dans les expériences décrites ci-après est un LCQ " lié-continuum " reposant sur un dessin similaire à celui du laser TRT 295 (2.9 THz) étudié au chapitre 4 [107], modifié de façon à émettre à 2.4 THz. La feuille de croissance de cet échantillon est fournie dans l'annexe E. Ce LCQ nous a été fourni par nos collaborateurs E. Linfield et G. Davies de l'université de Leeds. Pour trouver un bon compromis entre l'amplification obtenue dans l'échantillon, le courant seuil et la durée de propagation d'une impulsion dans l'échantillon nous avons choisi de prendre un ruban de 1.5 mm de longueur. Le temps de propagation dans l'échantillon est ici un paramètre important pour le choix des fenêtres temporelles d'acquisition des impulsions THz transmises après avoir effectué plusieurs passages par la cavité du LCQ.

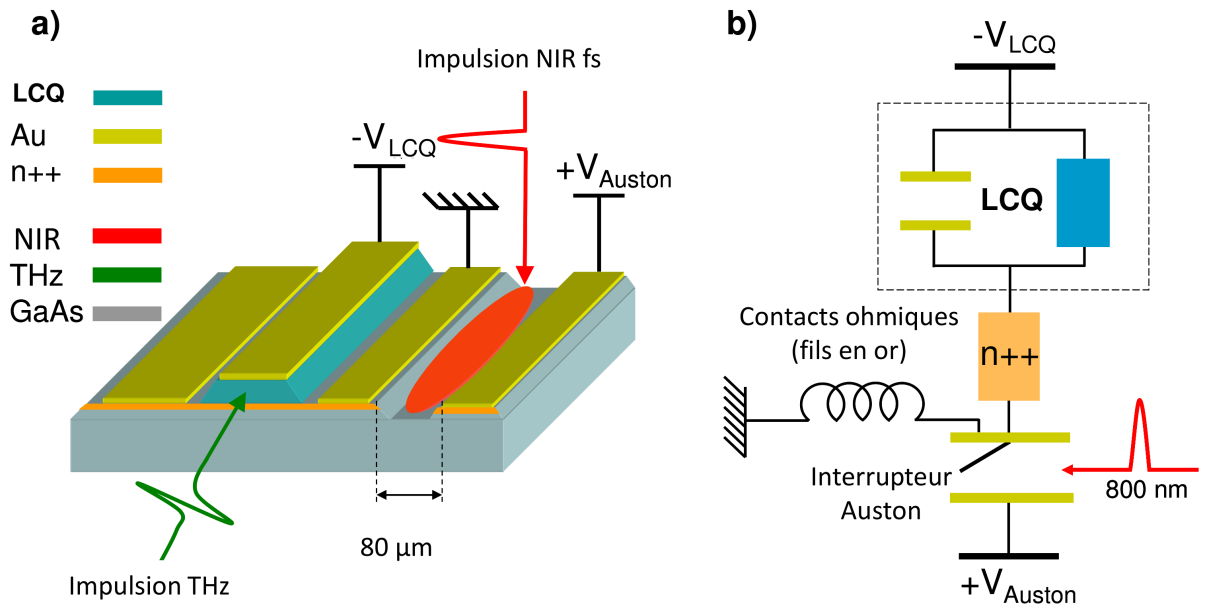


FIGURE 5.2: a) Représentation schématique de l'échantillon laser muni de l'interrupteur Auston, et b) circuit électrique équivalent de ce dispositif.

Gravure de l'interrupteur optique

L'interrupteur optique situé à proximité du ruban laser a été réalisé en gravant une bande large de 80 μm dans le contact métallique qui est relié à la masse du laser par une couche fortement dopée (appelée n++ sur la figure 5.2 a)). Le traitement de l'échantillon a été réalisé par C. Manquest au laboratoire MPQ. La profondeur de cette gravure atteint le substrat de GaAs. Le dispositif se présente alors sous la même forme qu'une antenne photoconductrice simple : deux bornes métalliques séparées par un gap de GaAs semi-isolant. On polarise la borne métallique séparée de l'échantillon à des tensions élevées (+ 27 V délivrés par un générateur de tension continue). L'autre borne est maintenue à la masse et fait office de masse commune au LCQ et à l'interrupteur. Le LCQ est polarisé en appliquant une tension négative au contact métallique situé sur le dessus du ruban. Ainsi, lorsque l'interrupteur n'est pas éclairé, il se comporte comme un condensateur chargé.

Fonctionnement de l'interrupteur Auston

Lorsque l'interrupteur Auston est éclairé avec une impulsion laser fs, l'absorption de ce faisceau par la bande de GaAs exposée crée des paires électrons trou qui permettent de faire passer un courant transitoire à travers la bande de GaAs semi-isolante de 80 μm, déchargeant ainsi le condensateur. Le principe de fonctionnement est strictement analogue à celui d'une antenne

photoconductrice, à l'exception près que le système est utilisé pour sa capacité à générer un courant transitoire et non à rayonner un champ. Il est possible de polariser le LCQ de la même manière que dans les expériences réalisées au chapitre précédent même en présence de l'interrupteur optique. Ceci est indispensable d'une part pour pouvoir faire une caratérisation LJV de l'échantillon, mais également afin de pouvoir appliquer l'essentiel du courant à injecter dans le laser pour approcher son seuil. L'activation de l'interrupteur permet alors d'appliquer une tension de polarisation supplémentaire au LCQ, suffisante pour le porter au-dessus du seuil. La surtension appliquée par l'interrupteur Auston activé ne permet pas d'injecter à elle seule les quelques 172 A/cm^2 nécessaires pour franchir le seuil de l'échantillon L 182. D'autre part, il est nécessaire d'appliquer une tension de polarisation élevée (27 V) à la borne métallique reliée à l'interrupteur pour assurer un transfert de charge efficace lorsque l'interrupteur est éclairé.

Schéma électrique équivalent

Sur la figure 5.2 b), un schéma électrique modélisant l'échantillon L 182 muni de l'interrupteur Auston inactif permet de distinguer trois composantes importantes : le LCQ, qui présente une résistance interne R, les contacts ohmiques (fils en or) qui peuvent être modélisés par une inductance L du fait de leur courbure, et l'interrupteur, qui est équivalent à une capacité C. Lorsque l'interrupteur est éclairé par un faisceau NIR, la capacité du schéma équivalent est déchargée.

5.1.2 Matériel utilisé

En plus du matériel employé dans l'expérience décrite au chapitre 4, nous avons dû modifier le dispositif optique de l'expérience pour activer l'interrupteur Auston. Pour ce faire, nous avons rajouté une lame séparatrice (50/50) pour prélever une partie du faisceau destiné à exciter l'antenne photoconductrice (cf figure 5.3). Le faisceau prélevé par cette lame séparatrice est acheminé jusqu'à l'échantillon laser sur lequel se trouve l'interrupteur Auston. Le faisceau est ensuite focalisé sur l'échantillon à l'aide d'une lentille cylindrique, permettant d'obtenir une image elliptique au point de focalisation sur l'interrupeur Auston, épousant la forme de la gravure réalisée dans le GaAs semi-isolant. Une seconde ligne à retard identique à celle utilisée sur le faisceau alimentant l'antenne THz sert à contrôler précisément le chemin optique du faisceau NIR fs arrivant sur l'interrupteur Auston [2]. Une webcam installée dans la boîte purgée à l'air sec

2. Le contrôle de la position de la ligne à retard placée sur le trajet du faisceau excitant l'interrupteur permet de sélectionner le retard Δt_{AS} entre l'activation de l'interrupteur et le passage de l'onde THz générée par l'antenne. Dans la mesure où la première ligne à retard située sur le trajet du faisceau excitant l'antenne photoconductrice sert à échantillonner le champ THz, le déplacement de cette ligne à retard lors de l'acquisition d'une trace THz modifie le retard Δt_{AS}. Ainsi, pour effectuer une mesure à Δt_{AS} fixé, il faut contrôler le déplacement pas à pas

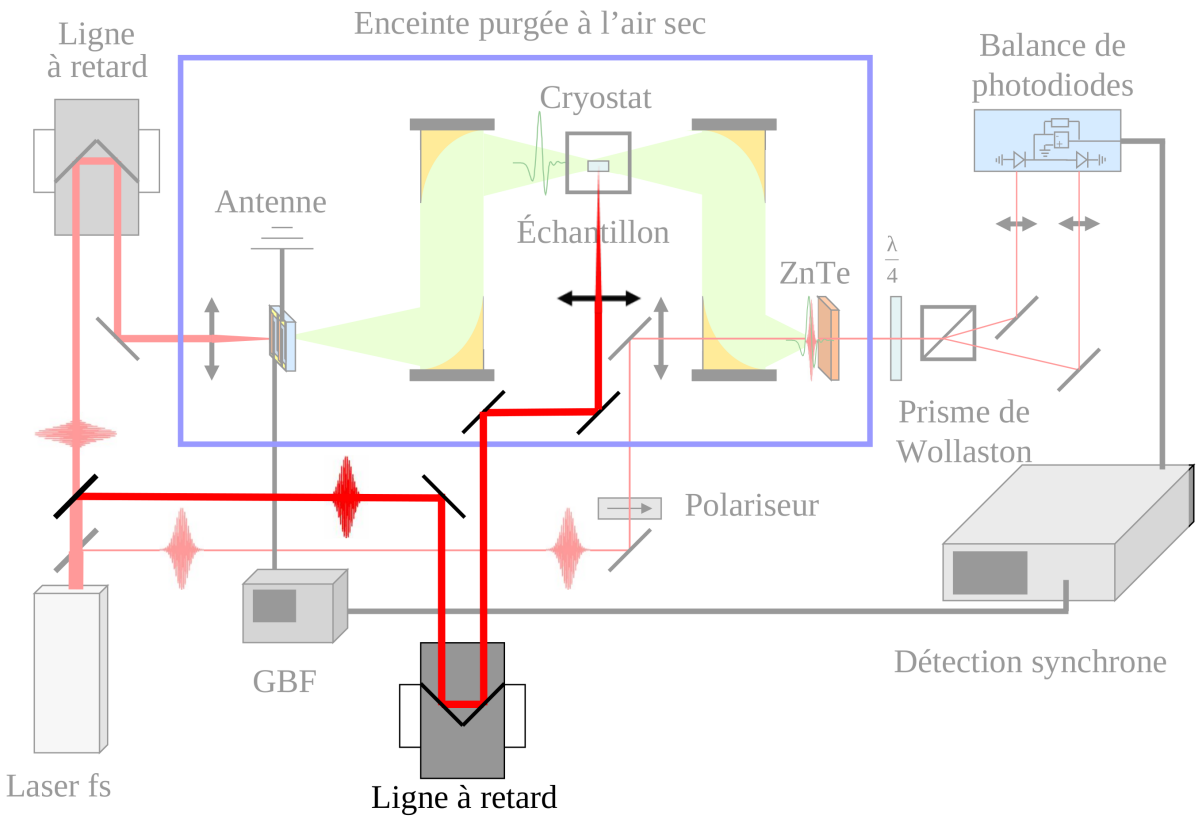


FIGURE 5.3: Représentation schématique du dispositif expérimental utilisé pour étudier un LCQ en régime non stationnaire. À la différence du dispositif présenté au chapitre 4 il y a deux lignes à retard dont l'une sert à faire varier le temps d'arrivée du faisceau NIR excitant l'interrupteur Auston par rapport à l'onde THz issue de l'antenne. Le trajet optique de ce faisceau est représenté sur le schéma par des couleurs plus contrastées que les autres composantes du montage.

permet de vérifier que le faisceau NIR éclaire convenablement l'interrupteur optique.

L'échantillon laser est polarisé de la même façon qu'au chapitre 4. On applique une tension supplémentaire à la borne métallique séparée de l'échantillon par l'interrupteur Auston. Cette tension continue délivrée par un générateur « Agilent E 3645 A » vaut 27 V.

5.1.3 Déroulement de l'expérience

Dans un premier temps, l'échantillon est caractérisé de la même façon qu'au chapitre 4. Ceci permet d'extraire les caractéristiques courant-tension (JV), les caractéristiques de luminescence

des deux lignes à retard en même temps. Le choix de cet emplacement pour les lignes à retard est dû à un manque de place sur la table optique. Un choix plus simple consiste à mettre une ligne à retard sur le trajet du faisceau NIR excitant l'interrupteur et l'autre sur le faisceau NIR servant à échantillonner l'impulsion THz.

(LJ), et des mesures de spectroscopie THz dans le domaine temporel permettent d'extraire le gain en régime stationnaire.

Une fois que l'échantillon laser est complètement caractérisé, nous connaissons en particulier la densité de courant seuil du LCQ. Nous portons alors le laser à une tension tout juste inférieure à cette tension seuil selon la méthode décrite au chapitre 4, (4.2.3). L'activation de l'interrupteur par l'impulsion NIR permet d'augmenter la densité de courant traversant le LCQ, le portant à un nouveau point sur la caractéristique courant-tension, que l'on sélectionne de façon à ce qu'il corresponde à un gain maximal.

Des mesures de spectroscopie THz dans le domaine temporel sont ensuite effectuées avec l'interrupteur Auston éclairé, en suivant la même procédure que celle décrite au chapitre 4. Pour étudier l'effet de la longueur de LCQ traversée sur l'amplification, nous nous intéressons également aux ondes THz transmises après avoir effectué plusieurs passages par la cavité du laser, observables en augmentant la taille de la fenêtre temporelle d'acquisition. Ses champs THz sont comparés à des mesures effectuées pour plusieurs passages par l'échantillon avec l'interrupteur Auston inactif.

Dans un deuxième temps, nous avons cherché à estimer le temps de vie des porteurs générés dans l'interrupteur, afin de connaître sa durée de fonctionnement. Pour y parvenir nous avons effectué des mesures de transmission THz pour différents retards Δt_{AS} entre impulsion THz et impulsion NIR fs éclairant l'interrupteur Auston.

5.2 Caractérisation de l'échantillon L 182 en régime stationnaire

Nous présentons dans cette partie les données issues de mesures effectuées sur l'échantillon L 182 en régime stationnaire (sans actionner l'interrupteur optique). Il s'agit ici de caractériser le LCQ par des mesures identiques à celles présentées dans le chapitre précedent : courbes LJV, spectres des champs THz transmis.

La caractéristique courant-tension de l'échantillon, représentée sur la figure (5.4) permet d'identifier la densité de courant seuil à 172 A/cm^2. On remarque un point dans le régime de fonctionnement laser où la densité de courant traversant l'échantillon diminue en même temps que la tension appliquée augmente. Ceci est la manifestation d'une résistance différentielle négative, qui survient lorsque la structure du LCQ se désaligne.

Les transformées de Fourier des champs THz mesurés par spectroscopie dans le domaine temporel démontrent l'émission stimulée autour de 2.4 THz au-dessus du seuil. (cf figure 5.5)

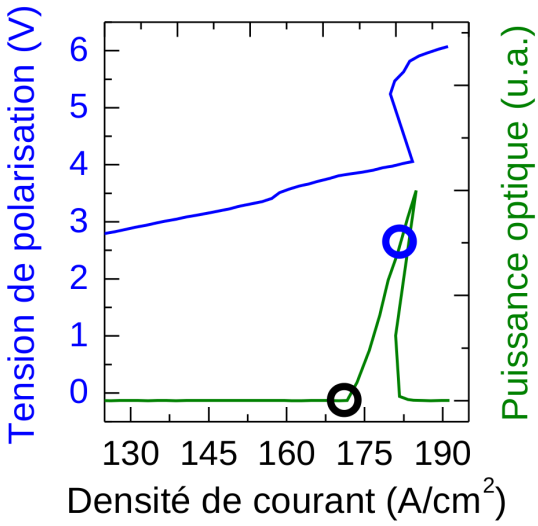


FIGURE 5.4: Caractéristiques courant-tension (JV) et courbes de puissance lumineuse émise (LJ) de l'échantillon L 182 utilisé dans l'expérience présentée dans ce chapitre. Le rond noir indique la densité de courant à la laquelle le LCQ est porté sous le seuil lorsque l'interrupteur Auston est inactif. Le rond bleu indique la densité de courant à laquelle l'activation de l'interrupteur Auston porte, idéalement, le LCQ au-dessus du seuil.

5.3 Caractérisation de l'échantillon L 182 en régime non stationnaire

Pour porter le LCQ au-dessus du seuil à l'aide de l'interrupteur optique Auston, on lui applique une tension qui correspond à une densité de courant mesurée de 168 A/cm^2, tout juste inférieure au seuil. Le courant supplémentaire injecté par l'activation de l'interrupteur porte le LCQ au-dessus du seuil, en un point de sa caractéristique courant-tension que nous ne pouvons pas mesurer. En effet la mesure JV s'effectue sur des échelles de temps longues (microseconde) à l'aide d'un oscilloscope tandis que la durée d'activation de l'interrupteur est limitée à quelques centaines de ps [123]. Par conséquent, pour optimiser l'amplification THz dans le laser à cascade, nous avons adapté le délai Δt_{AS} entre impulsion NIR fs sur l'interrupteur et onde THz passant par le LCQ de façon à obtenir une amplitude THz transmise maximale. Nous comparons ensuite les champs THz mesurés lorsque l'interrupteur est actif avec ceux mesurés lorsqu'il est inactif pour des longueurs de milieu amplificateur traversé croissantes.

5.3.1 Premier passage par la cavité du LCQ

Sur la figure 5.6 a), on distingue en noir le champ THz transmis par le LCQ en régime stationnaire (interrupteur ouvert) et en bleu le champ THz transmis par le LCQ lorsqu'il est

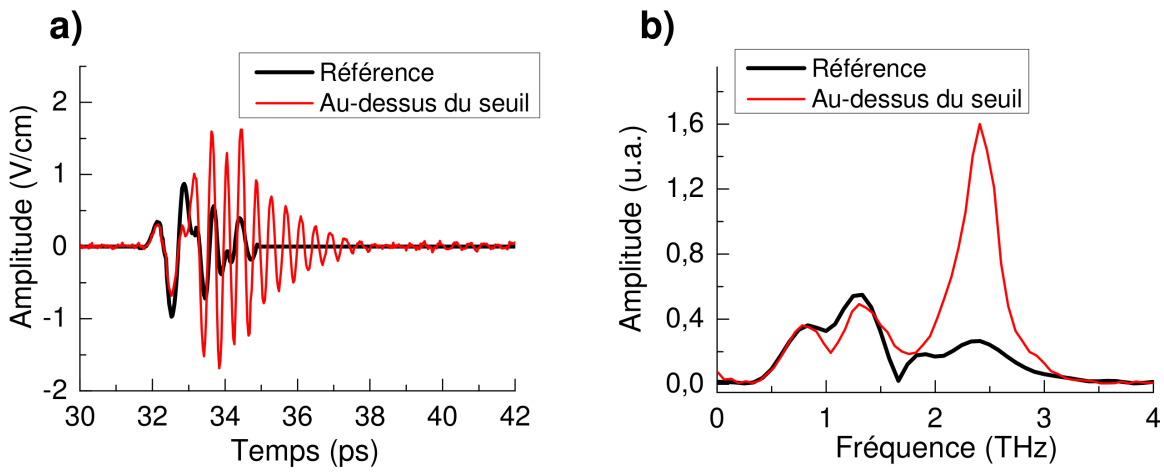


FIGURE 5.5: a) Champs THz issus de mesures de spectroscopie dans le domaine temporel sur l'échantillon L 182 en régime stationnaire polarisé au-dessus du seuil (courbe rouge) et non polarisé (courbe noire, référence), et b) transformée de Fourier de ces champs.

en régime transitoire (interrupteur Auston actif). Bien que le LCQ soit polarisé à une tension tout juste inférieure au seuil, le gain y est égal à la valeur au seuil (cf figure 5.6 c) représentant schématiquement en noir la courbe de gain saturé et un cercle noir indique sa valeur pour la densité de courant appliquée au LCQ). Nous avons vu dans le paragraphe précédent que le gain modal suit une augmentation continue sous le seuil jusqu'à atteindre sa valeur de saturation. Sur la courbe bleue de la figure 5.6 c) représentant l'évolution du gain modal non saturé accessible en régime transitoire, la position atteinte grâce à l'optimisation du réglage du délai Δt_{AS} et de la tension appliquée à l'interrupteur est indiquée par un cercle bleu. Des mesures de gain effectuées en régime stationnaire (courbe noire) et transitoire (courbe rouge) pour différentes densités de courant injectées dans le LCQ sont représentées sur la figure 5.6 d). Cette figure permet de voir que le gain accessible en régime transitoire est environ deux fois plus grand qu'en régime stationnaire.

Les champs THz mesurés correspondent à un seul passage [3] effectué par la cavité du LCQ, c'est-à-dire une longueur $L = 1.5$ mm de milieu amplificateur traversé. On ne remarque que peu de différences dans l'amplitude des deux champs électriques. Cependant, l'onde THz transmise en régime transitoire présente un nombre plus important d'oscillations, traduisant un spectre plus étroit qu'en régime stationnaire. Ceci est confirmé en réalisant les transformées de Fourier

3. L'existence de miroirs dans la cavité du LCQ provoque une réflexion partielle de l'onde THz sur les facettes de l'échantillon. Nous appelons passage la traversée d'une longueur L séparant les deux miroirs de cavité.

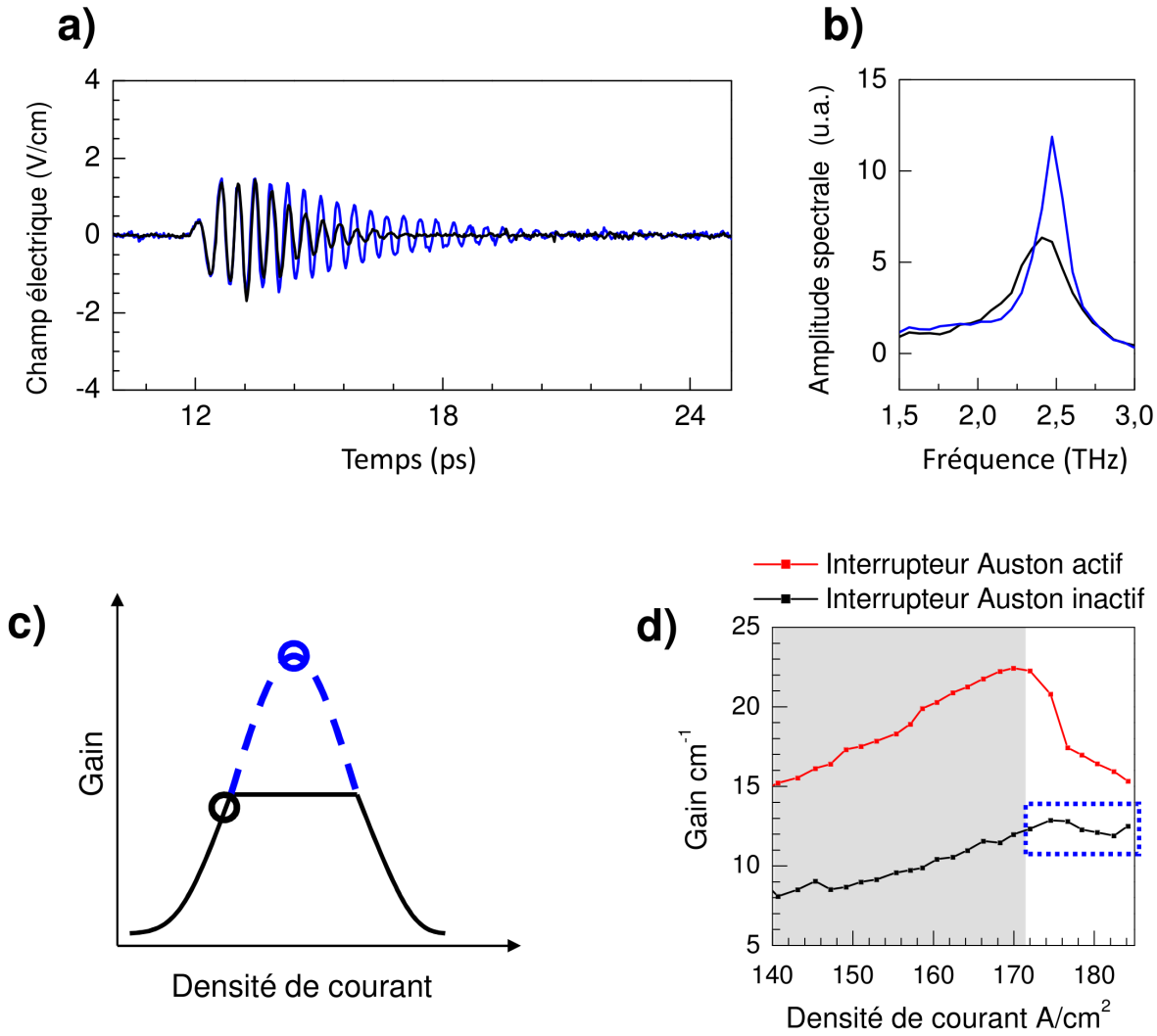


FIGURE 5.6: a) Champs THz mesurés après un unique passage par l'échantillon. Le laser est polarisé juste sous le seuil à 168 A/cm^2. La courbe noire correspond au régime stationnaire, la courbe bleue au régime non stationnaire (interrupteur Auston activé). b) Spectres de ces deux champs. c) Représentation schématique du gain : en noir, le gain saturé en régime stationnaire ; en bleu, le gain accessible en régime transitoire. d) Gain mesuré en régime stationnaire et transitoire pour des densités de courant injectées dans le LCQ proches du seuil.

des deux traces temporelles représentées sur la figure 5.6 b). Ainsi, la composante spectrale à 2.46 THz (fréquence d'émission du LCQ) est amplifiée d'un facteur 1.9 lorsque l'interrupteur est actif comparé au cas où il ne l'est pas. D'autre part, cette amplification s'accompagne effectivement d'un rétrécissement du spectre.

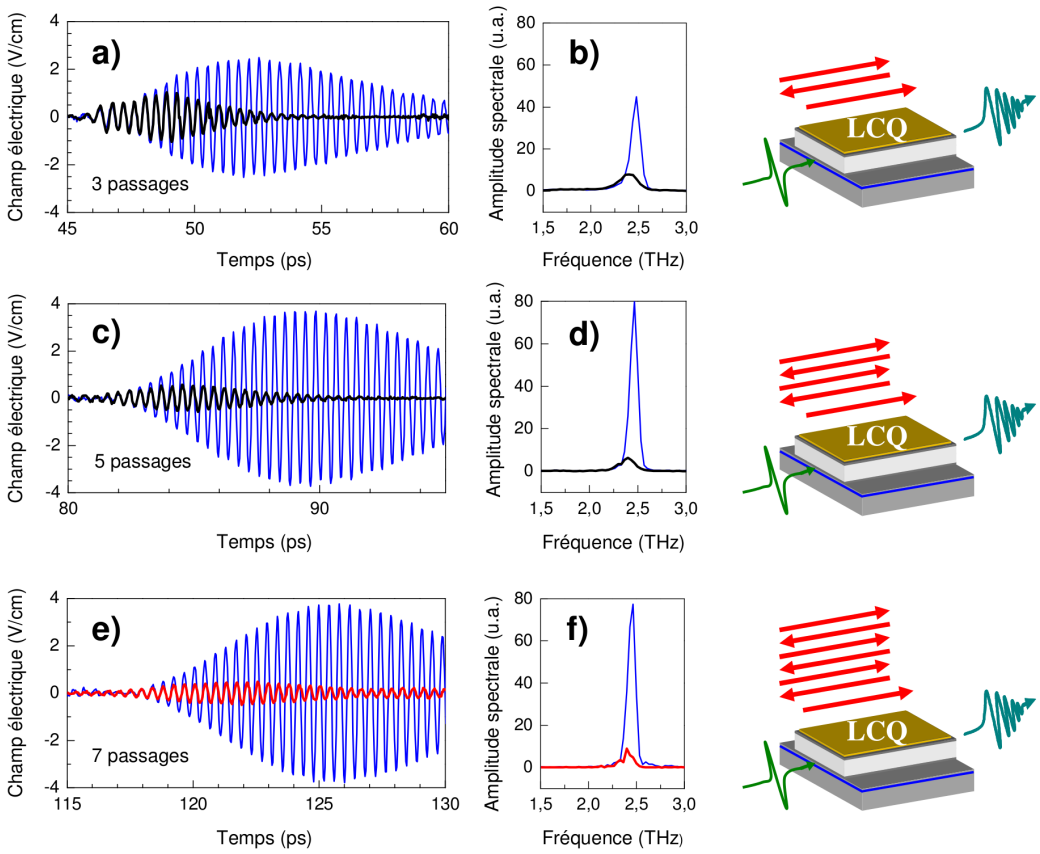


FIGURE 5.7: a), c), e) Champs THz mesurés après respectivement trois, cinq et sept passages par l'échantillon. Le laser est polarisé juste sous le seuil avec une densité de courant injectée de 168 A/cm^2. Les courbes noires correspondent au régime stationnaire, les courbes bleues au régime non stationnaire (interrupteur Auston activé). b), d), e) Spectres des champs représentés respectivement sur les figures a), c) et e). Une représentation schématique de la longueur d'échantillon traversée est affichée à droite de chaque spectre par des flèches rouges pour trois, cinq et sept passages par le LCQ.

5.3.2 Passages multiples par la cavité du LCQ

Pour bénéficier d'une amplification plus importante, nous allons observer ce que devient le champ THz transmis par le LCQ pour plusieurs tours effectués dans la cavité de ce dernier. Nous comparons ici le cas du régime stationnaire et non stationnaire pour trois, cinq et sept passages effectués par l'onde THz à travers le LCQ. Sur les figures 5.7 a), c) et e) on remarque que le régime non stationnaire permet d'atteindre des amplitudes de champs THz plus élevées qu'en régime stationnaire. Les transformées de Fourier de ces champs transmis, représentées sur les figures 5.7 b), d) et f) mettent en évidence une amplification importante de l'amplitude spectrale à 2.46 THz à mesure que la longueur d'échantillon traversée augmente. Pour trois et cinq passages

le facteur d'amplification de cette composante spectrale est de 5.9 et 20.7 respectivement. Pour sept passages effectués, le facteur d'amplification pour la composante spectrale à 2.46 THz est de 16.1. L'amplification maximale est ainsi obtenue après cinq passages dans le laser. Le gain sur la puissance optique à 2.46 THz est alors de 26 dB par rapport au régime stationnaire.

5.3.3 Durée de fonctionnement de l'interrupteur Auston

L'une des limites dans le facteur d'amplification maximal accessible avec une commutation du gain réalisée avec un interrupteur optique est la durée de vie des porteurs photocréés [124]. Nous cherchons ici à estimer la durée d'activation de l'interrupteur Auston. Une mesure du gain modal lors du premier passage par la cavité du laser en fonction du délai Δt_{AS} entre impulsion NIR fs actionnant l'interrupteur et impulsion THz traversant le LCQ permet de voir comment la valeur du gain change pendant l'activation de l'interrupteur Auston. Le délai au bout duquel le gain modal revient à sa valeur initiale du régime stationnaire nous donne une estimation de la durée de fonctionnement de l'interrupteur optique. La figure 5.8 a) représente l'évolution du gain modal à 2.40 THz et 2.46 THZ en fonction du délai Δt_{AS}. On fixe l'origine des temps à la valeur Δt pour laquelle le gain modal augmente. Cet instant marque une transition entre le régime stationnaire où le gain est indépendant du délai Δt_{AS} lorsque l'impulsion THz traverse le LCQ avant l'activation de l'interrupteur, et le régime non stationaire au cours duquel le gain modal subit des variations dépendant de la dynamique de l'interrupteur Auston. Sur la courbe verte de la figure 5.8 a) on remarque que le gain modal à 2.46 THz passe d'une valeur de 11.4 cm^{-1} en régime stationnaire (pour $\Delta t_{\mathrm{AS}} < 0$) jusqu'à un maximum de 22.3 cm^{-1} en 60 ps. Il faut attendre 140 ps pour que le gain modal à 2.46 THz retrouve sa valeur intiale du régime stationnaire. On peut donc considérer que le courant transitoire formé dans l'interrupteur Auston a un temps de vie de l'ordre de 140 ps, ce qui correspond à la durée typique de tels dispositifs [123].

5.3.4 Dynamique de l'interrupteur Auston

Nous avons établi que le gain en régime non stationnaire pour les délais $\Delta t_{\mathrm{AS}} > 0$ atteint sa valeur maximale en 60 ps. Le temps de monté associé (défini comme le temps nécessaire pour passer de 10 % à 90 % de variation en amplitude de la valeur mesurée) est de 46 ps. Ce temps de montée dépend de la conduction du courant dans la région dopée n++ située sous le LCQ (et donc de la résistance de cette couche dopée), ainsi que de la capacité interne du LCQ. La couche dopée a une résistance mesurée de 3.2 Ω et l'échantillon a une capacité mesurée de 3.7 pF. En modélisant le système (LCQ + interrupteur Auston) par un circuit RC on trouve une constante de temps de 26 ps, soit une valeur inférieure aux 46 ps observées expérimentalement.

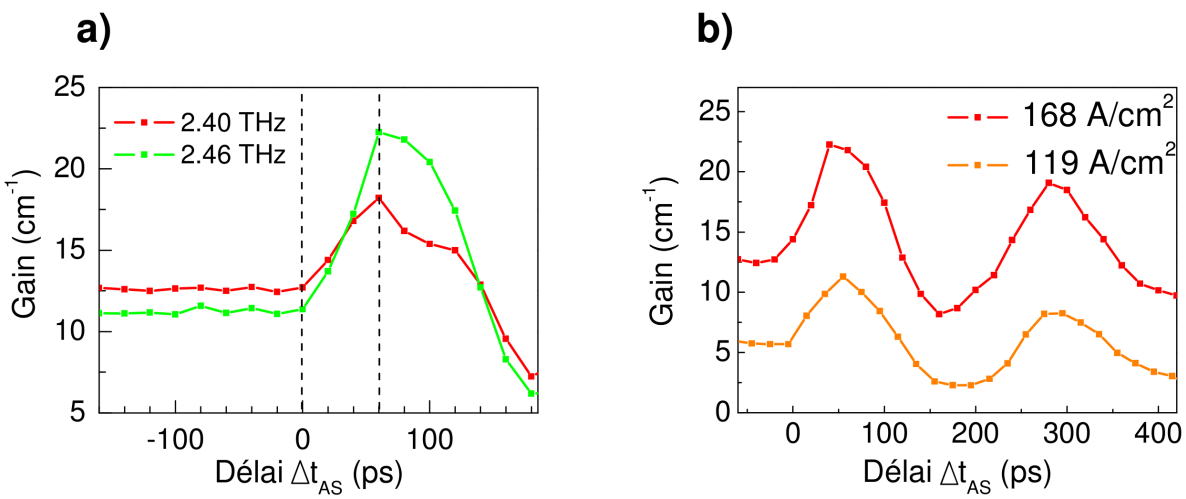


FIGURE 5.8: a) Évolution du gain modal à 2.4 THz et 2.46 THz en fonction du délai Δt entre impulsion THz et faisceau NIR servant à actionner l'interrupteur Auston. b) Évolution du gain modal à 2.46 THz sur 400 ps présentant des oscillations d'une période de 240 ps aussi bien en-dessous (courbe orange) qu'au-dessus (courbe rouge) du seuil laser en régime non stationnaire.

Les variations observées sur la figure 5.8 a) peuvent donc être attribuées en partie à la dynamique propre au laser et non seulement celle de l'interrupteur.

Sur la figure 5.8 a) on constate que le gain modal décroît au-delà de 140 ps vers des valeurs inférieures à celles observées en régime stationnaire aux délais négatifs. Nous avons observé l'évolution du gain pour des délais allant jusqu'à 400 ps, représentés sur la figure 5.8 b) pour deux densités de courant appliquées au LCQ : l'une tout juste sous le seuil (courbe rouge) et l'autre à une valeur inférieure qui ne permet pas de porter le LCQ au-dessus du seuil à l'aide de l'interrupteur Auston (courbe orange). On observe des oscillations du gain sur la figure 5.8 b) ayant une période de 240 ps pour les deux tensions appliquées au LCQ. Dans la plupart des lasers, le régime transitoire s'accompagne d'oscillations de relaxation du gain [125]. Le fait que des oscillations sur la figure 5.8 b) soient présentes même pour une tension appliquée qui ne porte pas le laser au-dessus du seuil et pour lesquelles il n'y a pas d'inversion de population montre qu'il ne peut pas s'agir d'un tel phénomène d'oscillations de relaxation. Par ailleurs, les temps de vie beaucoup plus courts des transitions intersousbande dans les lasers à cascade quantique permettent de repeupler rapidement le niveau excité des transitions radiatives et garantir l'inversion de population [113], ce qui empêche l'apparition d'oscillations de relaxation comme cela a été prouvé par Paeilla *et al.* [126].

Nous attribuons la présence des oscillations observées sur la figure 5.8 b) aux fils métalliques

en or servant à maintenir la borne entre l'interrupteur et le LCQ à la masse. Lorsque l'interrupteur est activé, le potentiel de cette masse s'abaisse (idéalement égal à celui de la borne soumise à une tension de 27 V par-delà la bande de GaAs semi-isolante). Par ailleurs, à mesure que les charges photocréées dans l'interrupteur se recombinent, la masse revient à son potentiel initial avec une certaine constante de temps caractéristique. Les fils métalliques incurvés maintenant la borne à la masse s'apparentent à des inductances (L), qui forment avec la capacité (C) du LCQ, un système RLC qui peut donner naissance à des oscillations amorties. À partir de la période des oscillations mesurée comme étant égale à 240 ps, et de la capacité du LCQ mesurée à 3.7 pF, ce circuit LC se compose d'une inductance vérifiant la relation : $L = \frac{T^2}{4\pi^2 C} = 0.4$ nH, en accord avec les valeurs d'inductance pour un contact métallique mentionnées dans la référénce [127].

5.4 Conclusions et perspectives

L'observation d'une amplification importante d'une onde THz transmise à travers un LCQ fonctionnant en régime non stationnaire ouvre des perspectives intéressantes pour la génération de sources THz de forte intensité sur une bande étroite. Dans l'expérience présentée ici, une source THz large bande (l'antenne photoconductrice) a été utilisée conjointement avec le laser à cascade, servant uniquement d'amplificateur. Il a récemment été montré [128] qu'une excitation NIR fs appliquée sur la facette d'un laser à cascade quantique polarisé permet de générer du rayonnement THz directement en sein de l'échantillon, sans avoir recours à des sources externes de rayonnement THz en s'appuyant sur un principe analogue à celui utilisé dans les dispositifs de type interrupteur Auston. Il est donc envisageable de combiner ces deux approches pour générer et amplifier un rayonnement THz directement dans un laser à cascade quantique.

La commutation du gain avec un interrupteur optique nous a permis d'atteindre une amplification de 26 dB sur la composante fréquentielle correspondant à l'émission laser à 2.4 THz. Il est envisageable d'augmenter ce facteur en ralongeant la durée de fonctionnement de l'interrupteur optique et en effectuant un plus grand nombre de passages par la cavité du LCQ pendant le régime transitoire.

Le dispositif présenté ici démontre la faisabilité technique d'une telle amplification et permet de sonder les lasers à cascade quantique dans un régime peu étudié jusqu'à présent [26]. Cependant, certaines améliorations sont envisageables. Il serait souhaitable d'adapter les caractéristiques internes du montage (contacts ohmiques, géométrie de l'interrupteur) pour contrôler le phénomène d'oscillation du gain discuté dans la partie (5.3.4), et optimiser le temps de montée de la tension appliquée par l'interrupteur Auston.

Dans ce chapitre, nous avons exploité le laser à cascade quantique en régime non stationnaire pour bénéficier d'une amplification THz supérieure à celle permise par la saturation du gain qui apparaît en régime stationnaire. Cette technique encore perfectible est fondamentalement limitée par la durée du régime non stationnaire. Dans le prochain chapitre, nous proposons une expérience permettant de s'affranchir d'un amplificateur pour détecter, à l'aide de la spectroscopie dans le domaine temporel, l'onde quasi-monochromatique émise par un laser à cascade THz amorcé par une impulsion externe. Le contrôle de la phase du champ émis par le laser permet d'avoir accès à des puissances THz plus élevées que celles observées dans ce chapitre.

Chapitre 6

Contrôle de la phase du champ THz émis par un LCQ

Nous avons vu au chapitre 2 que la spectroscopie THz dans le domaine temporel n'est pas sensible aux ondes électromagnétiques dont la phase n'est pas corrélée aux impulsions NIR fs servant à l'échantillonnage. Pour cette raison, l'émission d'un laser à cascade quantique, qui acquiert la phase de l'émission spontanée, fondamentalement aléatoire, n'est pas détectée dans les expériences présentées aux chapitres précédents. Le contrôle de la phase d'impulsions électromagnétiques fs a permis de faire des progrès remarquables dans la métrologie temps-fréquence [129], où elle fournit des oscillateurs de grande précision à des fréquences proches du domaine visible, et permet de fabriquer des lasers attoseconde [130], [131]. Cependant, le domaine THz ne présente pas à l'heure actuelle de dispositifs présentant une largeur de raie suffisamment fine et stable en fréquence pour permettre la réalisation d'oscillateurs de grande précision utilisables dans la calibration d'instruments THz utilisés en spectroscopie, malgré de récents progrès en la matière [132]. Des études utilisant le photomélange [133], [134] ou une stabilisation par des dispositifs de rétroaction [135], [136] on été mis au point pour contrôler la phase de lasers à cascade THz. Dans ce chapitre, nous utilisons une autre méthode pour forcer un laser à acquérir la phase d'une impulsion mesurable par spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous utilisons l'impulsion THz large bande générée par une antenne photoconductrice pour amorcer [137] l'émission laser dans un LCQ et sommes ainsi capables de mesurer avec une détection électro-optique le champ électrique émis par ce dernier. Nous présentons un dispositif expérimental utilisant des impul-

sions radio fréquence (RF) pour polariser le laser au-dessus de son seuil, permettant l'amorçage d'un LCQ THz, et l'utilisons pour étudier les propriétés de l'onde électromagnétique qui se forme dans la cavité du laser dans les premières nanosecondes où ce dernier est porté au-dessus du seuil.

6.1 Rappel de la problématique

Bien que les LCQ émettent du rayonnement THz, les expériences de spectroscopie THz dans le domaine temporel ne permettent pas de détecter ces ondes dont la phase est aléatoire par rapport aux impulsions utilisées pour détecter le rayonnement (cf chapitre 2). En effet, le champ THz est échantillonné et mesuré à l'aide d'impulsions NIR fs, synchronisées avec les impulsions THz qu'elles sondent sur un cristal de ZnTe. Une mesure d'amplitude THz s'effectue en prenant la moyenne de la réponse de la détection électro-optique suite au passage d'un grand nombre d'impulsions NIR fs. Dans le cas de signaux THz qui ont une phase aléatoire entre deux impulsions NIR fs (rayonnement du corps noir ambiant, émission THz d'un LCQ *etc*) la moyenne des amplitudes sur un grand nombre d'impulsions NIR fs est nulle.

La figure 6.1 a) représente les variations de phase entre onde cohérente THz émise par un LCQ et impulsions NIR fs servant à échantillonner ce champ. Dans le cas général, l'émission d'un laser à cascade quantique ne peut être mesurée par spectroscopie THz. La phase du champ THz laser issu de l'émission spontanée est différente à chaque fois qu'il est porté au-dessus du seuil. Par conséquent, entre deux créneaux de tension appliqués au LCQ, la phase de l'onde THz émise par le LCQ change.

Notre expérience consiste ici à contrôler la phase de l'onde THz émise par un LCQ en effectuant un amorçage de ce dernier par une impulsion externe. Dans cette configuration, la moyenne des signaux mesurés par les impulsions fs ne s'annule pas (cf figure 6.1 b)), et il devient possible de voir le champ THz émis par le LCQ. Nous expliquons en quoi consiste cet amorçage dans la partie suivante.

6.2 Protocole expérimental

L'objectif de cette expérience est de mesurer avec une détection électro-optique des ondes THz d'une puissance égale à celle délivrée par les lasers à cascade quantique. Leur valeur de l'ordre du mW [53], peut être jusqu'à 2 ordres de grandeur au-dessus des champs détectés dans le chapitre précédent.

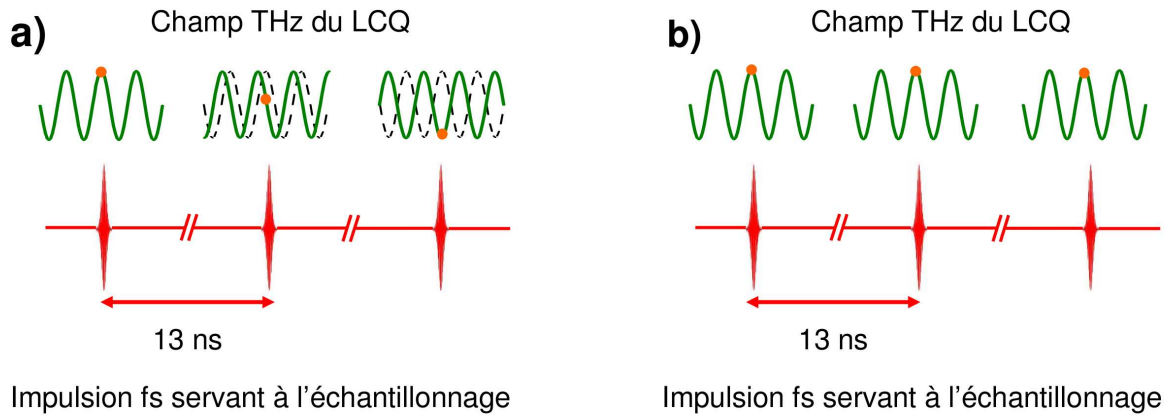


FIGURE 6.1: a) Représentation schématique des variations de phase perçues par l'impulsion NIR fs entre deux mesures de l'amplitude THz d'un laser à cascade quantique. b) Représentation schématique de l'effet obtenu sur la phase d'un LCQ amorcé par une impulsion THz externe.

6.2.1 Principe de l'expérience

Le champ électromagnétique présent dans la cavité d'un laser pompé électriquement sous le seuil est issu de l'émission spontanée. Lorsque le laser est alimenté au-dessus de son seuil ce champ électromagnétique est amplifié mais conserve sa phase. L'émission spontanée est un processus fondamentalement aléatoire [138], et il est donc impossible d'en contrôler la phase. Par contre, si un champ électromagnétique avec une phase connue, d'amplitude supérieure au champ issu de l'émission spontanée est présent dans la cavité au moment où le laser est porté au-dessus de son seuil, c'est ce dernier qui sera amplifié jusqu'à atteindre la valeur de saturation du champ laser [27], [137]. Il est alors possible de contrôler la phase du champ THz émis par le laser, qui est imposée par l'onde de plus forte amplitude injectée dans la cavité.

Dans notre cas, l'onde THz issue de l'antenne photoconductrice (puissance de quelques dizaines de μW [139] au plus) devrait générer des amplitudes THz supérieures au champ de luminescence présent dans le LCQ sous le seuil, ce que nous avons vérifié par l'expérience. Le montage expérimental de spectroscopie THz dans le domaine temporel est modifié de façon à pouvoir porter le laser à cascade quantique au-dessus du seuil quelques picosecondes après le couplage de l'onde THz issue de l'antenne photoconductrice dans l'échantillon. Un dispositif de type interrupteur Auston utilisé dans le chapitre précédent ne convient pas car il ne porte l'échantillon au-dessus du seuil que pendant une centaine de picosecondes, ce qui ne permet pas d'atteindre la valeur de saturation du champ laser.

Nous utilisons à la place de l'interrupteur optique, une impulsion électrique synchronisée sur

le taux de répétition de 76 MHz du laser fs (MIRA). L'impulsion est créée en amplifiant et filtrant le signal électrique issu d'une photodiode à réponse rapide (300 ps) éclairée avec une faible portion du faisceau infrarouge fs servant à éclairer l'antenne photoconductrice. Le contrôle de la phase de cette impulsion électrique s'effectue en ajustant la longueur de câble électrique utilisé pour transporter le signal provenant de la photodiode.

Pour vérifier que l'on mesure bien un champ THz correspondant à l'émission du LCQ, des expériences de saturation du champ mesuré sont effectuées en faisant varier l'amplitude de l'onde THz émise par l'antenne et couplée dans le laser. En variant l'amplitude de la tension créneau alimentant l'antenne on modifie l'amplitude du champ THz qu'elle émet (cf chapitre 2). La mesure du champ THz transmis par le LCQ permet de déterminer si l'amplification dans le laser suit les variations d'amplitude du champ THz issu de l'antenne ou si elle sature à partir d'une certaine valeur de ce champ incident. S'il y a saturation, alors le laser a été amorcé. Sinon, le champ mesuré n'est qu'une amplification en régime transitoire puis stationnaire du champ incident.

6.2.2 Matériel utilisé

Le montage de spectroscopie général présenté au chapitre 2 est complété par un système permettant d'appliquer une faible tension créneau au laser à une fréquence égale au taux de répétition du laser fs. Nous allons détailler ici ce circuit électronique complexe, dont une représentation schématique simplifiée est fournie sur la figure 6.2.

Circuit électronique d'alimentation du LCQ par des signaux radiofréquence

Une lame séparatrice placée sur le trajet du faisceau NIR fs allant vers l'antenne photoconductrice prélève 1 % de sa puissance pour l'envoyer vers une photodiode à réponse rapide. Cette photodiode charrie des impulsions électriques avec un taux de répétition de 76 MHz. Pour transporter des signaux haute fréquence, nous avons préféré des câbles et connecteurs SMA aux câbles BNC, du fait de leur meilleure transmission de signaux haute fréquence.

Un atténuateur est placé derrière la photodiode pour filtrer le signal électrique qu'elle génère et permettre d'avoir une amplitude suffisamment faible pour ne pas saturer un amplificateur placé en aval. On utilise un commutateur de signal radiofréquence (RF) pour moduler ces impulsions électriques avec la tension créneau de 10 kHz utilisée pour alimenter le LCQ. Ce commutateur reçoit un signal de même fréquence et rapport cyclique que celui servant à alimenter le LCQ. Le signal RF modulé passe ensuite par un atténuateur variable contrôlé en tension, utilisé pour choi-

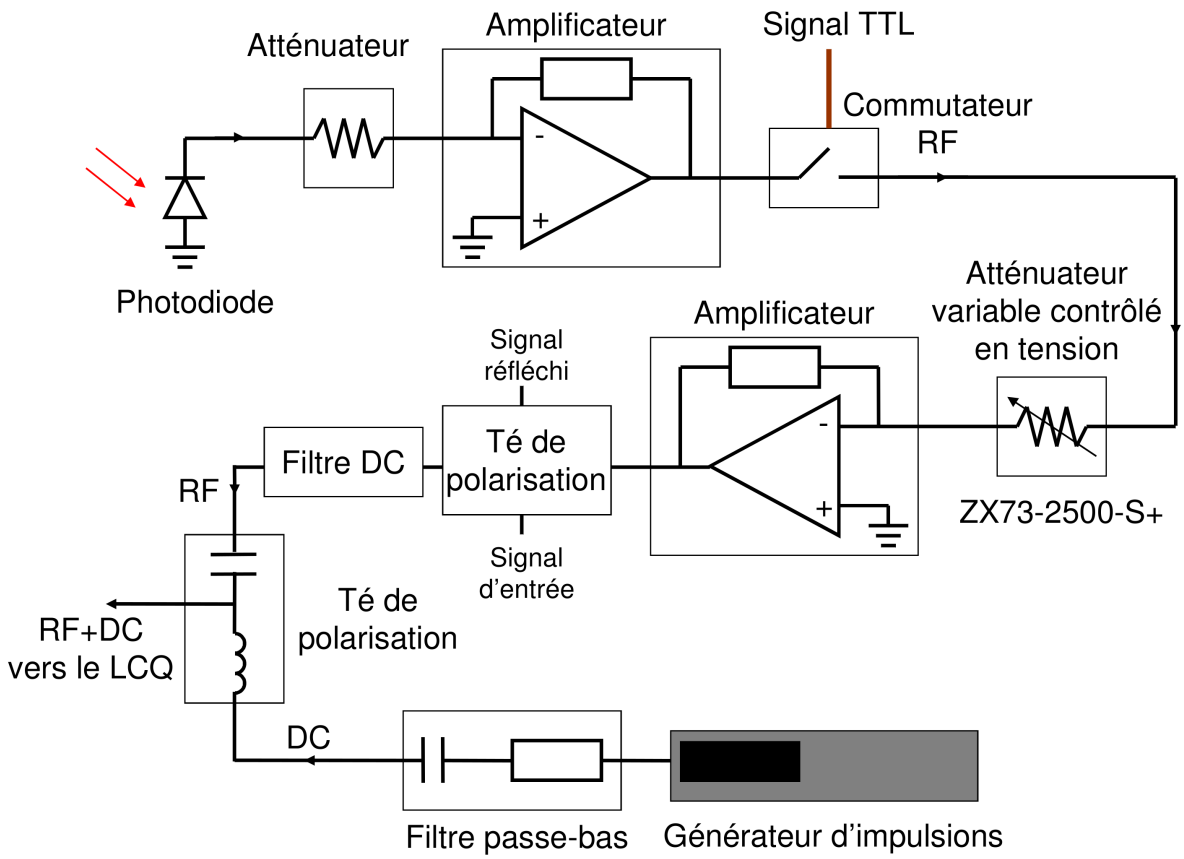


FIGURE 6.2: Représentation schématique simplifiée du circuit électronique servant à porter l'échantillon au-dessus du seuil au même instant que l'arrivée de l'onde THz.

sir l'amplitude et contrôler l'allure du signal RF. Le signal RF passe ensuite par un amplificateur de haute puissance.

Ce signal amplifié a alors une amplitude de quelques dixièmes de volts. Il passe par un té de polarisation, qui permet de regarder le signal en entrée et le comparer à l'impulsion électrique réfléchie par le montage depuis l'échantillon laser. Pour éviter d'abimer ce dispositif on place un filtre de signaux continus. Le signal RF a alors la forme d'un créneau de tension de 1 à 2 ns de durée, fonction du réglage de l'atténuateur variable contrôlé en tension. Il est alors rajouté à la tension créneau délivrée par le générateur d'impulsion servant à polariser le LCQ au moyen d'un té de polarisation.

La tension créneau délivrée par le générateur d'impulsion passe d'abord par un filtre passe bas d'ordre 1 et de fréquence de coupure à 160 kHz. Ceci permet d'éviter l'ajout de parasites dans le signal RF via le té de polarisation. Le signal complet (tension créneau combinée avec des

impulsions RF) est branché sur l'échantillon laser. Un schéma complet du circuit électronique est disponible à l'annexe D.

Lors de l'installation de ce dispositif expérimental, les signaux RF ont été observés sur un oscilloscope numérique ayant une bande passante de 1 GHz. Sa large bande passante permet d'observer les signaux RF ayant un temps de monté rapide de l'ordre de 300 ps. Nous avons utilisé deux réglages différents pour les signaux RF. Le premier était un réglage de faible intensité, permettant d'avoir une impulsion en forme de mesa régulière, mais de durée courte (1 ns). Le second était de forte intensité, dont la forme ne constituait pas une mesa régulière mais de durée plus longue (2 ns).

Le temps d'arrivée des signaux RF peut être ajusté en rajoutant ou en enlevant des câbles SMA. Un ajustement fin est possible en rajoutant ou en enlevant des connecteurs SMA de 1 cm de longueur. Sachant que l'indice de ces composants électroniques est de n=1.5, l'ajout de L=1 cm de câble provoque un retard temporel de $\Delta t = \frac{Ln}{c_0}$= 50 ps, où c_0 est la vitesse de la lumière dans le vide. Nous pouvons ainsi ajuster le temps d'arrivée des signaux RF par rapport aux impulsions THz à 50 ps près.

Modulation des signaux électriques

Ce montage complexe (représenté sur la figure 6.3) nécessite une alimentation soignée pour moduler les différents signaux : la tension créneau appliquée au LCQ, le signal TTL du commutateur RF, et la tension créneau appliquée à l'antenne photoconductrice. On utilise un générateur de fonction « GF 467 AF » pour alimenter l'antenne avec une tension créneau de 4 V de rapport cyclique 50 % et de fréquence 20 kHz. Le signal TTL de ce générateur sert à déclencher le générateur « AFG 3021 B », ainsi qu'à déclencher le générateur d'impulsions alimentant le laser. Le générateur « AFG 3021 B » est utilisé en mode salve pour fournir créneau de tension de 4 V, de rapport cyclique 25 % et de fréquence 10 kHz utilisé comme entrée TTL sur le commutateur RF. Le laser à cascade quantique est modulé à 10 kHz avec un rapport cyclique de 25 % à l'aide du générateur d'impulsions. Le signal TTL de ce générateur sert de référence à la détection synchrone. La figure 6.3 met en évidence les branchements nécessaires pour générer des impulsions RF correctement synchronisées avec les impulsions THz sur le schéma général d'une expérience de spectroscopie THz dans le domaine temporel. [1]

1. Pour pouvoir observer l'amplification des ondes THz traversant la cavité du laser en faisant plusieurs passages à travers l'échantillon pendant 1 à 2 ns nous avons besoin de couvrir une distance importante avec la ligne à retard. Pour mesurer l'évolution d'un champ THz sur 2 ns, les miroirs de la ligne à retard doivent parcourir une distance de 30 cm. Nous avons utilisé deux lignes à retard en série ce qui nous a permis d'effectuer

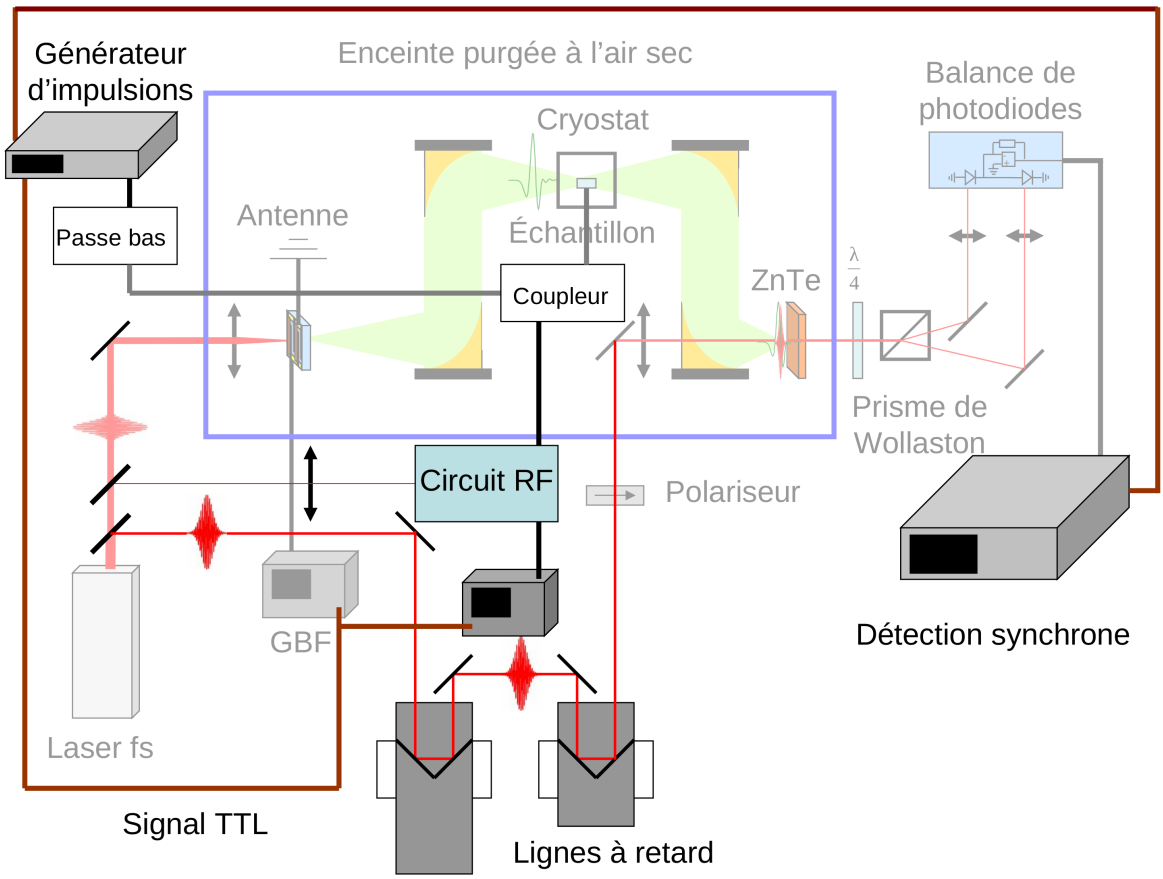


FIGURE 6.3: Représentation schématique du dispositif expérimental permettant de mesurer l'émission d'un laser à cascade quantique.

Échantillon utilisé

Dans cette expérience nous avons utilisé le laser ART 217 émettant à 2.1 THz (voir figure 3.6 du chapitre 3 pour une structure de bande). Cet échantillon ne présente pas le meilleur gain, mais il est plus simple à étudier en raison de sa fréquence d'émission voisine du maximum du spectre de l'antenne photoconductrice utilisée (ce maximum se situant à 1.5 THz). D'autre part, cet échantillon présente un courant seuil faible ce qui permet d'atteindre plus facilement le régime laser avec des impulsions RF de moindre amplitude. Un ruban laser ayant une cavité longue de 2 mm a été utilisé.

des mesures de champs THz sur des durées de 2.2 ns. Il est à noter que contrairement aux expériences présentées aux chapitres précédents, ces lignes à retard sont installées sur le trajet du faisceau NIR utilisé pour la détection.

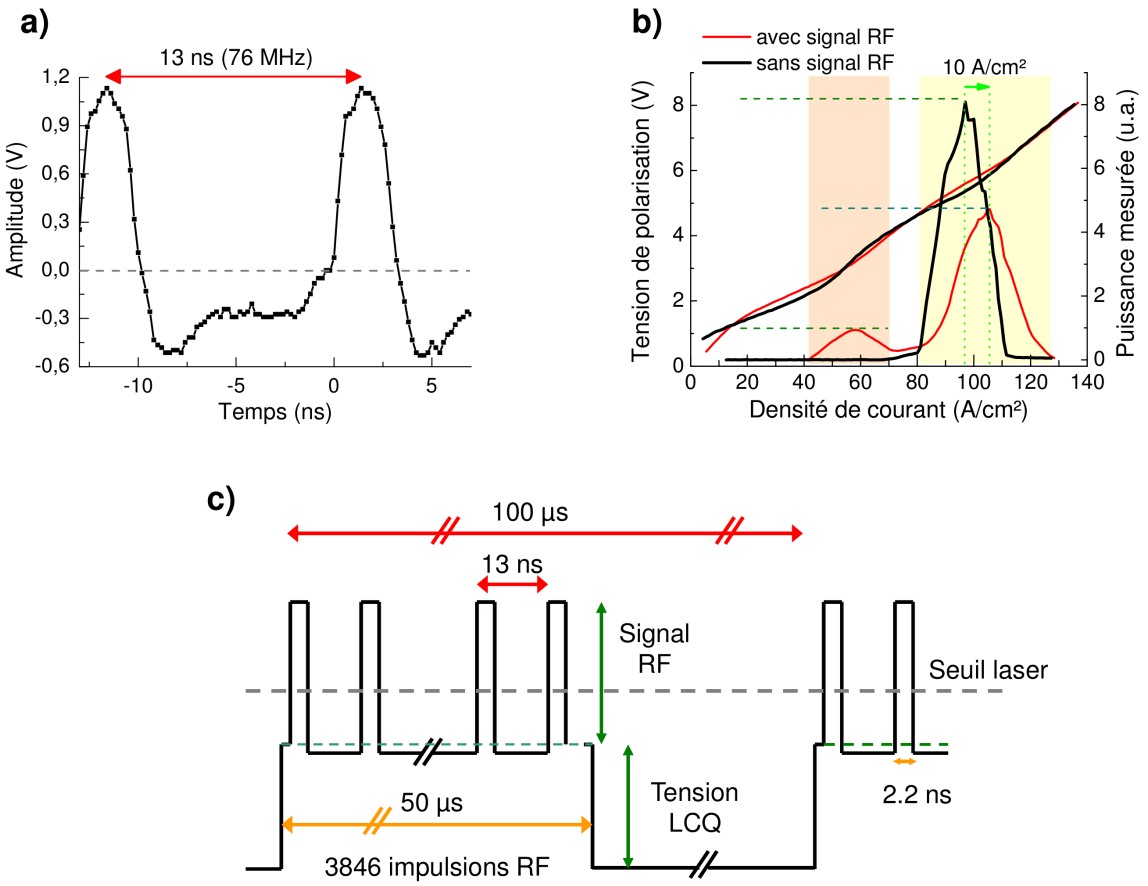


FIGURE 6.4: a) Forme des signaux RF appliqués au LCQ. b) Caractéristiques courant-tension et de puissance lumineuse du laser à cascade quantique, soumis à un signal RF (courbe rouge), et non soumis à un signal RF (courbe noire). c) Représentation schématique des impulsions RF combinées aux tensions électriques appliquées au LCQ sur une période.

6.3 Expériences d'amorçage d'un LCQ par des impulsions THz externes

L'amorçage du LCQ par une impulsion THz externe nécessite de nombreux réglages : optimisation de la phase du signal RF, optimisation de l'amplitude du signal RF, alignement des lignes à retard, modulation des signaux électriques etc. Nous commençons cette série d'expériences par une caractéristique courant-tension et de puissance lumineuse émise dans cette nouvelle configuration expérimentale pour vérifier que le système de polarisation du laser fonctionne correctement mais aussi afin d'identifier la tension créneau à appliquer pour obtenir une émission laser maximale avec l'impulsion RF. Nous mesurons ensuite le champ THz traversant le LCQ après plusieurs passages dans la cavité de l'échantillon.

6.3.1 Caractéristique LJV

Après avoir optimisé le signal RF, on commence par vérifier son effet sur la caractéristique de puissance lumineuse du laser à cascade quantique en effectuant des mesures LJV (4.2.2). La figure 6.4 a), représente les courbes densité de courant-tension et les courbes de puissance lumineuse émise avec (courbe rouge) et sans (courbe noire) signal RF appliqué au LCQ. Lorsqu'un signal RF est appliqué au LCQ, on distingue deux régimes d'émission laser différents.

Le premier régime, représenté sur fond rose, correspond à des densités de courant appliquées au LCQ sous le seuil, comprises entre 38 A/cm^2 et 70 A/cm^2. C'est alors le signal RF qui porte le laser au-dessus du seuil, et permet même de désaligner le LCQ pour une densité de courant continue appliquée de 70 A/cm^2 pour laquelle la puissance émise revient à 0. Comme on peut le voir sur la figure 6.4 b), l'impulsion RF décale le seuil du laser et permet d'injecter 40 A/cm^2 supplémentaires dans le LCQ. La figure 6.4 c) représente les impulsions RF combinées à la tension appliquée au LCQ par le générateur d'impulsion sur une période (100 μs). Les impulsions RF ajoutent une tension positive au LCQ d'une durée de 3.2 ns toutes les 13 ns. En prenant en compte les temps de montée et de descente du signal RF, chaque impulsion RF polarise le LCQ pendant 2 ns environ. Sur une période, le LCQ est polarisé pendant 50 μs. Les impulsions RF augmentent la tension appliquée au laser pendant une durée totale de 7.7 μs sur ces 50 μs. La durée de l'émission laser étant liée à la durée de l'impulsion RF (7.7 μs contre 50 μs sur une période), ce premier régime se manifeste par une puissance lumineuse mesurée 8.6 fois plus faible qu'en l'absence de signal RF appliqué. Ce facteur est proche du rapport 6.5 entre la durée des impulsions RF et de la durée de la tension de polarisation appliquée au laser. L'écart entre les deux rapports peut s'expliquer par l'incertitude sur l'estimation du temps de montée et de descente du signal RF, qui tend à diminuer la durée effective de ces impulsions.

Le deuxième régime, représenté sur fond jaune, correspond au cas où le laser est polarisé au-dessus du seuil, et reçoit une tension RF supplémentaire d'une durée de 2 ns toutes les 13 ns. Sur la figure 6.4 a) on remarque que le signal RF applique une tension négative au LCQ pendant 9 ns entre deux impulsions. Ceci a pour effet de diminuer la valeur de la tension créneau de fréquence 10 kHz appliquée au laser (cf figure 6.4 c)), ce qui se manifeste par un décalage de 10 A/cm^2 du maximum d'émission de la caractéristique LJ en présence de signal RF (courbe rouge sur la figure 6.4 b)) par rapport à la caractéristique en l'absence de signal RF (courbe noire sur la figure 6.4 b)). La puissance lumineuse émise dans ce second régime est plus faible qu'en l'absence de signal RF. Ceci s'explique par le fait que l'impulsion RF est suffisamment intense pour porter le laser au-delà de la polarisation qui désaligne le LCQ. Ainsi, le laser est

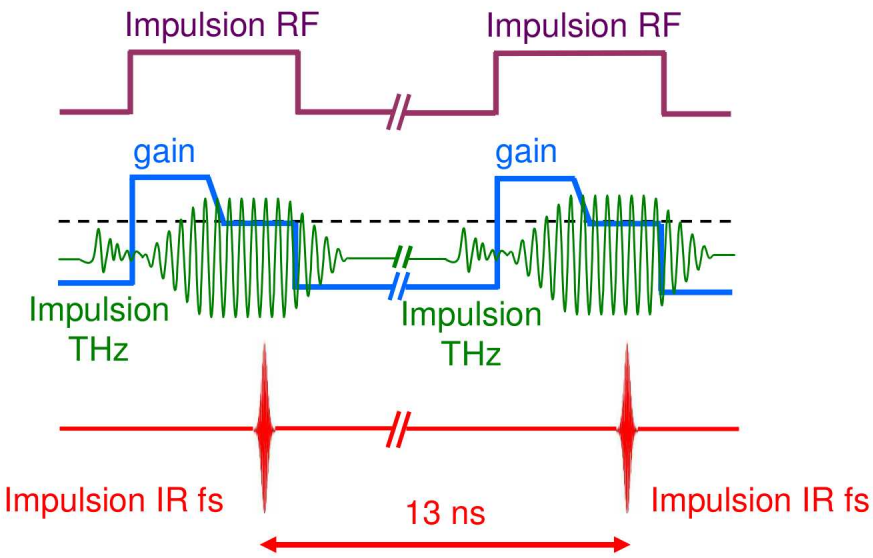


FIGURE 6.5: Schéma illustrant l'arrivée de l'onde THz dans l'échantillon par rapport à l'instant d'application du signal RF au laser à cascade quantique.

désaligné pendant que l'impulsion RF de 2 ns est appliquée (soit sur une durée totale de 7.7 μs sur une période). Par conséquent, ce second régime se manifeste par une puissance lumineuse plus grande que dans le régime précédent (courbe rouge sur fond rose) mais plus petite que dans le cas où aucune impulsion RF n'est ajoutée au créneau de tension servant à polariser le LCQ (courbe noire). Le rapport entre les maxima de puissance émise entre les deux courbes est de 0.58, ce qui est proche du ratio de 0.69 entre la durée du régime pendant lequel les impulsions RF appliquent une tension négative au LCQ (9 ns) et la périodicité des impulsions RF (13 ns).

6.3.2 Évolution du champ THz transmis par l'échantillon

Réglage de la phase du signal RF

La première étape de l'étude de l'évolution du champ THz transmis par le laser à cascade passe par le réglage de la phase du signal RF en ajustant la longueur de câble SMA utilisée.[2]. Le

2. Le chemin optique de l'impulsion NIR puis THz injectée dans l'échantillon laser est de 180 cm, correspondant à un temps de propagation de 6 ns. Le trajet parcouru par le signal RF présente des éléments fixes : les connecteurs, les composants électroniques, le câblage du cryostat. Le temps de parcours dans ces éléments a été mesuré et vaut environ 10 ns. Il n'est donc pas possible d'utiliser la même impulsion NIR fs pour générer le signal RF et l'impulsion THz. Par contre, comme les impulsions NIR du laser femtoseconde sont très régulières, on peut utiliser une impulsion qui précède ou suit celle servant à générer le champ THz incident. Il y a un retard de 13 ns entre impulsions NIR fs successives. Nous avons utilisé une impulsion retardée de 26 ns par rapport à celle servant à

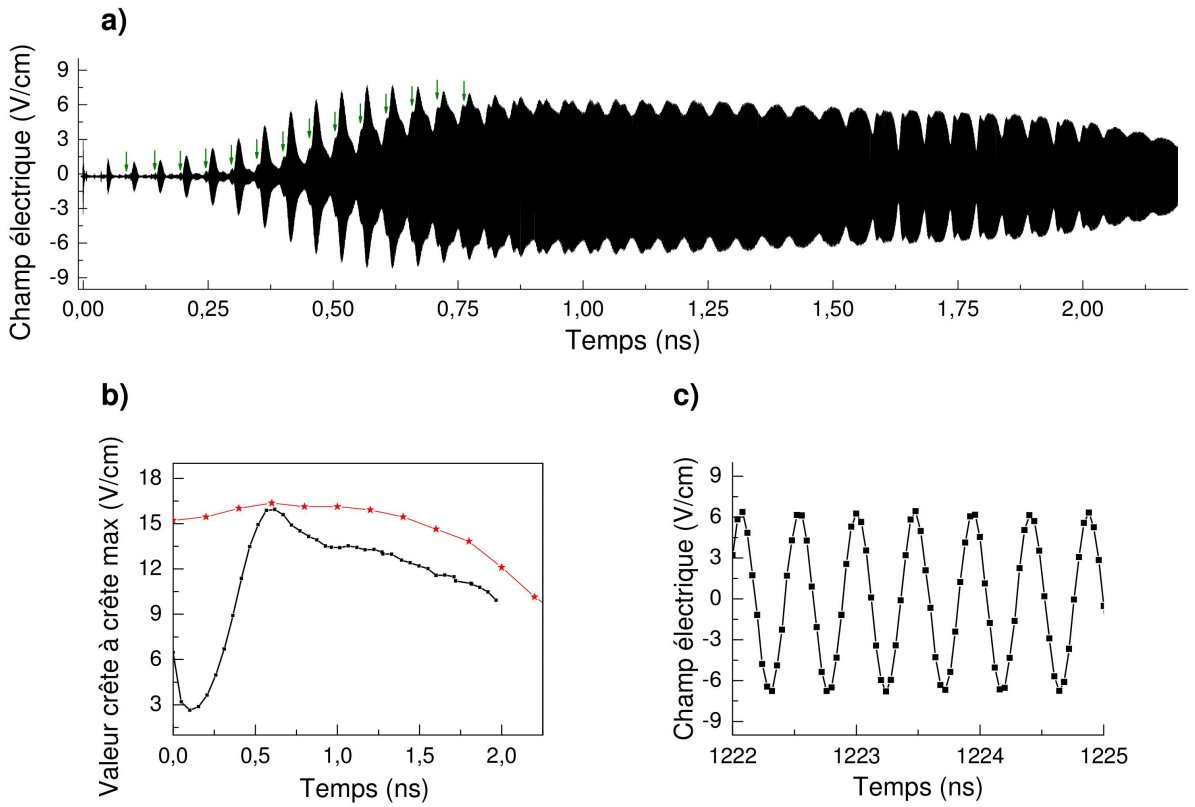


FIGURE 6.6: a) Champ électrique THz mesuré en sortie du laser à cascade quantique. Les flèches vertes indiquent la position d'un écho THz dans l'antenne photoconductrice, qui est amplifié en même temps que l'impulsion principale. b) Courbe noire : évolution de la valeur crête-à-crête des impulsions THz effectuant plusieurs passages par le LCQ (enveloppe du champ THz affiché en a)). Courbe rouge : allure du signal RF appliqué au LCQ. c) Champ THz quasi-monochromatique mesuré aux temps longs.

signal RF est appliqué au laser à cascade après le couplage de l'impulsion THz dans l'échantillon (cf figure 6.5).

Amplification THz

Lors de cette série de mesures nous avons utilisé un signal RF d'une durée de 2 ns (cf courbe rouge sur la figure 6.6 b) ou encore courbe noire de la figure 6.10) pour polariser le LCQ. Le champ THz transmis sur une durée de 2.2 ns est représenté en noir sur la figure 6.6 a). Le champ THz transmis par l'échantillon laser augmente rapidement en amplitude après plusieurs tours dans la cavité. Le maximum est atteint pour 23 passages à travers le ruban laser et correspond à un champ THz de 7.9 V/cm. Cette amplification dure au total 600 ps, puis l'amplitude du champ THz diminue progressivement. Au-delà de 800 ps après le premier passage dans la cavité

générer le THz dans l'antenne pour créer le signal RF.

du laser, le champ THz est quasi-monochromatique et son amplitude reste à peu près constante autour de 6.4 V/cm (cf figure 6.6 c)). La figure 6.6 b) représente l'évolution de l'enveloppe du signal THz transmis par le LCQ. La décroissance progressive du champ THz peut être attribuée à la forme particulière du signal RF appliqué au laser (courbe rouge sur la figure 6.6 b)).

Sur la figure 6.6 a), on remarque qu'un écho issu de l'antenne photoconductrice est amplifié en même temps que l'impulsion THz principale. Cet écho est indiqué par des flèches vertes sur la figure 6.6 a). Il est retardé par rapport à l'impulsion principale de 35 ps environ et a une amplitude initiale de 0.41 V/cm, soit 66 fois plus petite que celle de l'impulsion principale. Dans les premières centaines de ps du champ THz transmis, l'impulsion principale ainsi que l'écho ont un spectre large. L'espacement de 46 ps entre deux impulsions successives (correspondant à un tour complet dans la cavité de l'échantillon) est suffisamment grand pour pouvoir distinguer les impulsions transmises. À mesure que le nombre de passages à travers la cavité du laser augmente, les impulsions s'affinent dans le domaine spectral et s'étalent dans le domaine temporel, ce qui provoque un recouvrement de l'impulsion principale et de son écho.

Le champ THz mesuré dans cette expérience est considérable, ce qui en fait une source de lumière THz puissante utilisable dans des expériences de spectroscopie. Le fait de détecter une onde quasi-monochromatique dont l'amplitude reste constante sur une longue durée nous indique que l'amorçage du LCQ et donc le contrôle de sa phase a été obtenu.

6.4 Expériences de saturation du champ THz

Nous présentons dans cette partie deux expériences ayant pour but de déterminer le seuil de saturation du champ laser mesuré dans le LCQ amorcé et de connaître l'amplitude THz atteinte par le LCQ opérant sans amorçage. Nous donnons ainsi une preuve supplémentaire du fait que notre montage permet d'amorcer un LCQ. Dans un premier temps, nous avons fait varier l'amplitude de l'impulsion THz générée par l'antenne pour nous assurer qu'il y a une saturation du champ transmis par le laser. Dans un deuxième temps, nous avons mesuré la puissance lumineuse émise par le LCQ avec un détecteur pyroélectrique, ce qui nous a permis de connaître l'intensité émise par le laser et en déduire la valeur de l'amplitude du champ THz correspondant. Nous comparons ces résultats aux données recueillies dans l'expérience précédente d'amorçage du laser.

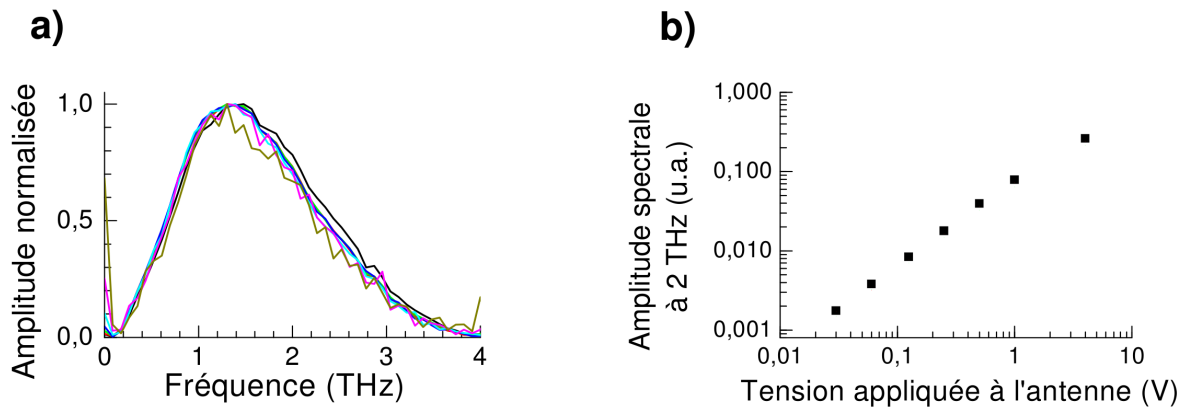


FIGURE 6.7: a) Spectres normalisés des champs THz générés par l'antenne photoconductrice soumise à différentes tensions de polarisation entre 30 mV et 4 V. b) Évolution de l'amplitude spectrale à 2.14 THz de l'onde THz issue de l'antenne en fonction de la tension de polarisation appliquée à cette dernière.

6.4.1 Évolution du champ THz transmis en fonction de l'amplitude de l'impulsion THz externe

Seuil de saturation

Nous avons effectué des mesures de transmission pour 7 valeurs différentes de l'amplitude THz du champ émis par l'antenne. Comme nous l'avons décrit dans le chapitre 2, l'amplitude du champ THz rayonné par l'antenne photoconductrice est proportionnelle à la tension de polarisation appliquée à cette dernière. La figure 6.7 b) en donne une preuve par l'expérience. Nous avons fait varier l'amplitude de la tension appliquée à l'antenne entre 30 mV et 4 V. Nous nous sommes également assuré du fait que le spectre du champ émis par l'antenne n'est pas modifié, comme en témoigne la figure 6.7 a), où les spectres normalisés du champ émis par l'antenne pour chaque tension appliquée sont représentés.

Lorsque l'amplitude de l'onde THz externe couplée dans l'échantillon diminue, la durée de l'amplification jusqu'à la valeur de saturation dans la cavité du LCQ augmente. Ceci se traduit par un décalage vers les temps longs du maximum de l'amplification comme nous pouvons le constater sur la figure 6.8 a). Pour être certain d'observer les données dans une fenêtre temporelle dans laquelle le champ THz est maximal, nous avons étudié l'évolution de la valeur crête à crête et l'écart quadratique moyen de l'impulsion THz effectuant 27 passages par la cavité. Comme nous pouvons le constater sur la figure 6.8 b), la valeur crête à crête maximale du champ THz pour l'impulsion effectuant 27 passages par la cavité sature à partir d'une tension de 0.25 V appliquée à l'antenne. Ceci signifie que l'amplitude de l'onde THz couplée dans l'échantillon est

alors supérieure ou égale à l'amplitude du champ de luminescence dû à l'émission spontanée dans la cavité du laser. Pour des tensions supérieures à 0.25 V appliquées à l'antenne photoconductrice, le laser est amorcé par l'impulsion issue de l'antenne. Pour une tension appliquée à l'antenne photoconductrice inférieure à 0.25 V, l'onde THz émise par le LCQ acquiert la phase du champ de luminescence issu de l'émission spontanée, qui est amplifié jusqu'à atteindre le champ de saturation du laser.

Calcul du seuil de saturation

Il est possible d'estimer l'amplitude d'une composante spécifique du champ issu de l'émission spontanée dans le laser, en supposant que la densité d'énergie électromagnétique dans le LCQ : $\frac{1}{2}\epsilon_0\epsilon_r E_{\text{spont}}^2$ est égale à l'énergie par unité de volume d'un photon d'énergie $h\nu$. Ceci permet de déduire la formule suivante pour l'amplitude du champ THz lié à l'émission spontanée à 2.1 THz :

$$E_{\text{spont}} = \sqrt{\frac{2h\nu}{\epsilon_0\epsilon_r V}} \tag{6.1}$$

où ν désigne la fréquence de l'onde, ϵ_0 la permittivité du vide, ϵ_r la permittivé relative du milieu et V le volume de la cavité dans laquelle se situe le mode optique. On trouve par cette formule que le champ à 2.1 THz issu de l'émission spontanée a une amplitude de 5.1 mV/cm. Nous comparons maintenant cette valeur au champ électrique mesuré pour une tension appliquée à l'antenne photoconductrice de 0.25 V, correspondant à un champ THz tout juste supérieur au seuil de saturation.

L'amplitude du champ THz couplé dans le ruban laser pour une tension appliquée à l'antenne photoconductrice de 0.25 V correspond à 0.34 V/cm. Seules les composantes fréquentielles voisines de 2.1 THz, pour lesquelles le LCQ présente du gain, interviennent dans le processus d'amorçage du laser. Une transformée de Fourier du champ représenté sur la figure 6.6 a) permet de mesurer une largeur à mi-hauteur pour la raie du LCQ égale à 20 GHz. Une raie lorentzienne de largeur à mi-hateur 20 GHz ayant une amplitude spectrale à 2.1 THz égale à celle délivrée par l'antenne photoconductrice représente 1.2 % de l'énergie totale de l'onde THz générée par l'antenne. Ainsi, l'amplitude du champ THz utilisé pour amorcer le laser est d'environ 4.1 mV/cm, ce qui est proche du champ issu de l'émission spontanée présent dans la cavité du LCQ calculé au paragraphe précédent. En tenant compte des sources d'erreur dans la mesure de l'amplitude du champ THz (pertes au niveau des fenêtres du cryostat, incertitudes sur l'alignement des faisceaux NIR et THz *etc*), on peut supposer que cette amplitude THz est légèrement plus élevée, et égale ou supérieure à la valeur de 5.1 mV/cm calculée précédemment.

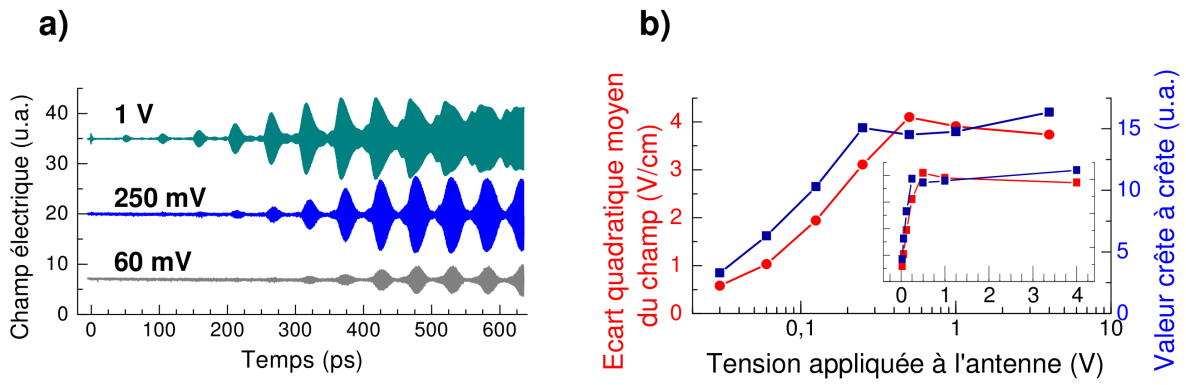


FIGURE 6.8: a) Champs THz transmis par l'échantillon laser soumis à un signal RF pour différentes amplitudes de l'impulsion THz générée par l'antenne. b) Évolution de l'écart quadratique moyen du champ THz transmis par l'échantillon et de la valeur crête à crête de ce champ pour différentes tensions de polarisation appliquées à l'antenne photoconductrice.

Amplification de la composante spectrale à 2.14 THz

Comme nous venons de le voir, le champ THz amplifié dans le laser sature pour des impulsions THz injectées ayant une amplitude à 2.1 THz supérieure à 5.1 mV/cm. Pour cette raison, le facteur d'amplification est plus grand sous le seuil de saturation qu'au-dessus de ce dernier. Nous avons étudié ce facteur d'amplification en fonction de la tension appliquée à l'antenne (c'est-à-dire en fonction de l'amplitude du champ THz couplé dans le ruban laser). Il est possible d'estimer les pertes dues au couplage partiel du rayonnement THz dans le ruban laser en effectuant une comparaison entre l'amplitude spectrale du champ THz transmis avec et sans échantillon. Sur la figure 6.9 a), les facteurs d'amplification de la puissance THz en fonction de la tension appliquée à l'antenne photoconductrice sans tenir compte des pertes dues au couplage dans le LCQ (courbe noire) et en tenant compte de ces pertes (courbe verte), sont représentées. On constate que l'amplification est la plus forte pour de faibles valeurs de tensions appliquées, c'est-à-dire de faibles champs THz. La figure 6.9 b) et 6.9 c) représente sur une échelle logarithmique le spectre de l'antenne photoconductrice (en rouge) et de l'impulsion THz effectuant 27 passages par l'échantillon (en bleu et beige). Cette figure met en évidence l'efficacité de notre système pour générer du rayonnement intense à des fréquences spécifiques à partir de faibles champs THz couplés dans le LCQ.

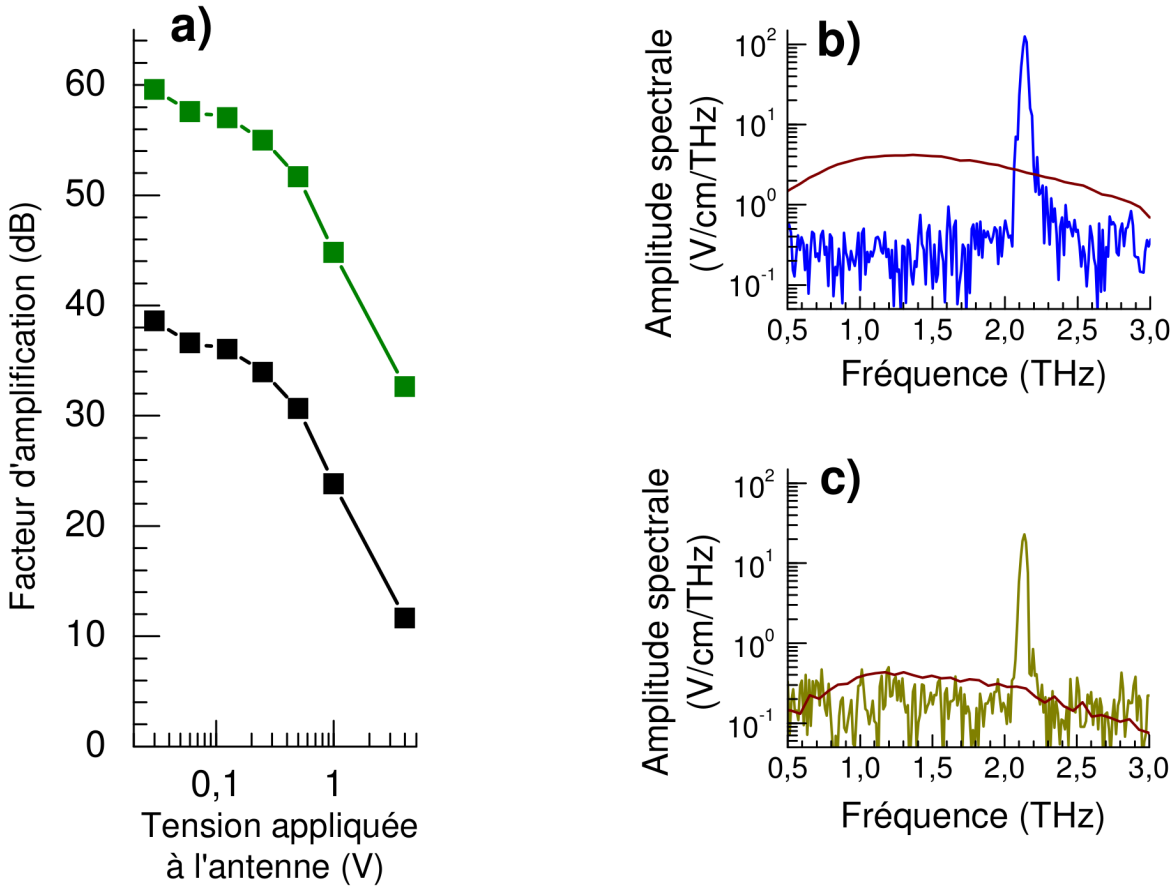


FIGURE 6.9: a) Facteur d'amplification de la puissance de l'onde THz couplée dans le ruban laser en fonction de la tension de polarisation appliquée à l'antenne photoconductrice servant à la générer. b) Spectres de l'impulsion générée par l'antenne sans passer par le LCQ (courbe rouge) et après amplification dans l'échantillon soumis aux impulsions RF, pour une tension de polarisation de 0.25 V appliquée à l'antenne. c) Spectres de l'impulsion générée par l'antenne sans passer par le LCQ (courbe rouge) et après amplification dans l'échantillon laser soumis aux impulsions RF, pour une tension de polarisation de 30 mV appliquée à l'antenne.

6.4.2 Mesure de la puissance THz émise par le laser

En utilisant un détecteur pyroélectrique correctement calibré, nous avons mesuré la puissance THz P_{QCL} émise par l'échantillon. Nous avons aussi effectué une mesure de la puissance P_{ant} émise par l'antenne avec le même détecteur pyroélectrique. Le rapport des racines carrés des deux puissances est égal au rapport des écarts quadratiques moyens des champs THz E_{QCL} et

E_{ant} associés, comme indiqué sur la formule ci-dessous[3] :

$$\frac{\sqrt{P_{\text{QCL}}}}{\sqrt{P_{\text{ant}}}} = \frac{\sqrt{\langle E^2_{\text{QCL}}(t)\rangle}}{\sqrt{\frac{1}{T}\int_{-\frac{T}{2}}^{\frac{T}{2}} E^2_{\text{ant}}(t)\mathrm{d}t}} \tag{6.2}$$

On mesure le champ THz issu de l'antenne dans les mêmes conditions mais avec la détection électro-optique. Compte tenu des problèmes de réponse fréquentielle des détecteurs (accord de phase dans le cristal de ZnTe, sensibilité du détecteur pyroélectrique *etc.*) et de la focalisation du faisceau THz sur les détecteurs qui n'est pas parfaite, ces mesures ne donnent accès qu'à une valeur approchée du champ électrique.

Nous avons ainsi accès à une estimation du champ THz émis par le LCQ. Cette formule nous fournit une amplitude de 8.1 V/cm pour le rayonnement cohérent THz issu du LCQ en régime stationnaire, ce qui est en accord avec l'amplitude de 6.5 V/cm mesurée sur la courbe représentée sur la figure 6.6 a).

Cet accord entre les deux mesures de l'amplitude THz effectuées en sortie du LCQ nous fournit une indication supplémentaire de la réussite de l'amorçage, qui nous assure un contrôle de la phase du champ THz émis par un laser à cascade quantique.

6.5 Influence de la forme de l'impulsion RF sur le champs THz mesuré

Nous avons confirmé que notre montage permet d'amorcer un laser à cascade quantique pour en mesurer l'émission cohérente dans des expériences de spectroscopie THz. Avant d'étudier les propriétés du laser avec ce nouveau dispositif expérimental nous discutons de l'influence de la forme de l'impulsion RF sur le champ THz émis par le LCQ.

6.5.1 Champs THz mesuré avec une impulsion RF régulière appliquée au LCQ

Sur la figure 6.10, nous voyons que la " mesa " de l'impulsion RF n'est pas régulière pour des impulsions RF intenses (courbe noire). Ainsi, il se peut que la forme particulière du champ THz transmis observée sur 2.2 ns soit due à la forme de l'impulsion RF. En effet, pour une mesa irrégulière, la tension de polarisation appliquée au laser change pendant que le champ THz transite par la cavité, ce qui pourrait expliquer la croissance suivie d'une décroissance du champ THz transmis. Nous avons donc effectué des mesures de transmission en appliquant un signal RF moins intense, mais plus régulier (l'impulsion RF de 1 ns de durée représentée par une courbe rouge sur la figure 6.10). Sur la figure 6.11 b) représentant l'enveloppe du champ THz transmis,

3. Le paramètre T représente la période de 100 μs des impulsions électriques servant à polariser le LCQ.

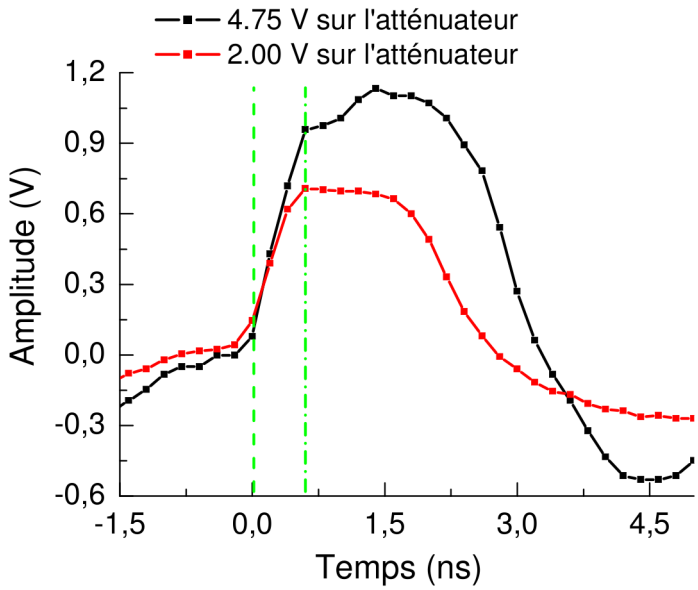


FIGURE 6.10: Impulsions RF appliquées à l'échantillon pour le porter au-dessus du seuil. En noir, l'impulsion longue mais dont la mesa est irrégulière. En rouge, l'impulsion courte mais dont l'allure est plus régulière. Les traits verts en pointillés délimitent la zone du front montant des impulsions RF.

on distingue 4 phases dans l'évolution de l'onde électromagnétique se propageant dans le LCQ. La première phase se compose d'une amplification d'une durée de 550 ps. La deuxième consiste en une diminution de l'amplitude du champ THz jusqu'à atteindre une valeur stable. La troisième, correspondant à une émission laser d'un LCQ amorcé, ne connait qu'une très faible décroissance de l'amplitude THz entre 750 ps et 1.3 ns après le premier passage par la cavité de l'échantillon. La quatrième phase correspond au déclin progressif du champ THz une fois que l'impulsion RF cesse de polariser le LCQ au-dessus du seuil au-delà de 1.3 ns suivant le premier passage de l'onde THz par l'échantillon. Le déclin est dû au fait que le LCQ est alors un milieu absorbant pour l'onde THz.

Le signal enveloppe de la figure 6.11 b), représenté en noir vis à vis du signal RF utilisé pour porter le LCQ au-dessus du seuil, permet de constater que la valeur crête à crête du champ THz issu du LCQ ne suit pas tout à fait les variations d'amplitude du signal RF. Ce même signal enveloppe a une forme similaire à celui de la figure 6.6 c). La valeur crête à crête élevée atteinte au bout de 500 ps sur ces deux signaux enveloppe (régime 1 sur la figure 6.11 b)) ne peut donc pas être attribuée à la forme du signal RF appliqué, et provient d'une amplification en régime non stationnaire, pendant lequel le gain dans le laser n'est pas bloqué aux pertes et permet une amplification au-delà de la valeur de saturation du champ laser. Nous pouvons estimer la durée

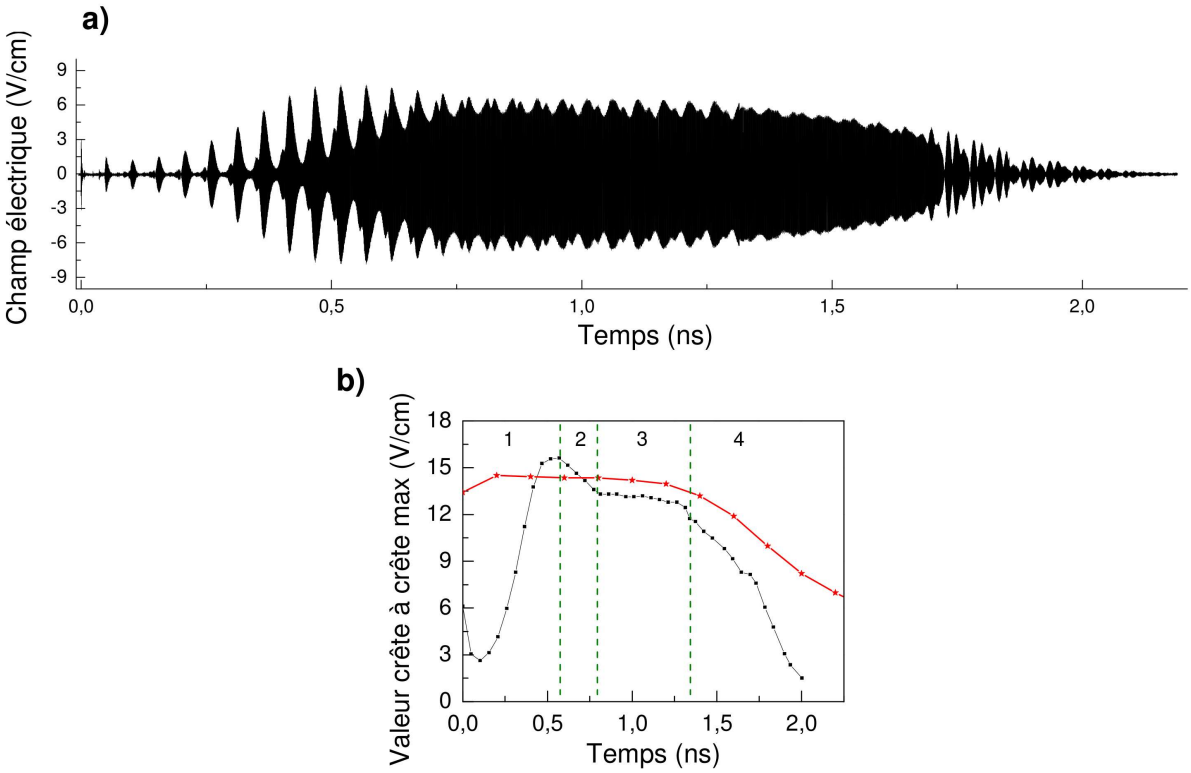


FIGURE 6.11: a) Champ électrique THz mesuré en sortie du laser à cascade quantique auquel on applique une impulsion RF de courte durée. b) Évolution de la valeur crête-à-crête des impulsions THz effectuant plusieurs passages par le LCQ (enveloppe du champ THz affiché en a)).

de ce régime à 500 ps, temps au-delà duquel la valeur crête à crête diminue jusqu'à atteindre une valeur stable dans le régime stationnaire dans lequel le gain est égal aux pertes.

6.5.2 Calcul de la durée du régime transitoire

Une onde dont l'amplitude intiale E_{init} dans la cavité du laser est égale au champ issu de l'émission spontanée (calculé dans la partie 6.4.1 comme étant égal, à 2.1 THz, à 5 mV/cm), subit une amplification avec un gain modal non saturé γ_{r} évalué à 17.58 cm^{-1} pour le laser ART 217 dans la partie (4.7) du chapitre 4, et des pertes totales α_{tot}, égales au gain saturé mesuré à 11.28 cm^{-1} dans le chapitre 4. L'évolution de l'amplitude de l'onde dans la cavité en régime transitoire vérifie la relation :

$$E_{\text{fin}} = E_{\text{init}} e^{\frac{l\gamma_{\text{r}}}{2}} e^{\frac{l\alpha_{\text{tot}}}{2}} \tag{6.3}$$

jusqu'à atteindre une valeur E_{fin} mesurée en sortie de la cavité à 7.9 V/cm (cf figure 6.6 a)). Sachant que la réflectivité de la facette de sortie est de 0.32 [85], le champ laser THz à l'intérieur

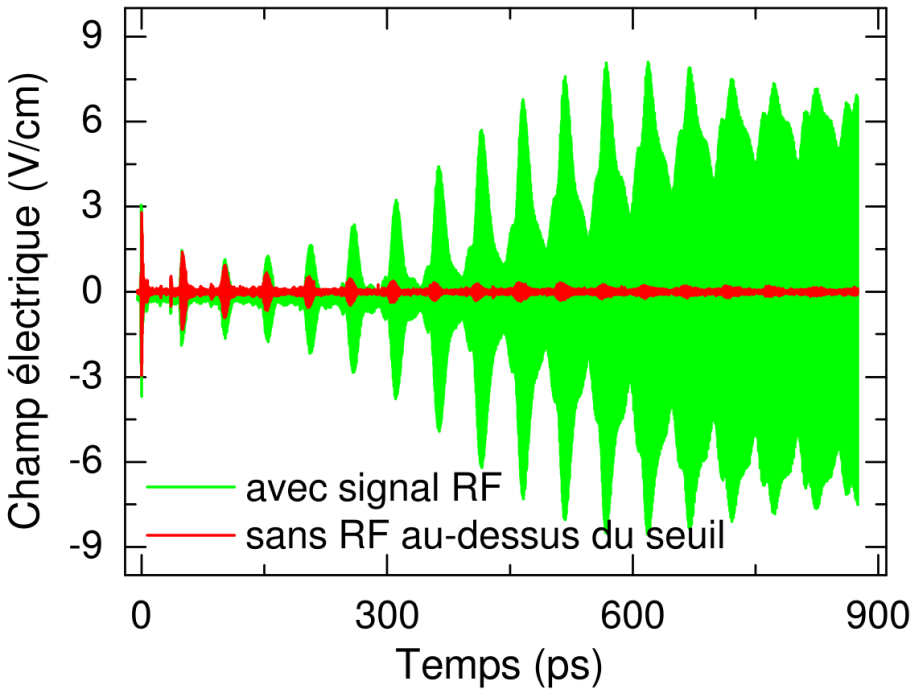


FIGURE 6.12: Champ électrique THz mesuré en sortie du LCQ polarisé sous le seuil et soumis à une impulsion RF (courbe verte) et avec le LCQ polarisé au-dessus du seuil en l'absence de signal RF (courbe rouge).

de la cavité vaut $\frac{7.9}{1-0.32} = 11.6$ V/cm. Ces données nous permettent d'estimer la distance l parcourue par l'onde dans l'échantillon pendant le régime transitoire, et le temps $\tau_{tr} = \frac{ln}{c_0}$ (avec $n = 3.6$ l'indice du LCQ) nécessaire pour parcourir cette distance dans le LCQ, égal à la durée du régime transitoire. Ceci nous permet d'estimer la durée du régime transitoire à 295 ps environ, en accord avec les 500 ps évaluées expérimentalement.

6.5.3 Comparaison à la transmission par un laser polarisé au-dessus du seuil

Nous avons mesuré sur une échelle de temps de 900 ps une impulsion THz traversant le laser lorsqu'il est polarisé au-dessus du seuil sans signal RF appliqué (cf figure 6.12). Comme nous l'avons déjà montré dans le chapitre précédent, l'amplitude de l'impulsion décroit à chaque tour de cavité. En effet, le gain dans l'échantillon est bloqué aux pertes et l'impulsion cède de l'énergie à chaque bord de cavité. L'impulsion s'affine dans le domaine spectral jusqu'à n'être composée que des fréquences qui présentent un gain non nul dans le laser. Au bout de 23 passages dans la cavité du laser, l'amplitude du champ THz transmis par le LCQ polarisé au-dessus du seuil vaut 0.23 V/cm contre 7.7 V/cm dans le cas du laser amorcé, soit une différence en amplitude

d'un facteur 33. La figure 6.12 permet de constater la différence considérable entre l'amplitude THz accessible en sortie d'un laser amorcé, et l'amplitude THz disponible via une amplification en régime stationnaire.

6.6 Évolution du spectre du champ THz transmis par l'échantillon

Il est intéressant de voir les informations que les transformées de Fourier des traces temporelles présentées dans la partie précédente peuvent nous apporter sur la dynamique du laser. En effectuant une acquisition longue de 2.2 ns nous avons accès à une résolution dans le domaine fréquentiel allant jusqu'à 381 MHz, contre 60 GHz dans les études précédentes (cf chapitre 4). Nous étudions d'abord des trains d'impulsions THz transmis après un nombre fixe de passages par la cavité, avant de prendre une transformée de Fourier de la trace temporelle dans son ensemble.

Spectres d'un train d'impulsions THz

Pour pouvoir observer les modes Fabry-Pérot du LCQ, nous effectuons dans cette partie des transformées de Fourier de trains d'impulsions transmis par l'échantillon. Les modes Fabry-Pérot de l'échantillon laser étudié, dont la cavité mesure L=2 mm en longueur et dont l'indice vaut n=3.6, sont espacés de $\Delta\nu = \frac{c_0}{2nL} = 20.8$ GHz.

Sur la figure 6.13 e) une représentation du découpage en quatre parties du champ THz étudié permet de voir la taille des fenêtres temporelles utilisées pour chacun des spectres représentés sur les figures 6.13 a), b), c) et d). On obtient une résolution spectrale de 1.5 GHz, suffisante pour distinguer les modes de cavité. Le spectre de la figure 6.13 a) correspond aux 500 premières ps de transmission de l'onde THz par la cavité du laser. On remarque que l'onde s'amplifie sur plusieurs modes de cavité, mais que le mode à 2.13 THz domine légèrement les autres. Les modes voisins de ce mode central (à 2.11 THz et 2.15 THz) ont une amplitude 0.6 fois plus petite. Les autres modes sont 3 à 4 fois plus petits en amplitude que le mode central.

La situation évolue en privilégiant deux modes de cavité une fois que le champ laser s'établit sur le deuxième train d'impulsions représenté sur la figure 6.13 b) : le mode central à 2.13 THz domine un second à 2.15 THz qui concentrent plus d'énergie que les autres modes. La dynamique des modes de cavité évolue ensuite en privilégiant trois modes sur le spectre du troisième train d'impulsions représenté sur la figure 6.13 c) : le mode central à 2.13 THz, qui domine et les deux modes voisins à 2.11 THz et 2.15 THz. Le spectre de la figure 6.13 d) correspond au quatrième train d'impulsions. L'énergie s'y répartit à nouveau sur un grand nombre de modes (5 modes ressortent nettement sur ce spectre, entre 2.09 THz et 2.17 THz).

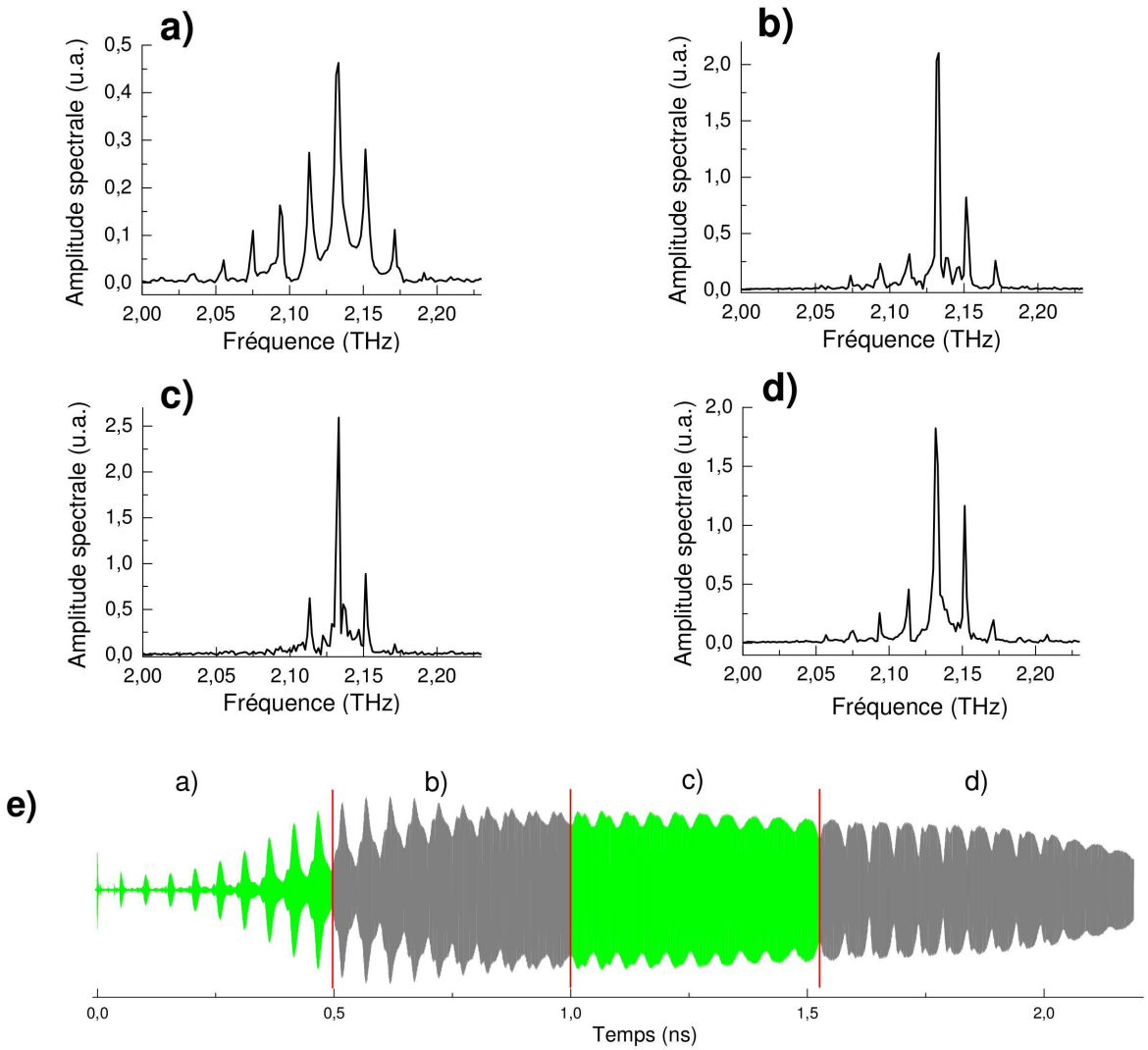


FIGURE 6.13: Spectres d'un train d'impulsions THz transmises par la cavité de l'échantillon. a) Spectre du train d'impulsions correspondant aux 500 premières ps de transmission THz par l'échantillon. b) Spectre du deuxième train d'impulsions transmis par l'échantillon. c) Spectre du troisième train d'impulsions transmis par l'échantillon. d) Spectre du quatrième train d'impulsions transmis par le laser. e) Représentation du découpage des différents trains d'impulsions sur l'onde THz mesurée entre 0 et 2.2 ns.

Cette dynamique des modes de cavité dans le laser peut se comprendre de plusieurs façons. Dans la phase d'amplification, le spectre de l'impulsion THz est encore large et d'amplitude importante aux fréquences voisines de 1.5 THz. La présence de nombreux modes notamment aux basses fréquences en-dessous de 2.13 THz est donc prévisible. D'autre part, l'impulsion RF appliquée au laser à cascade présente un temps de monté de 300 ps. Par conséquent, le laser à cascade quantique est polarisé à des tensions croissantes jusqu'à atteindre une tension fixe au

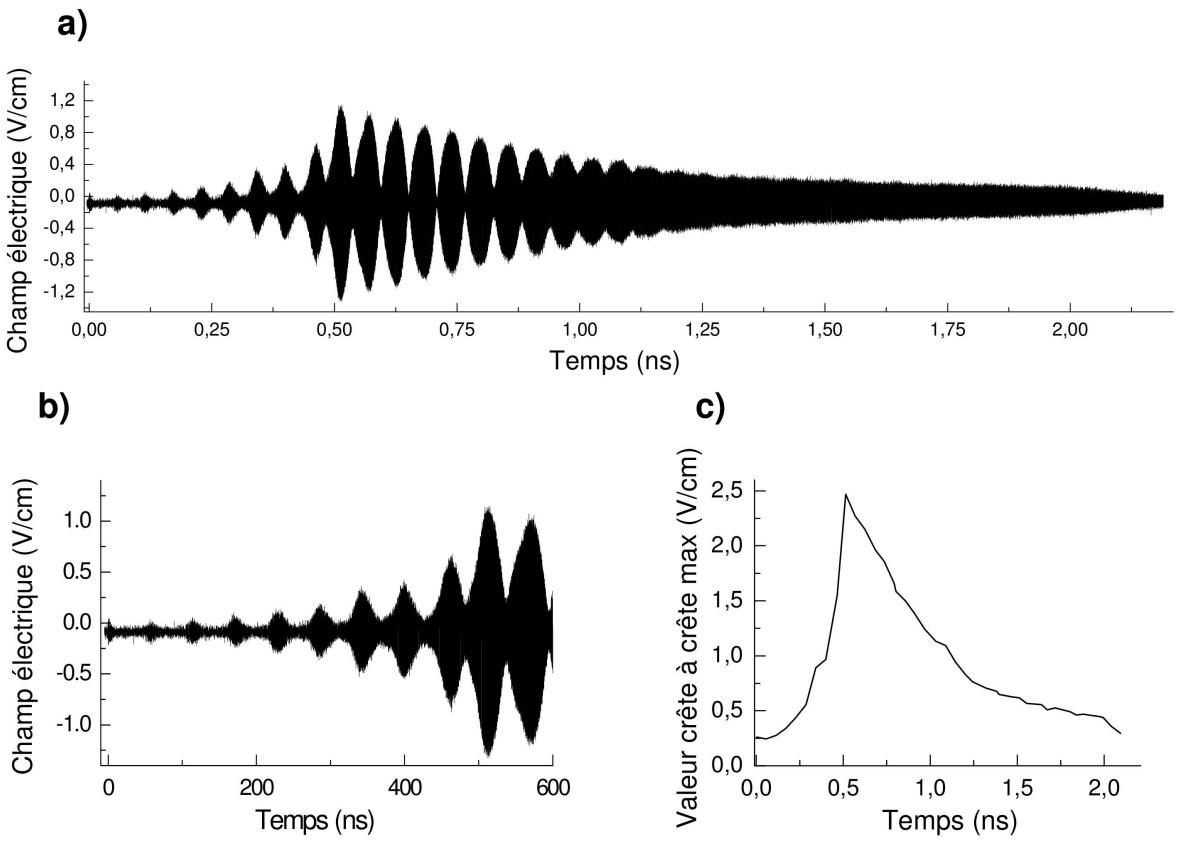


FIGURE 6.14: a) Champ électrique THz mesuré en sortie du laser à cascade quantique. b) Champ THz mesuré durant les 500 premières ps d'amplification de l'impulsion initiale. c) Évolution de la valeur crête-à-crête des impulsions THz effectuant plusieurs passages par le LCQ (enveloppe du champ THz affiché en a)).

bout de 300 ps. Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, les lasers " lié-continuum " ont un spectre du gain plus large aux faibles tensions de polarisation, ce qui peut contribuer à l'apparition d'un nombre plus important de modes de cavité sur la figure 6.13 a).

L'apparition d'un nombre de modes plus important sur la figure 6.13 d) peut s'expliquer par le fait que le signal RF cesse de polariser le LCQ au-dessus du seuil, ce qui a pour conséquence d'élargir la courbe de gain (cf conclusions du chapitre 4).

6.6.1 Amplification d'impulsions THz générées localement

En 2010, notre groupe a mis au point un procédé original de génération de rayonnement THz ne nécessitant pas le recours à des antennes photoconductrices [128]. Elle consiste a exploiter le même principe que celui utilisé dans les antennes, en utilisant un laser à cascade quantique en guise de substrat GaAs. La plupart des LCQ sont fabriqués à base de GaAs, et ces dispositifs

sont polarisés à des tensions élevées. Une excitation NIR fs focalisée sur une facette du LCQ permet de créer des paires électrons trous que le champ électrique appliqué au LCQ accélère. Le LCQ est alors le siège du même phénomène qu'une antenne photoconductrice, et les porteurs accélérés génèrent une onde THz, directement couplée dans la cavité d'un LCQ et ne présentant pas d'échos liés à la présence d'un substrat. Ce champ THz produit par illumination de la facette est cependant beaucoup plus faible en amplitude (230 mV/cm, ce qui correspond à une amplitude d'environ 2 mV/cm pour la composante spectrale à 2.1 THz), ce qui ne permet pas de l'utiliser pour amorcer l'émission laser. La figure 6.14 a)) représente un champ THz généré dans un LCQ et transmis par ce dernier alors qu'il est déclenché par des impulsions RF. L'amplification de cette impulsion THz est rapide mais atteint une valeur maximale de 1.3 V/cm, contre 7.9 V/cm dans le cas étudié précédemment. Sur la figure 6.14 c) représentant l'évolution de l'enveloppe du champ THz, on remarque une diminution progressive de l'amplitude de l'onde électromagnétique, plus rapide que sur la figure 6.6 b). Le champ laser acquiert alors la phase de l'émission spontanée. La mesure effectuée correspond à une amplification en régime non stationnaire (analogue à celle effectuée dans le chapitre précédent mais avec une tension générée électriquement et d'une durée plus grande) menée jusqu'à ce que le laser atteigne son état stationnaire, au bout de 500 ps, temps au-delà duquel l'onde THz décroit rapidement (cf figure 6.14 b)) comme nous le constatons sur la courbe rouge de la figure 6.12.

Spectres de l'impulsion THz générée localement

Pour étudier l'évolution des modes de cavité dans ce cas où le laser n'est pas amorcé par l'impulsion THz générée localement, nous analysons les spectres de trains d'impulsions correspondant au découpage du champ THz représenté sur la figure 6.15 e). Le spectre du premier train d'impulsions, correspondant dans le domaine temporel aux 550 premières ps du champ THz mesuré, comporte 5 modes de cavité, avec un mode dominant à 2.14 THz (cf figure 6.15 a)). Cette répartition de l'énergie sur plusieurs modes peut s'expliquer par les mêmes arguments que ceux fournis dans la partie précédente (spectre initialement large de l'onde THz couplée dans le laser, et variation de la tension appliquée au LCQ). Cependant, les spectres suivants font ressortir un décalage en fréquence du mode principal. L'essentiel de l'énergie de l'onde se répartit sur le mode voisin à 2.16 THz et non celui à 2.13 THz comme dans la partie précédente. Contrairement aux spectres étudiés dans la partie précédente, les dernières ps du champ THz mesuré ne font pas apparaître à nouveau plusieurs modes de cavité.

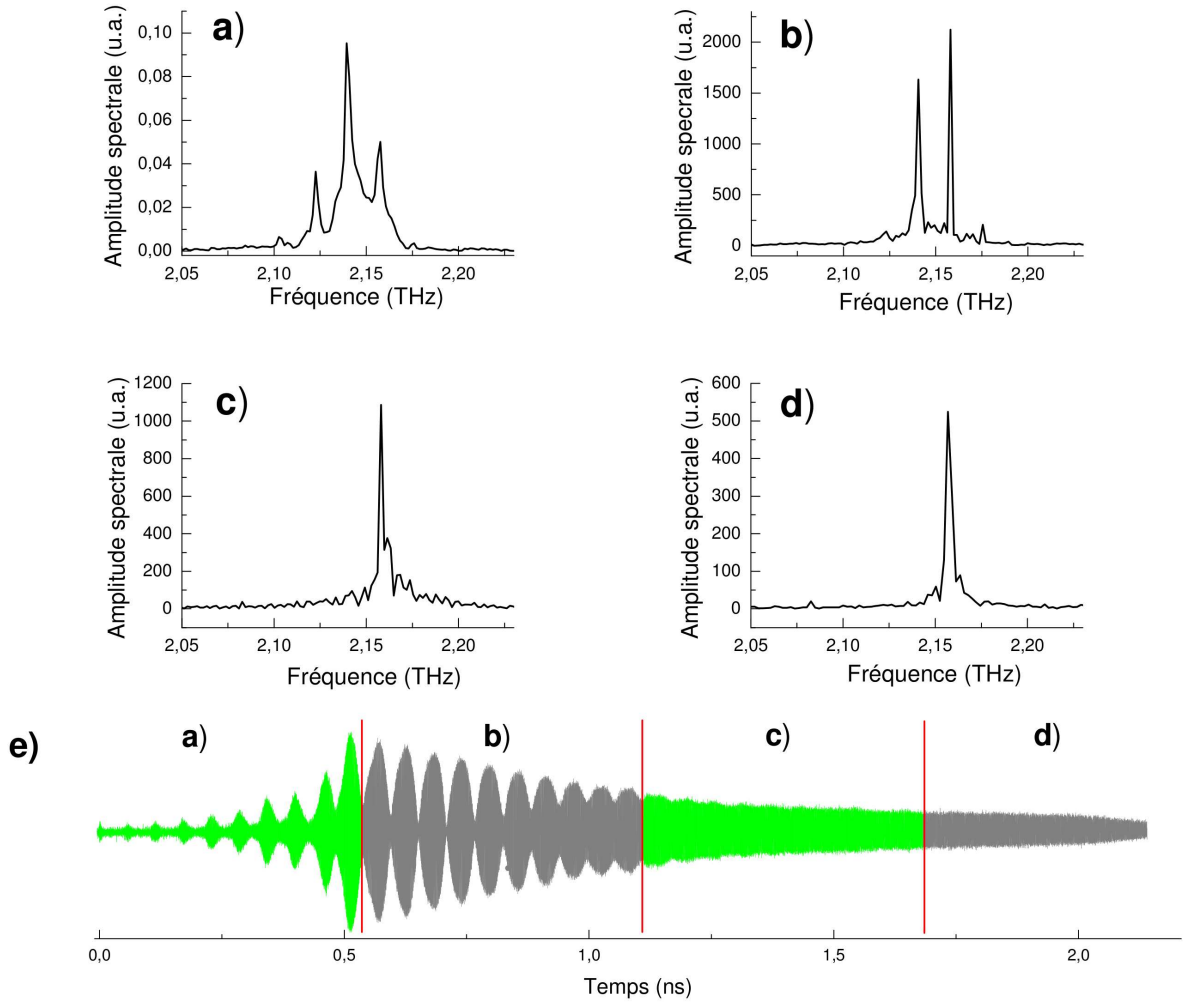


FIGURE 6.15: Spectres d'un train d'impulsions THz générées localement dans le laser soumis à des impulsions RF le polarisant au-dessus du seuil. a) Pour les dix premiers train d'impulsions, plusieurs modes de cavité sont discernables. b) Pour le deuxième train d'impulsions, le nombre de modes de cavité diminue et deux modes dominent les autres. c) Le troisième train d'impulsions présente un spectre essentiellement monomode. d) Le dernier train d'impulsions a un spectre monomode. e) Représentation du découpage des différents trains d'impulsions sur l'onde THz mesurée entre 0 et 2.2 ns.

Spectre du champ THz complet

La résolution spectrale de 381 MHz obtenue avec notre montage nous permet d'étudier avec une bonne précision l'espacement entre les modes de cavité. Le spectre de la figure 6.16 a) nous indique que les modes de cavité sont espacés de 19.45 GHz, ce qui est relativement proche des 20.8 GHz calculés pour un ruban laser de 2 mm de longueur avec un indice de n=3.6 pour le LCQ. À partir de la valeur expérimentale, on calcule un indice de n_1=3.86 pour le LCQ. La

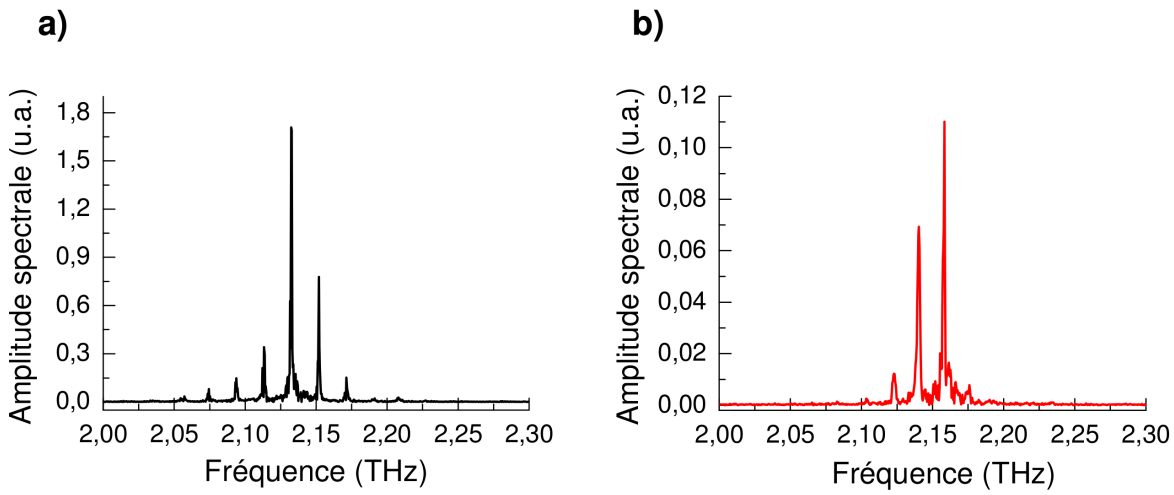


FIGURE 6.16: Spectres de la trace THz complète transmise par l'échantillon laser pendant 2.2 ns. a) Dans le cas de l'impulsion THz générée avec l'antenne photoconductrice. b) Dans le cas de l'impulsion THz générée localement par excitation optique au sein de l'échantillon.

différence entre l'indice théorique dans le LCQ et l'indice mesuré peut provenir de l'effet de l'Al présent dans la zone active sur l'indice moyen dans le LCQ (l'indice de 3.6 utilisé correspond à l'indice du GaAs) ; et de la dispersion dans le GaAs.

À titre de comparaison, nous avons également regardé le spectre du champ THz généré localement dans l'échantillon. Comme en témoigne la figure 6.16 b), on ne distingue que 5 modes de cavité contrairement à 9 pour le spectre de la figure 6.16 a). On remarque également que les modes de cavité sont espacés de 17.6 GHz contrairement à 19.45 GHz pour le cas précédent. Ceci provient probablement du changement d'indice induit par une élévation de la température dans l'échantillon lorsque ce dernier est éclairé par un faisceau NIR fs focalisé sur une facette. On calcule un indice n_2=4.26 avec un tel espacement entre les modes de cavité, soit une variation significative de $n_2 - n_1$=0.4. Du fait de cette forte variation d'indice, nous soupçonnons que l'application de l'impulsion NIR sur le LCQ modifie sa structure de bande.

6.7 Conclusions et perspectives

L'utilisation d'une impulsion THz externe de plus forte amplitude que l'émission spontanée, couplée dans la cavité d'un laser associée à une modulation RF du gain, a permis d'amorcer un LCQ et obtenir ainsi un contrôle de la phase du rayonnement THz émis et d'observer l'évolution du champ laser sur 2.2 ns, de sa formation à son déclin progressif en régime stationnaire. Nous avons validé l'expérience par des tests de saturation de l'amplification dans le LCQ. Nous avons

été en mesure de donner une estimation de la durée du régime transitoire grâce à l'application d'impulsions électriques longues de 2.2 ns permettant de voir le passage vers le régime stationnaire. Finalement, nous avons été en mesure d'observer l'évolution des modes de cavité dans le laser au cours de la formation du champ laser et une fois que ce dernier est établi.

La possibilité de mesurer l'émission cohérente d'un laser à cascade quantique par spectrosopie dans le domaine temporel présente des applications potentiellement intéressantes dans toutes les expériences qui nécessitent une puissance importante sur une bande spectrale étroite. On peut envisager des expériences d'optique THz non linéraire [120], dans tout système présentant des résonances fines dans le THz. D'autre part, la mesure du champ THz émis par un laser à cascade permet d'envisager d'étudier la dynamique du laser lui-même, par exemple en regardant plus en détail la dynamique des modes de cavité. Il serait par exemple possible d'étudier le blocage de modes dans les LCQ [140], [141]. D'autre part, il serait intéressant d'étudier le comportement de lasers présentant des largeurs spectrales d'émission différentes.

Le système utilisé ici présente certains inconvénients qui peuvent être éliminés pour de prochaines expériences. Il serait souhaitable d'agrandir la fenêtre temporelle d'acquisition du champ THz pour augmenter la résolution spectrale et éventuellement avoir accès au temps de cohérence du laser. D'autre part, il serait nécessaire de rallonger la durée des impulsions RF appliquées. Le laser à cascade quantique utilisé ici ne permet pas d'atteindre une amplitude THz aussi élevée qu'avec les lasers à dépopulation par émission de phonon LO, qu'il serait intéressant d'étudier avec ce dispositif expérimental.

La spectroscopie THz dans le domaine temporel bénéficie désormais d'un émetteur puissant à des fréquences spécifiques en s'appuyant sur l'utilisation des lasers à cascade quantique.

Chapitre 7

Conclusions générales et Perspectives

Au cours de ces trois années de thèse, nous avons exploité les possibilités offertes par la spectroscopie THz dans le domaine temporel pour étudier le comportement statique et dynamique de lasers à cascade quantiques THz.

L'étude statique a consisté à mesurer le gain spectral de deux types d'échantillons s'appuyant sur des dessins différents : des lasers dits liés-continuum, et des lasers dits à dépopulation par émission de phonons LO (lasers LO-phonon). Ces mesures ont mis en évidence la saturation du gain en régime laser, alors égal aux pertes totales, ont permis d'observer le gain et les pertes sur les spectres de gain des LCQ ainsi que de mettre en évidence un rétrécissement du spectre du gain spectral en régime laser à mesure que la tension appliquée au LCQ augmente. Des simulations de la structure de bande ont permis d'identifier les transitions responsables de l'émission et de l'absorption dans nos échantillons, et de comprendre l'origine du rétrécissement du spectre du gain, attribué à l'alignement du niveau injecteur avec le niveau haut de la transition radiative. Cette étude démontre l'efficacité de la spectroscopie THz comme moyen de caractériser les performances des LCQ afin d'améliorer le dessin de leur structure de bande. Il serait intéressant d'effectuer à l'avenir une étude dynamique des lasers à cascade quantique, par exemple grâce à des expériences de type pompe-sonde, pour avoir une idée des durées des différents processus non radiatifs intervenant dans le fonctionnement d'un laser à cascade. Ceci permettra de mieux exploiter ces phénomènes pour optimiser davantage ces dispositifs.

L'étude dynamique s'est articulée autour de deux expériences. La première consistait à amplifier des ondes THz dans un LCQ placé en régime non stationnaire à l'aide d'un interrupteur

optique de type Auston. La seconde consistait à amorcer le laser sur l'impulsion THz issue de notre émetteur photoconducteur à l'aide d'impulsions électriques RF.

L'amplification en régime transitoire a permis de multiplier la puissance de l'onde THz produite par l'émetteur photoconducteur à la fréquence d'émission du laser d'un facteur supérieur à 400 (26 dB). Cette amplification, limitée par la durée de fonctionnement de l'interrupteur Auston permet d'envisager une amélioration du dispositif par la conception d'un interrupteur ayant une dynamique différente ou encore d'envisager le recours à un dispositif électronique pour le déclenchement du laser.

L'amorçage de l'émission laser d'un LCQ par l'impulsion THz issue de l'antenne photoconductrice qui nous sert d'émetteur a permis d'étudier la formation du champ laser dans un LCQ sur une échelle de temps de 2 ns. La mesure d'un champ THz quasi monochromatique et l'observation de la compétition des modes de cavité dans les premières nanosecondes de formation du champ laser offre des possibilités nouvelles pour caractériser les LCQ et les utiliser dans des expériences de spectroscopie nécessitant des puissances par raie d'émission élevées. Le contrôle de la phase du champ THz émis par un LCQ permet d'utiliser ce dispositif comme une nouvelle source pour la spectroscopie dans le domaine temporel. Il est envisageable d'exploiter ce contrôle de la phase des modes de cavité d'un laser à cascade quantique pour générer à l'avenir, dans un laser ou ces modes sont exaltés, des impulsions de forte intensité et de courte durée par un blocage des modes de cavité.

— **Appendice A** —

Feuilles de croissance des échantillons ART 217 (2.1 THz) et L234 (3.1 THz)

A.1 Feuille de croissance de l'échantillon ART 217 (2.1 THz)

Growth Step	Composition	Thickness (Å)	Al concentration	doping (cm^{-3})
		SI GaAs SUBSTRATE		
1	GaAs (BUFFER)	2500.0		
2	AlGaAs	3000.0	x = 50%	
3	GaAs	6000.0		1.0E18
4	As INTERRUPT	-		(Si -> 1.3E16)

Growth Step	Composition	Thickness (Å)	Al concentration	doping (cm^{-3})
		START SL STRUCTURE - REPEAT LOOP x 110		
5	AlGaAs	50.00	x = 10%	
6	GaAs	126.00		
7	AlGaAs	44.00	x = 10%	
8	GaAs	120.00		
9	AlGaAs	32.00	x = 10%	
10	GaAs	124.00		1.3E16
11	AlGaAs	30.00	x = 10%	
12	GaAs	132.00		1.3E16
13	AlGaAs	24.00	x = 10%	
14	GaAs	144.00		
15	AlGaAs	24.00	x = 10%	
16	GaAs	144.00		
17	AlGaAs	10.00	x = 10%	
18	GaAs	118.00		
19	AlGaAs	10.00	x = 10%	
20	GaAs	144.00		
		END SL STRUCTURE		
21	AlGaAs	50.00	x = 10%	
22	GaAs	126.00		
23	AlGaAs	44.00	x = 10%	
24	GaAs	120.00		
25	AlGaAs	32.00	x = 10%	
26	GaAs	124.00		1.3E16
27	AlGaAs	30.00	x = 10%	
28	GaAs	200.00		(Si 1.3E16 -> 5.0E18)
29	GaAs	700.00		5.0E18

A.2 Feuille de croissance de l'échantillon L234 (3.1 THz)

Layer	Material	[nm]		Ratio	Doping (cm-3)
1	GaAs	250			
2	AlGaAs	300		Al50Ga50As	
3	GaAs	700			2E+018
4	AlGaAs	4.8		Al15Ga85As	
5	GaAs	5.3			
6	GaAs	5.5			5.00E+16
7	GaAs	5.3			
			Start of 226 repeat periods		
8S1	AlGaAs	4.2	12.9	Al15Ga85As	
9S1	GaAs	7.4	26.6		
10S1	AlGaAs	2	6.1 Al15Ga85As		
11S1	GaAs	9.6	34.6		
12S1	AlGaAs	4.8	14.7	Al15Ga85As	
			Injector grading		
13S1	GaAs	5.3	19.1		
14S1	GaAs	5.5	19.8		5.00E+16
15S1	GaAs	5.3	19.1		
			End of repeat periods		
16	AlGaAs	4.2		Al15Ga85As	
17	GaAs	50			5.00E+18

— **Appendice B** —

Spectre du gain des échantillons TRT 295 (2.9 THz) et V 298 (2.6 THz)

La spectroscopie THz dans le domaine temporel a permis de mettre en évidence un rétrécissement du spectre du gain dans l'échantillon ART 217 (2.1 THz) lorsque la densité de courant injectée augmente en régime de fonctionnement laser. Une simulation de la structure de bande a permis de mettre en évidence l'origine de ce rétrécissement attribué au découplage progressif de l'injecteur avec le niveau excité de la transition optique. Au niveau du seuil, les deux niveaux contribuent de façon équivalente à l'émission radiative. Au-delà du maximum d'émission radiative, le niveau excité de la transition optique devient l'unique niveau siège d'une transition radiative. Nous présentons ici les données expérimentales acquises sur deux autres échantillons lasers " lié-continuum " pour justifier le caractère général de cette conclusion, qui s'applique à tous les lasers reposant sur ce type de structure.

B.1 Caractéristiques LJV des deux échantillons

Sur la figure B.1 a) et b), on distingue les trois régimes de fonctionnement des échantillons TRT 295 (2.9 THz) (figure B.1 a)) et V 298 (2.6 THz) (figure B.1 b)) : luminescence sous le seuil, régime de fonctionnement laser et luminescence une fois que la structure du LCQ se désaligne. Les traits verts en pointillés indiquent les densités de courant injectées qui sont représentées dans la suite de cette annexe.

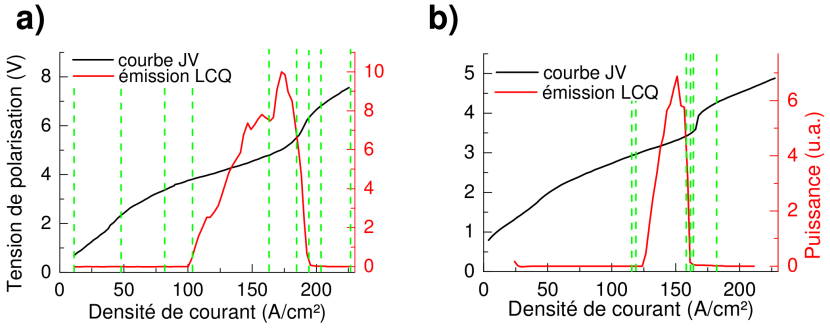


FIGURE B.1: a) Caractéristiques LJV du laser TRT 295 (2.9 THz). Les traits en pointillés verts indiquent les tensions pour lesquelles des données sont fournies par la suite. b) Caractéristiques LJV du laser V 298 (2.6 THz).

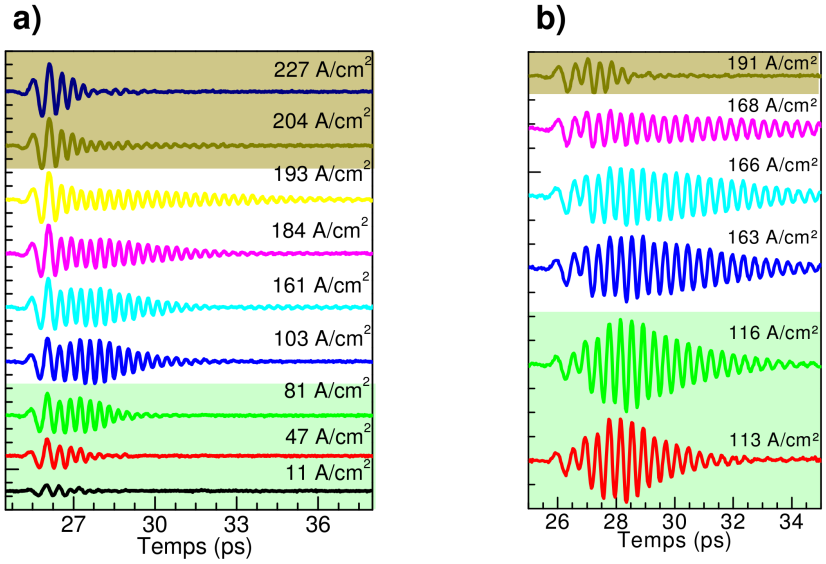


FIGURE B.2: a) Champs THz mesurés par spectroscopie dans le domaine temporel sur l'échantillon TRT 295 (2.9 THz). La zone en blanc représente les champs pour lesquelles le LCQ fonctionne en régime laser. La zone en vert représente les champs pour lesquels le laser est polarisé sous son seuil. La zone en beige, les champs pour lesquels le laser est polarisé au-delà de la tension de désalignement du LCQ. b) Données relatives à l'échantillon V 298 (2.6 THz).

B.2 Champs THz mesurés par spectroscopie dans le domaine temporel

Sur la figure B.2 a) et b) nous pouvons voir la différence entre l'allure des champs THz acquis pendant le régime de fonctionnement laser et ceux acquis sous le seuil et au-delà de la tension de désalignement des LCQ. Sur ces figures les zones vertes et beiges représentent les régimes de luminescence tandis que la zone blanche représente le régime laser. On distingue que le nombre

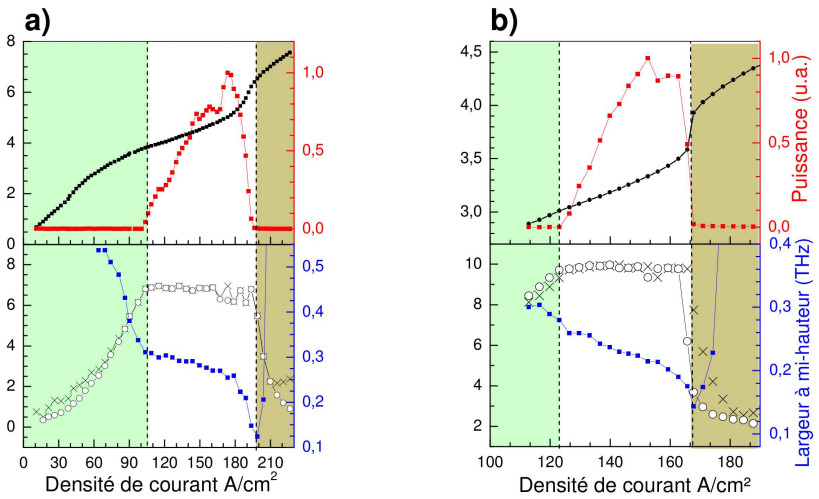


FIGURE B.3: a) Caractéristiques LJV de l'échantillon TRT 295 (2.9 THz), suivi de l'évolution du gain modal à 2.9 THz en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ (ronds blancs). L'évolution de la largeur à mi-hauteur est indiquée par des points bleus. b) Mêmes données pour l'échantillon V 298 (2.6 THz)

d'oscillations du champ THz augmente en même temps que la densité de courant injectée, ce qui traduit un comportement de plus en plus monochromatique, en accord avec les observations effectuées sur l'échantillon ART 217 (2.1 THz). La figure B.2 a) affiche les champs THz mesurés sur l'échantillon TRT 295 (2.9 THz), tandis que la figure B.2 b) affiche les champs THz mesurés sur l'échantillon V 298 (2.6 THz).

B.3 Largeur à mi-hauteur des spectres du gain

L'analyse des champs THz présentés précédemment a permis d'extraire le spectre du gain des deux échantillons laser. Nous nous intéressons plus particulièrement à l'évolution de la largeur à mi-hauteur des spectres du gain pour mettre en évidence un rétrécissement analogue à celui observé sur l'échantillon ART 217 (2.1 THz). La figure B.3 a) indique les caractéristiques LJV de l'échantillon TRT 295 (2.9 THz) ainsi que l'évolution du gain modal à 2.9 THz en fonction de la densité de courant injectée dans le LCQ (ronds blancs) et de la largeur à mi-hauteur du spectre du gain (points bleus). On remarque une nette diminution de la largeur à mi-hauteur du spectre du gain au-delà du maximum d'émission laser, tout comme dans l'échantillon ART 217 (2.1 THz). Pour l'échantillon TRT 295 (2.9 THz), le spectre du gain subit une diminution de sa largeur à mi-hauteur de 187 GHz, en passant de 311 GHz à 124 GHz. Les données relatives à l'échantillon V 298 (2.6 THz), représentées sur la figure B.3 b), manifestent le même comportement avec une

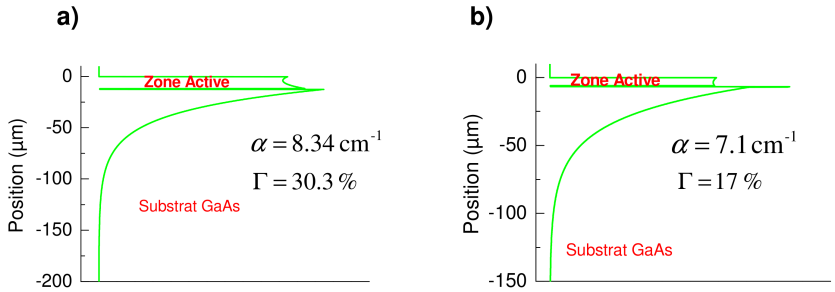


FIGURE B.4: a) Représentation du carré du champ électrique (mode plasmon TM sur lequel l'échantillon TRT 295 (2.9 THz) se couple en régime laser). Les pertes dues aux porteurs libres ainsi que le facteur de recouvrement avec la région active sont donnés. b) Représentation du carré du champ électrique (mode plasmon TM sur lequel l'échantillon V 298 (2.6 THz) se couple en régime laser).

diminution de la largeur à mi-hauteur de 115 GHz passant de 259 GHz au niveau du seuil à 144 GHz au niveau de la densité de courant de désalignement du LCQ.

Par ailleurs, ces deux figures nous permettent de voir la saturation du gain au-dessus du seuil, bloqué au niveau des pertes totales du laser.

Nous pouvons donc affirmer que nos conclusions établies sur les lasers " lié-continuum " sur la base des données acquises avec l'échantillon ART 217 (2.1 THz) sont généralisables à tous les échantillons fondés sur ce type de structure active.

B.4 Simulation du mode plasmon et du gain modal dans les échantillons TRT 295 (2.9 THz) et V 298 (2.6 THz)

Pour conclure notre comparaison avec l'échantillon ART 217 (2.1 THz), nous présentons ici une simulation du mode plasmon se propageant dans les rubans laser TRT 295 (2.9 THz) (figure B.4 a)) et V 298 (2.6 THz) (figure B.4 b)). Ces simulations supposent qu'il n'y a aucun effet dû à la présence d'une couche d'indium sous le substrat de GaAs sur le plasmon de surface. On obtient ainsi un bon confinement du mode dans la zone active supérieur à 15% pour les deux échantillons. Ceci nous amène aux valeurs de gain modal résumées dans le tableau (4.12) du chapitre 4.

— **Appendice C** —

Feuille de croissance de l'échantillon L 182 (2.4 THz)

Growth Step	Composition	Thickness (Å)	Al concentration	doping (cm^{-3})
	SI GaAs SUBSTRATE			
1	GaAs (BUFFER)	2500.0		
2	AlGaAs	3000.0	x = 50%	
3	GaAs	7000.0		2.0E18
4	As INTERRUPT	-		(Si -> 1.6E16)
	Injector Grading :			
5	AlGaAs	42.00	x = 15 %	
6	GaAs	118.00		
7	AlGaAs	35.00	x = 15 %	
8	GaAs	113.00		
9	AlGaAs	27.00	x = 15 %	
10	GaAs	114.00		1.6E16
11	AlGaAs	20.00	x = 15 %	
12	GaAs	120.00		1.6E16
13	AlGaAs	20.00	x = 15 %	
14	GaAs	118.00		

START SL1 STRUCTURE - REPEAT LOOP x 90

	Active Region :			
15 SL1	AlGaAs	18.00	x = 15 %	
16 SL1	GaAs	124.00		
17 SL1	AlGaAs	15.00	x = 15 %	
18 SL1	GaAs	153.00		
19 SL1	AlGaAs	6.00	x = 15 %	
20 SL1	GaAs	100.00		
21 SL1	AlGaAs	6.00	x = 15 %	
22 SL1	GaAs	135.00		
	Injector Grading :			
23 SL1	AlGaAs	42.00	x = 15 %	
24 SL1	GaAs	118.00		
25 SL1	AlGaAs	35.00 x = 15 %		
26 SL1	GaAs	113.00		
27 SL1	AlGaAs	27.00 x = 15 %		
28 SL1	GaAs	114.00		1.6E16
29 SL1	AlGaAs	20.00	x = 15 %	
30 SL1	GaAs	120.00		1.6E16
31 SL1	AlGaAs	20.00	x = 15 %	
32 SL1	GaAs	118.00		

END SL1 STRUCTURE

33	GaAs	200.00	(Si 1.6E16 -> 5.0E18)
34	GaAs	800.00	5.0E18

— **Appendice D** —

Circuit électronique générant les signaux radiofréquence

Nous décrivons ici le schéma électronique complet qui nous a permis de générer des signaux RF de 76 MHz pour polariser un LCQ afin de contrôler sa phase. Un faisceau NIR fs de faible puissance prélevé à l'aide d'une lame séparatrice de faible réflectivité (1 %) est focalisé sur une photodiode « SM05PD2B » à réponse rapide. (300 ps de temps montée entre 10 % et 90 % de la valeur finale. Une photodiode rapide est nécessaire pour générer des impulsions RF ressemblant le plus possible à des créneaux de tension.) Cette photodiode charrie des impulsions électriques avec un taux de répétition de 76 MHz. Pour transporter des signaux haute fréquence, nous avons préféré des câbles et connecteurs SMA aux câbles BNC, du fait de leur meilleure transmission de signaux haute fréquence. Pour alimenter cette photodiode on utilise un té de polarisation " ZFBT-4R26+ " alimenté par un courant continu de 4.5V.

En aval de ce té de polarisation on fixe un atténuateur de 10 dB « HAT 10 ». Un deuxième atténuateur de 20 dB « MCL VAT 20W2 » est placé juste derrière le précédent. Ces atténuateurs filtrent le signal issu de la photodiode et permettent d'avoir une amplitude suffisamment faible pour ne pas saturer l'amplificateur « ZKL-1R5 », alimenté par une tension continue de 12 V et placé en aval. On utilise un commutateur de signal radiofréquence (RF) pour moduler ces impulsions électriques avec la tension créneau de 10 kHz utilisée pour alimenter le LCQ. Ce commutateur « ZX80-DR230-S+ » est alimenté par une tension continue de 4.5 V et reçoit un signal de même fréquence et rapport cyclique que celui servant à alimenter le LCQ. Le signal RF modulé passe ensuite par un atténuateur variable contrôlé en tension « ZX73-2500-S+ », alimenté

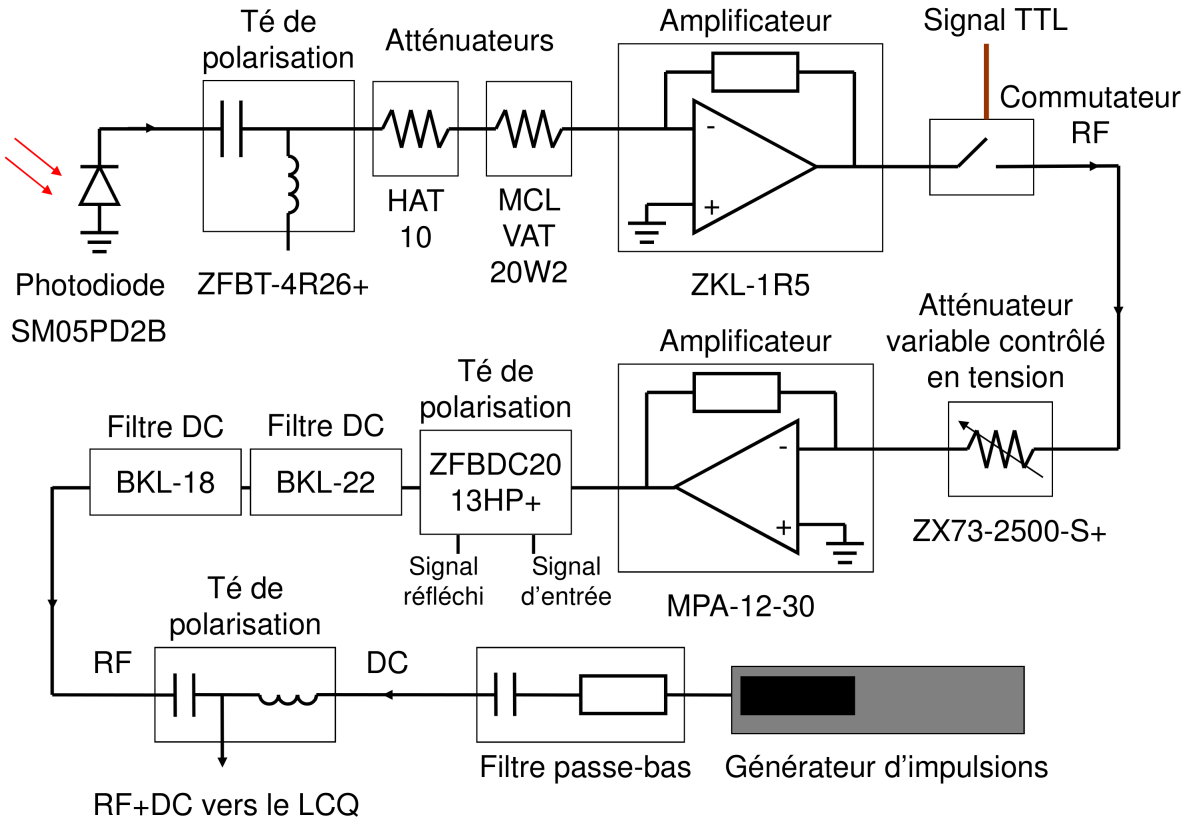


FIGURE D.1: Représentation schématique du circuit électronique servant à porter l'échantillon au-dessus du seuil au même instant que l'arrivée de l'onde THz.

par une tension continue de 4.5 V. Ce dispositif permet de régler l'amplitude du signal RF qui passe ensuite par un amplificateur de haute puissance avec un gain de 30 dB « MPA-12-30 ». Cet amplificateur est alimenté par une tension continue de 12 V.

Ce signal amplifié a alors une amplitude de quelques dixièmes de volts. Il passe par un té de polarisation « ZFBDC20-13HP+ », qui permet de regarder le signal en entrée et le comparer à l'impulsion électrique réfléchie par le montage depuis l'échantillon laser. Pour éviter d'abimer ce dispositif on place deux filtres de signaux continus « BLK-22+ DC block » et « BLK-18-S+ ». Le signal RF a alors la forme d'un créneau de tension de 1 à 2 ns de durée, fonction du réglage de l'atténuateur variable contrôlé en tension. Il est alors rajouté à la tension créneau délivrée par le générateur d'impulsion servant à polariser le LCQ au moyen d'un té de polarisation « bias tee 5580 ».

La tension créneau délivrée par le générateur d'impulsion passe d'abord par un filtre passe bas d'ordre 1 et de fréquence de coupure à 160 kHz (circuit RC avec R valant 5 Ohms et C

200 nF). Ceci permet d'éviter l'ajout de parasites dans le signal RF via le coupleur. Le signal complet (tension créneau combinée avec des impulsions RF) est branché sur l'échantillon laser.

Liste des publications

1 N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, Z.-Y. Zhao, S. Hameau, J. Tignon, S. Barbieri, A. Vasanelli, P. Filloux, C. Sitrori, X. Marcadet, "Investigation of spectral gain narrowing in quantum cascade lasers using terahertz time-domain spectroscopy", Appl. Phys. Lett., **93**, 101115, (2008)

2 N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, J. Tignon, R. Colombelli, P. Dean, M. Salih, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, "Teraherz time domain spectroscopy of phonon-depopulation based quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **94**, 251108, (2009)

3 N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, C. Manquest, S. Barbieri, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser", Nature Photonics, **3**, 715-719, (2009)

4 S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, J. Tignon, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, "Integrated terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **96**, 061107, (2010)

5 J. R. Freeman, J. Madéo, A. Brewer, S. S. Dhillon, O. P. Marshall, N. Jukam, D. Oustinov, J. Tignon, H. E. Beere, D. A. Ritchie, "Dual wavelength emission from a terahertz quantum cascade laser", Appl. Phys. Lett., **96**, 051120, (2010)

6 J. Madéo, N. Jukam, D. Oustinov, M. Rosticher, R. Rungsawang, J. Tignon, S. S. Dhillon, "Frequency tunable terahertz interdigitated photoconductive antennas", Electron. Lett., **46**, 611, (2010)

7 D. Oustinov, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Madéo, S. Barbieri, P. Filloux, C Sirtori, X.

Marcadet, J. Tignon, S. S. Dhillon, "Phase seeding of a terahertz quantum cascade laser", Nature Comm., **1**, 69, (2010)

8 R. Rungsawang, N. Jukam, J. Maysonnave, P. Cavalié, J. Madéo, D. Oustinov, S. S. Dhillon, J. Tignon, P. Gellie, C. Sirtori, S. Barbieri, H. E. Beere, D. A. Ritchie, "Gain enhancement in a terahertz quantum cascade laser with parylene anti-reflection coatings", soumis à Appl. Phys. Lett., (2010)

Bibliographie

[1] D. Mittleman, "Sensing with Terahertz Radiation", Springer Series in Optical Sciences**14**, 1128-1230 (2003).

[2] Jean-Louis Coutaz, "Optoélectronique Térahertz", EDP Sciences, (2008).

[3] M. von Exter, C. Fattinger, D. Grischkowsky, "Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor", Opt. Lett., **14**, 1128-1230 (1989).

[4] S. P. Belov, K. M. T. Yamada, G. Winnewisser, L. Poteau, R. Bocquet, J. Demaison, O. Polyansky, M. Y. Tretyakov, "Terahertz Rotational Spectrum of H_2S", J. Mol. Spectrosc., **173**, 380-390 (1995).

[5] A. G. Markelz, A. Roitberg, E. J. Heilweil, "Pulsed terahertz spectroscopy of DNA, bovine serum albumin and collagen between 0.1 and 2.0 THz", Chem. Phys. Lett. **320**, 42-48 (2000).

[6] M. Brucherseifer, M. Nagel, P. Haring Bolivar, H. Kurz, A. Bosserhoff, R. Büttner, "Label-free probing of the binding state of DNA by time-domain terahertz sensing", Appl. Phys. Lett. **77**, 4049-4051 (2000).

[7] J. N. Heyman, R. Kersting, K. Unterrainer, "Time-domain measurement of intersubband oscillations in a quantum well", Appl. Phys. Lett. **72**, 644-646 (1998).

[8] M. C. Nuss, P. M. Mankiewich, M. L. O'Malley, E. H. Westerwick, P. B. Littlewood, "Dynamic Conductivity and "Coherence Peak" in $YBa_2Cu_30_7$ Superconductors", Phys. Rev. Lett. **66**, 3305-3308 (1991).

[9] A. Frenkel, F. Gao, Y. Liu, J. F. Whitaker, C. Uher, S. Y. Hou, J. M. Phillips, "Conductivity peak, relaxation dynamics, and superconducting gap of $YBa_2Cu_30_7$", Phys. Rev. B **54**, 1355-1365 (1996).

[10] J. J. Baumberg, D. D. Awschalom, N. Samarth, H. Luo, J. K. Furdyna, "Spin Beats and Dynamical Magnetization in Quantum Structures", Phys. Rev. Lett. **72**, 717-720 (1994).

[11] K. H. Yang, P. L. Richards, Y. R. Shen, "Generation of far-Infrared Radiation by Picosecond Light Pulses in $LiNbO_3$", Appl. Phys. Lett., **19**, 320-323 (1971)

[12] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, G. Weinreich, "Optical rectification", Phys. Rev. Lett., **9**, 446-449 (1962)

[13] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, "Optical rectification", Phys. Rev., **138**, A 534- A 542 (1965)

[14] G. Mourou, C. V. Stancampiano, A. Antonetti, A. Orszag, "Picosecond microwave pulses generated with a subpicosecond laser-driven semiconductor switch", Appl. Phys. Lett., **39**, 295-296 (1981)

[15] D. H. Auston, "Impulse response of photoconductors in transmission lines", IEEE J. Quantum Elect., **19**, 639-648 (1983)

[16] G. Mourou, K. E. Meyer, "Subpicosecond electro-optic sampling using coplanar strip transmission lines", Appl. Phys. Lett., **45**, 492-494 (1984)

[17] D. H. Auston, K. P. Cheung, "Coherent time-domain far-infrared spectroscopy", J. OPt. Soc. Am. B, **2**, 606-612 (1985)

[18] K. P. Cheung, D. H. Auston, "A novel technique for measuring far-infrared absorption and dispersion", Infrared Phys., **26**, 23-27 (1986)

[19] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter, C. Fattinger, "Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors", J. OPt. Soc. Am. B, **7**, 2006-2015 (1990)

[20] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, "Quantum Cascade Laser", Science, **264**, 553-556 (1994)

[21] M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilegems, E. Gini, H. Melchior, "Continuous Wave Operation of a Mid-Infrared Semiconductor Laser at Room Temperature", Science, **295**, 301-304 (2002)

[22] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Lotti, F. Rossi, "Terahertz semiconductor-heterostructure laser", Nature, **417**, 156-159 (2002)

[23] N. Jukam, S. S. Dhillon, Z.-Y. Zhao, G. Duerr, J. Armijo, N. Sirmons, S. Hameau, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, "Gain Measurements of THz Quantum Cascade Lasers using THz Time Domain Spectroscopy", IEEE J. Sel. Top. Quant., **14**, 436-442 (2008)

[24] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, Z.-Y. Zhao, S. Hameau, J. Tignon, S. Barbieri, A. Vasanelli, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, "Investigation of spectral gain narrowing in quantum cascade lasers using terahertz time domain spectroscopy", Appl. Phys. Lett., **93**, 101115-1/101115-3 (2008)

[25] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, J. Tignon, R. Colombelli, P. Dean, M. Salih, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, "Terahertz time domain spectroscopy of phonon-depopulation based quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **94**, 251108-1/251108-3 (2009)

[26] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, C. Manquest, S. Barbieri, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser", Nature Photon., **3**, 715-719 (2009)

[27] D. Oustinov, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Madéo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, S. S. Dhillon, "Phase seeding of a terahertz quantum cascade laser", Nature Comm., **1**, 69-1/69-6 (2010)

[28] C. A. Schuttenmaer, "Exploring Dynamics in the Far-Infrared with Terahertz Spectroscopy", Chem. Rev. **104**, 1759-1779 (2004)

[29] Ch. Fattinger, D. Grischkowsky, "Terahertz beams", Appl. Phys. Lett. **54**, 490-492 (1989)

[30] P. R. Smith,D. H. Auston, M. C. Nuss, "Subpicosecond photoconducting dipole antennas", IEEE J. Quantum. Elec. **24**, 255-260 (1988)

[31] H. G. Roskos, "Overview on Time-domain Terahertz Spectroscopy and its Applications in Atomic and Semiconductor Physics", Phys. Scripta, **T86**, 51-54 (2000)

[32] P. Y. Han, M. Tani, M. Usami, S. Kono, R. Kersting, X.-C. Zhang, "A Direct Comparison between Terahertz Time-domain Spectroscopy and Far-infrared Fourier Transform Spectroscopy", J. Appl. Phys., **89**, 2357-2359 (2001)

[33] P. F. Moulton, "Spectroscopic and laser characteristics of Ti : Al_2O_3", J. Opt. Soc. Am. B, **3**, 125-132 (1986)

[34] M. Piché, "Beam reshaping and self-mode-locking in nonlinear laser resonators", Optics Commun., **86**, 156-160 (1991)

[35] F. Salin, J. Squier, "Mode locking of Ti : Al_2O_3 laser and self-focusing : a Gaussian approximation", Opt. Lett., **16**, 1674-1676 (1991)

[36] D. H. Auston, K. P. Cheung, P. R. Smith, "Picosecond photoconducting Hertzian dipoles", Appl. Phys. Lett., **45**, 284-286 (1984)

[37] Yun-Shik Lee, "Principles of Terahertz Science and Technology", Springer US, 70-72 (2009)

[38] E. Castro-Camus, J. Lloyd-Hughes, M. B. Johnston, "Three-dimensional carrier-dynamics simulation of terahertz emission from photoconductive switches", Phys. Rev. B, **71**, 195301 (2005)

[39] J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, J. D. Morse, "Saturation Properties of Large-Aperture Photoconducting antennas", IEEE J. Quantum Elect., **28**, 1607-1616 (1992)

[40] http ://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/GaAs/electric.html

[41] J. Lloyd-Hughes, E. Castro-Camus, M. D. Fraser, C. Jagadish, M. B. Johnston, "Carrier Dynamics in Ion-implanted GaAs Studied by Simulation and Observation of Terahertz Emission", Phys. Rev. B, **70**, 235330 (2004)

[42] L. Duvillaret, F. Garet, J.-F. Roux, J.-L. Coutaz, "Analytical Modeling and Optimization of Terahertz Time-Domain Spectroscopy Experiments Using Photoswitches as Antennas", IEEE J. Sel. Top. Quant., **7**, 615-623 (2001)

[43] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy, M. Helm, "High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor", Appl. Phys. Lett., **86**, 121114-1/121114-3 (2005)

[44] J. Madéo, N. Jukam, D. Oustinov, M. Rosticher, R. Rungsawang, J. Tignon, S. S. Dhillon, "Frequency tunable terahertz interdigitated photoconductive antennas", Electron. Lett., **46**, 611-613 (2010)

[45] G. Zhao, R. N. Schouten, N. van der Valk, W. T. Wenckebach, P. C. M. Planken, "Design and performance of a THz emisson and detection setup based on a semi-insulating GaAs emitter", Rev. Sci. Instrum., **73**, 1715-1719 (2002)

[46] Q. Wu, X.-C. Zhang, "Ultrafast Electro-optic Field Sensor", Appl. Phys. Lett., **68**, 1604-1606 (1996)

[47] P. Uhd Jepsen, R. H. Jacobsen, S. R. Keiding, "Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas", J. Opt. Soc. Am. B, **13**, 2424-2436 (1996)

[48] G. Gallot, J. Zhang, R. W. McGowan, T.-I. Jeon, D. Grischkowsky, "Measurements of the THz Absorption and Dispersion of ZnTe and their Relevance to the Electro-optic Detection of THz Radiation", Appl. Phys. Lett., **23**, 3450-3452 (1999)

[49] M. Walther, K. Jensby, S. R. Keiding, H. Takahashi, H. Ito, "Far-infrared Properties of DAST", Opt. Lett., **25**, 911-913 (2000)

[50] Q. Wu, X.-C. Zhang, "7 Terahertz Broadband GaP Electro-optic Sensor", Appl. Phys. Lett., **70**, 1784-1786 (1997)

[51] Yun-Shik Lee, "Principles of Terahertz Science and Technology", Springer US, 161-163 (2009)

[52] Z. G. Lu, P. Campbell, X.-C. Zhang, "Free-space electro-optic sampling with a high-repetition-rate regenerative amplified laser", Appl. Phys. Lett., **71**, 593-595 (1997)

[53] S. Kumar, Q. Hu, J. L. Reno, "186 K operation of terahertz quantum-cascade lasers based on a diagonal design", Appl. Phys. Lett., **94**, 131105-1/131105-3 (2009)

[54] Benjamin S. Williams, "Terahertz quantum cascade lasers", Ph.D., Massachussetts Institute of Technology, (2003)

[55] Virginie Moreau, "Étude du confinement optique dans les lasers à cascade quantique et leurs applications à la détection", Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud XI (2008)

[56] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, R. O. Carlson, "Coherent light emission from GaAs junctions", Phys. Rev. Lett., **9**, 366-368 (1962)

[57] M. I. Nathan, W. P. Dumke, G. Burns, F. H. Dill Jr., G. Lasher, "Stimulated emission of radiation from GaAs p-n junctions", Appl. Phys. Lett., **1**, 62-64 (1962)

[58] N. Holonyak Jr., S. F. Bevacqua, "Coherent (visible) light emission from $Ga(As_{1-x}P_x)$ junctions", Appl. Phys. Lett., **1**, 82-83 (1962)

[59] T. M. Quist, R. H. Rediker, R. J. Keyes, W. E. Krag, B. Lax, A. L. McWhorter, H. J. Zeigler, "Semiconductor maser of GaAs", Appl. Phys. Lett., **1**, 91-92 (1962)

[60] R. D. Dupuis, P. D. Dapkus, N. Holonyak Jr., E. A. Rezek, R. Chin, "Room-temperature laser operation of quantum-well $Ga_{1-x}Al_xAs$-GaAs laser diodes grown by metalorganic chemical vapor deposition", Appl. Phys. Lett., **32**, 295-297 (1978)

[61] J. F. Butler, A. R. Calawa, R. J. Phelan Jr., A. J. Strauss, R. H. Rediker, "PbSe diode laser", Solid State Commun., **2**, 303-304 (1964)

[62] U. P. Schießl, J. Rohr, "60°C lead salt laser emission near 5-μm wavelength", Infrared Phys. Techn., **40**, 325-328 (1999)

[63] E. A. Pshenichnov, N. D. Sokolov, "Eigen-values and probabilities of quantum transitions in a double asymmetrical potential well", Opt. Spektrosk.+, **17**, 343-348 (1964)

[64] A. Pinczuk, H. L. Störmer, R. Dingle, J. M. Worlock, W. Wiegmann, A. C. Gossard, "Observation of intersubband excitations in a multilayer two dimensional electron gas", Solid State Commun., **32**, 1001-1003 (1979)

[65] L. C. West, S. J. Eglash, "First observation of an extremely large-dipole infrared transition within the conduction band of a GaAs quantum well", Appl. Phys. Lett., **46**, 1156-1158 (1985)

[66] M. Helm, E. Colas, P. England, F. DeRosa, S. J. Allen Jr., "Observation of grating-induced intersubband emission from GaAs/AlGaAs superlattices", Appl. Phys. Lett., **53**, 1714-1716 (1988)

[67] B. Lax, J. G. Mavroides, "Cyclotron resonance", Solid State Phys., **11**, 261-400 (1960)

[68] L. Esaki, R. Tsu, "Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors", IBM J. Res. Dev., **14**, 61 (1970)

[69] R. F. Kazarinov, R. A. Suris, "Possibility of amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice", Sov. Phys. Semicond.+, **5**, 707 (1971)

[70] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, "Mécanique Quantique II", Hermann, Collection Enseignement des Sciences, **2**, 1297-1316 (2000)

[71] G. Bastard, "Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures", Les éditions de physique, 237-258 (1988)

[72] J. Devenson, O. Cathabard, R. Teissier, A. N. Baranov, "InAs/AlSb quantum cascade lasers emitting at 2.75-2.97 μm", Appl. Phys. Lett., **91**, 251102-1/251102-3 (2007)

[73] Y. Bai, S. Slivken, S. Kuboya, S. R. Darvish, M. Razeghi, "Quantum cascade lasers that emit more light than heat", Nature Photon., **4**, 99-102 (2010)

[74] B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, J. L. Reno, "Operation of terahertz quantum-cascade lasers at 164 K in pulsed mode and at 117 K in continuous-wave mode", Opt. Express, **13**, 3331-3339 (2005)

[75] Y. Chassagneux, R. Colombelli, W. Maineult, S. Barbieri, H. E. Beere, D. A. Ritchie, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, "Electrically pumped photonic-crystal terahertz lasers controlled by boundary conditions", Nature, **457**, 174-178 (2008)

[76] G. Scalari, C. Walther, M. Fischer, R. Terazzi, H. Beere, D. Ritchie, J. Faist, "THz and sub-THz quantum cascade lasers", Laser & Photon. Rev., **3**, 45-66 (2009)

[77] J. H. Smet, C. G. Fonstad, Q. Hu, "Intrawell and interwell intersubband transitions in multiple quantum wells for far-infrared sources", J. Appl. Phys., **79**, 9305-9320 (1996)

[78] J. Faist, M. Beck, T. Aellen, E. Gini, "Quantum cascade lasers based on a bound-to-continuum transition", Appl. Phys. Lett., **78**, 147-149 (2001)

[79] A. Tredicucci, F. Capasso, C. Gmachl, D. L. Sivco, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, "High performance interminiband quantum cascade lasers with graded superlattices", Appl. Phys. Lett., **73**, 2101-2103 (1998)

[80] A. Leuliet, A. Vasanelli, A. Wade, G. Fedorov, D. Smirnov, G. Bastard, C. Sirtori, "Electron scattering spectroscopy by a high magnetic field in quantum cascade lasers", Phys. Rev. B, **73**, 085311-1/085311-9 (2006)

[81] B. S. Williams, H. Callebaut, S. Kumar, Q. Hu, J. L. Reno, "3.4-THz quantum cascade laser based on longitudinal-optical-phonon scattering for depopulation", Appl. Phys. Lett., **82**, 1015-1017 (2003)

[82] C. Gmachl, J. Faist, J. N. Bailargeon, F. Capasso, C. Sirtori, D. L. Sivco, S. N. G. Chu, A. Y. Cho, "Complex-coupled quantum cascade distributed-feedback laser", IEEE Photonic Tech. L., **9**, 1090-1092 (1997)

[83] H. Raether, "Surface plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings", Springer-Verlag, **111**, 1-56 (1988)

[84] B. S. Williams, S. Kumar, H. Callebaut, Q. Hu, J. L. Reno, "Terahertz quantum-cascade laser at $\lambda \approx 100$ μm using metal waveguide for mode confinement", Appl. Phys. Lett., **83**, 2124-2126 (2003)

[85] S. Kohen, B. S. Williams, Q. Hu, "Electromagnetic modeling of terahertz quantum cascade laser waveguides and resonators", J. Appl. Phys., **97**, 053106-1/053106-9 (2005)

[86] K. Unterrainer, R. Colombelli, C. Gmachl, F. Capasso, H. Y. Hwang, A. M. Sergent, D. L. Sivco, A. Y. Cho, "Quantum cascade lasers with double metal-semiconductor waveguide resonators", Appl. Phys. Lett., **80**, 3060-3062 (2002)

[87] A. J. L. Adam, I. Kašalynas, J. N. Hovenier, T. O. Klaassen, J. R. Gao, E. E. Orlova, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, J. L. Reno, "Beam patterns of terahertz quantum cascade lasers with subwavelenght cavity dimensions", Appl. Phys. Lett., **88**, 151105-1/151105-3 (2006)

[88] E. E. Orlova, J. N. Hovenier, T. O. Klassen, I. Kašalynas, A. J. L. Adam, J. R. Gao, T. M. Klapwijk, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, J. L. Reno, "Antenna Model for Wire Lasers", Phys. Rev. Lett., **96**, 173904-1/173904-4 (2006)

[89] W. Maineult, P. Gellie, A. Andronico, P. Filloux, G. Leo, C. Sirtori, S. Barbieri, E. Peytavitt, T. Akalin, J.-F. Lampin, H. E. Beere, D. A. Ritchie, "Metal-metal terahertz quantum cascade laser with micro-transverse-electromagnetic-horn antenna", Appl. Phys. Lett., **93**, 183508-1/183508-3 (2008)

[90] A. J. Gatesman, J. Waldman, M. Ji, C. Musante, S. Yngvesson, "An Anti-Reflection Coating for Silicon Optics at Terahertz Frequencies", IEEE Microw. Guided W., **10**, 264-266 (2000)

[91] S. Adachi, "GaAs and related materials : bulk semiconducting and supelattice properties", World Scientific Publishing CO. Pte. Ltd., chapter 12 (1994)

[92] H. C. Liu, F. Capasso, "Intersubband Transitions in Quantum Wells : Physics and Device Applications II", Semiconduct. Semimet., **86**, 9 (2000)

[93] B. W. Hakki, T. L. Paoli, "Gain spectra in GaAs double-heterostructure injection lasers", J. Appl. Phys., **46**, 1299-1306 (1975)

[94] C. H. Henry, R. A. Logan, F. R. Merritt, "Measurement of gain and absorption spectra in AlGaAs buried heterostructure lasers", J. Appl. Phys., **51**, 3042-3050 (1980)

[95] E. Peter, S. Laurent, C. Sirtori, M. Carras, J. A. Robbo, M. Garcia, X. Marcadet, "Measurement of semiconductor waveguide optical properties in the midinfrared wavelength range", Appl. Phys. Lett., **92**, 021103-1/021103-3 (2008)

[96] V. A. Samoilyukovich, V. P. Gribkovskii, R. V. Efremova, L. A. Kravtsov, A. K. Lyakhovich "Method of determining the internal parameters of p-n junction lasers", J. Appl. Spectrosc., **8**, 50-55 (1968)

[97] J. D. Thomson, H. D. Summers, P. J. Hulyer, P. M. Smowton, P. Blood, "Determination of single-pass optical gain and internal loss using a multisection device", Appl. Phys. Lett., **75**, 2527-2529 (1999)

[98] D. G. Revin, L. R. Watson, D. A. Carder, J. W. Cockburn, M. J. Steer, M. Hopkinson, R. Airey, M. Garcia, C. Sirtori, Y. Rouillard, D. Barate, A. Vicet, "Measurements of optical losses in mid-infrared semiconductor lasers using Fabry-Pérot transmission oscillations", J. Appl. Phys., **95**, 7584-7587 (2004)

[99] E. Benveniste, S. Laurent, A. Vasanelli, C. Manquest, C. Sirtori, F. Teulon, M. Carras, X. Marcadet, "Measurement of gain and losses of a midinfrared quantum cascade laser by wavelength chirping spectroscopy", Appl. Phys. Lett., **94**, 081110-1/081110-3 (2009)

[100] J. Kröll, J. Darmo, S. S. Dhillon, X. Marcadet, M. Calligaro, C. Sirtori, K. Unterrainer, "Phase-resolved measurements of stimulated emission in a laser", Nature, **449**, 698-702 (2007)

[101] J. Lloyd-Hughes, T. Richards, H. Sirringhaus, M. B. Johnston, L. M. Herz, "Exciton dissociation in polymer field-effect transistors studied using terahertz spectroscopy", Phys. Rev. B, **77**, 125203-1/125203-8 (2008)

[102] W. Parz, T. Müller, J. Darmo, M. Austerer, G. Straser, L. Wilson, J. Cockburn, A. Krysa, J. Roberts, K. Unterrainer, "Intersubband gain-induced dispersion", Opt. Lett., **34**, 208-210 (2009)

[103] J. Kröll, J. Darmo, K. Unterrainer, S. S. Dhillon, C. Sirtori, X. Marcadet, M. Calligaro, "Longitudinal spatial hole burning in terahertz quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **91**, 161108-1/161108-3 (2007)

[104] W. Kuehn, W. Parz, P. Gaal, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, T. Müller, J. Darmo, K. Unterrainer, M. Austerer, G. Strasser, L. R. Wilson, J. W. Cockburn, A. B. Brysa, J. S. Roberts, "Ultrafast phase-resolved pump-probe measurements on a quantum cascade laser", Appl. Phys. Lett., **93**, 151106-1/151106-3 (2008)

[105] W. Parz, T. Müller, J. Darmo, K. Unterrainer, M. Austerer, G. Strasser, L. R. Wilson, J. W. Cockburn, A. B. Krysa, J. S. Roberts, "Ultrafast probing of light-matter interaction in a midinfrared quantum cascade laser", Appl. Phys. Lett., **93**, 091105-1/091105-3 (2008)

[106] C. Worrall, J. Alton, M. Houghton, S. Barbieri, H. E. Beere, D. Ritchie, C. Sirtori, "Continuous wave operation of a superlattice quantum cascade laser emitting at 2 THz", Opt. Express, **14**, 171-181 (2006)

[107] S. Barbieri, J. Alton, H. E. Beere, J. Fowler, E. H. Linfield, D. A. Ritchie, "2.9 THz quantum cascade lasers operating up to 70 K in continuous wave", Appl. Phys. Lett., **85**, 1674-1676 (2004)

[108] H. Luo, S. R. Laframboise, Z. R. Wasilewski, G. C. Aers, H. C. Liu, J. C. Cao, "Terahertz quantum-cascade lasers based on a three-well active module", Appl. Phys. Lett., **90**, 04112-1/04112-3 (2007)

[109] J. Alton, S. S. Dhillon, C. Sirtori, A. de Rossi, M. Calligaro, S. Barbieri, H. E. Beere, E. H. Linfield, D. A. Ritchie, "Buried waveguides in terahertz quantum cascade lasers based on two-dimensional surface plasmon modes", Appl. Phys. Lett., **86**, 071109-1/071109-3 (2006)

[110] S. W. Koch, W. W. Chow, "Semiconductor-Laser fundamentals : Physics of the Gain Materials", Springer, (1999)

[111] R. A. Kaindl, M. A. Carnahan, D. Hägele, R. Lövenich, D. S. Chemla, "Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron-hole gas", Nature, **423**, 734-738 (2003)

[112] J. Lloyd-Hughes, H. E. Beere, D. A. Ritchie, M. B. Johnston, "Terahertz magnetoconductivity of excitons and electrons in quantum cascade structures", Phys. Rev. B, **77**, 125322-1/125322-5 (2008)

[113] H. Choi, L. Diehl, Z.-K. Wu, M. Giovannini, J. Faist, F. Capasso, T. B. Norris, "Gain recovery dynamics and photon-driven transport in quantum cascade lasers", Phys. Rev. Lett., **100**, 167401-1/167401-4 (2008)

[114] M. L. Tilton, G. C. Dente, A. H. Paxton, J. Cser, R. K. DeFreez, C. E. Moeller, D. Depatie, "High power, nearly diffraction-limited output from a semiconductor laser with an unstable resonator", IEEE J. Quantum Elect., **27**, 2098-2108 (1991)

[115] I. Hosako, "Antireflection coatings formed by plasma-enhanced chemical-vapour deposition for terahertz-frequency germanium optics", Appl. Opt., **10**, 4045-4048 (2003)

[116] R. Rungsawang, N. Jukam, J. Maysonnave, P. Cavalié, J. Madéo, D. Oustinov, S. S. Dhillon, J. Tignon, P. Gellie, C. Sirtori, S. Barbieri, H. E. Beere, D. A. Ritchie, "Gain enhancement in a terahertz quantum cascade laser with parylene anti-reflection coatings", soumis à Appl. Phys. Lett. (2010)

[117] M. A. Duguay, T. C. Damen, "Picosecond measurements of spontaneous and stimulated emission from injection lasers", Appl. Phys. Lett., **40**, 667-669 (1982)

[118] E. O. Göbel, G. Veith, J. Kuhl, H.-U. Habermeier, K. Lübke, A. Perger, "Direct gain modulation of a semiconductor laser by a GaAs picosecond optoelectronic switch", Appl. Phys. Lett., **42**, 25-27 (1982)

[119] R. Paiella, F. Capasso, C. Gmachl, C. G. Bethea, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, "High-speed operation of gain-switched midinfrared quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **75**, 2536-2538 (1999)

[120] B. E. Cole, J. B. Williams, B. T. King, M. S. Sherwin, C. R. Stanley, "Coherent manipulation of semiconductor quantum bits with terahertz radiation", Nature, **410**, 60-63 (2001)

[121] S. G. Carter, V. Birkedal, C. S. Wang, L. A. Coldren, A. V. Maslov, D. S. Citrin, M. S. Sherwin, "Quantum Coherence in an Optical Modulator", Science, **310**, 651-653 (2005)

[122] C. Mauro, R. P. Green, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, D. A.Ritchie, "Amplification of terahertz radiation in quantum cascade structures", J. Appl. Phys., **102**, 063101-1/063103-3 (2007)

[123] D. H. Auston, "Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon", Appl. Phys. Lett., **26**, 101-103 (1975)

[124] J. Lloyd-Hughes, S. K. E. Merchant, L. Fu, H. H. Tan, C. Jagadish, E. Castro-Camus, M. B. Johnston, "Influence of surface passivation on ultrafast carrier dynamics and terahertz radiation generation in GaAs", Appl. Phys. Lett., **89**, 232102-1/232102-3 (2006)

[125] A. E. Siegman, "Lasers", University Science Books, Chapter 25 (1986)

[126] R. Paiella, R. Martini, F. Capasso, C. Gmachl, H. Y. Hwang, D. L. Sivco, J. N. Baillargeon, A. Y. Cho, "High-frequency modulation without the relaxation oscillation resonance in quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **79**, 2526-2528 (2001)

[127] I. Doerr, L.-T. Hwang, G. Sommer, H. Oppermann, L.Li, M. Petras, S. Korf, F. Sahli, T. Myers, M. Miller, W. John, "Parameterized models for a RF Chip-to-substrate interconnect", Proc. Electro. Comp. Techn. Conf., **51**, 831-837 (2001)

[128] S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, "Integrated terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **96**, 061107-1/061107-3 (2010)

[129] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, S. T. Cundiff, "Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis", Science, **288**, 635-639 (2000)

[130] E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleinberg, F. Krausz, "Attosecond control and measurement : Lightwave electronics", Science, **317**, 1100-1109 (2007)

[131] A. Baltuška, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, CH. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, F. Krausz, "Attosecond control of electronic processes by intense light fields", Nature, **421**, 611-615 (2003)

[132] S. Barbieri, P. Gellie, G. Santarelli, L. Ding, W. Maineult, C. Sirtori, R. Colombelli, H. Beere, D. Ritchie, "Phase-locking of a 2.7 THz quantum cascade laser to a mode-locked erbium-doped fibre laser", Nature Photonics, **4**, 636-640 (2010)

[133] T. Yasui, H. Takahashi, Y. Iwamoto, H. Inaba, K. Minoshima, "Continuously tunable, phase-locked, continuous-wave terahertz generator ased on photomixing of two continuous-wave lasers locked to two independent optical combs", J. Appl. Phys., **107**, 033111-1/033111-7 (2010)

[134] G. Mouret, F. Hindle, A. Cuisset, C. Yang, R. Bocquet, M. Lours, D. Rovera, "THz photomixing synthesizer based on a fiber frequency comb", Opt. Express, **17**, 22031-1/22031-10 (2009)

[135] A. Baryshev, J. N. Hovenier, A. J. L. Adam, I. Kašalinas, J. R. Gao, T. O. Klaassen, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu, J. L. Reno, "Phase locking and spectral linewidth of a two-mode terahertz quantum cascade laser", Appl. Phys. Rev., **89**, 031115-1/031115-3 (2006)

[136] D. Rabanus, U. U. Graf, M. Philipp, O. Ricken, J. Stutzki, B. Vowinkel, M. C. Wiedner, C. Walther, M. Fischer, J. Faist, "Phase locking of a 1.5 terahertz quantum cascade laser and use as a local oscillator in a heterodyne HEB receiver", Opt. Express, **17**, 1159-1168 (2009)

[137] A. E. Siegman, "Lasers", University Science Books, Chapter 29 (1986)

[138] A. E. Siegman, "Lasers", University Science Books, Chapter 1 (1986)

[139] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, M. Helm, T. Dekorsy, "Optimum excitation conditions for the generation of high-electric-field terahertz radiation from an oscillator-driven photoconductive device", Opt. Lett., **31**, 1546-1548 (2006)

[140] C. Y. Wang, L. Kuznetsova, V. M. Gkortsas, L. Diehl, F. X. Kärtner, M. A. Belkin, A. Belyanin, X. Li, D. Ham, H. Schneider, P. Grant, C. Y. Song, S. Haffouz, Z. R. Wasilewski, H. C. Liu, F. Capasso, "Mode-locked pulses from mid-infrared Quantum Cascade Lasers", Opt. Express, **17**, 12929-12943 (2009)

[141] S. Barbieri, W. Maineult, S. S. Dhillon, C. Sirtori, J. Alton, N. Breuil, H. E. Beere, D. A. Ritchie, "13 GHz direct modulation of terahertz quantum cascade lasers", Appl. Phys. Lett., **91**, 143510-1/143510-3 (2007)