



HAL
open science

Spectroscopie dans le domaine temporel et non-linéarités optiques résonantes des lasers à cascade quantique térahertz

Julien Madéo

► **To cite this version:**

Julien Madéo. Spectroscopie dans le domaine temporel et non-linéarités optiques résonantes des lasers à cascade quantique térahertz. Physique Générale [physics.gen-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT : . tel-00661325

HAL Id: tel-00661325

<https://theses.hal.science/tel-00661325>

Submitted on 19 Jan 2012

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

Julien MADÉO

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

Sujet de la thèse :

**Spectroscopie dans le domaine temporel et non-linéarités optiques
résonantes des lasers à cascade quantique térahertz**

Soutenue le 12 octobre 2011 devant le jury composé de :

M. Alberto BRAMATI (Président du jury)
M. Raffaele COLOMBELLI (Examineur)
M. Sukhdeep DHILLON (Co-directeur de thèse)
Mme Sara DUCCI (Examineur)
M. Patrick MOUNAIX (Rapporteur)
M. Roland TEISSIER (Rapporteur)
M. Jérôme Tignon (Directeur de thèse)

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord mon jury de thèse qui m'a fait l'honneur de juger mes travaux. Je remercie tout particulièrement Patrick Mounaix et Roland Teissier qui ont acceptés d'être rapporteurs, de lire en détail mon manuscrit et pour leurs corrections et questions d'une grande pertinence. Je remercie également Alberto Bramati, Sara Ducci et Raffaella Colombelli pour l'intérêt qu'ils ont portés à mon travail de thèse.

Je suis arrivé dans l'équipe de spectroscopie THz du LPA pendant mon stage de Master. J'y ai découvert une équipe et un laboratoire d'une grande richesse, tant du point de vue scientifique que humain. Je n'ai pas hésité une seule seconde à poursuivre l'aventure en thèse. Je remercie Jérôme Tignon de m'avoir accueilli dans son équipe, d'avoir suivi l'avancement de mes travaux. Merci beaucoup pour m'avoir fait partager tes expériences et tes connaissances, pour tes conseils précieux et tes questions qui visent justes à chaque fois. Un immense merci à Sukhdeep Dhillon pour son encadrement sans faille. Grâce à toi Sukhy, j'ai énormément appris durant ces trois années. Merci pour tous tes conseils toujours utiles, ton enthousiasme, ton regard "avec sourcils froncés" quand je m'éloignais du droit chemin et pour toujours avoir été à l'écoute.

Merci à tous les nouveaux et anciens membres de l'équipe THz. Je remercie Nathan Jukam pour son aide précieuse et sa bonne humeur permanente. Merci à Dimitri Oustinov qui m'a permis de m'intégrer aisément dans l'équipe et pour ces longues discussions sur notre passion commune. Un grand merci à Pierrick Cavalié, qui prend la suite des mes travaux, et qui a grandement contribué à certains résultats importants. Un grand merci à Nok Rungsawang, Jean Maysonnave, Kenneth Maussang et Joshua Freeman, ce fut un réel plaisir de travailler avec vous.

Je remercie vivement tous les collaborateurs qui ont permis d'accomplir ce travail. Merci à Carlo Sirtori pour ses conseils avisés et m'avoir fait partager sa grande connaissance des lasers à cascade. Merci à toutes les équipes et personnes qui nous ont fournis d'excellents échantillons, P. Filloux et C. Manquest de Paris 7, E. Linfield et A. G. Davies de l'Université de Leeds, H. Beere et D. A. Ritchie de l'Université de Cambridge, R. Collombelli et E. Strupiechonski de l'IEF et X. Marcadet de Thalès.

Je souhaite remercier également Roger Gohier et Loïc Becerra de la salle blanche de Paris 6 pour la réalisation des masques de lithographies optiques qui prenaient des dizaines d'heures. Un grand merci à Mickaël Rosticher de la salle blanche de l'ENS pour toutes ces astuces que tu m'as appris et l'ambiance conviviale qui y règne.

Je remercie tous les services techniques de l'ENS qui possèdent un savoir-faire exceptionnel. Merci à Olivier Andrieu et François-René Ladan d'avoir fourni tant

d'efforts pour toujours nous fournir en hélium liquide. Merci à Pascal Morfin, Jules Silembo et à l'atelier général de mécanique pour les magnifiques pièces réalisées et nécessaires à nos manip'. Merci à David Darson, Anne Denis et Philippe Pace pour toute l'électronique de pointe.

Merci à Jean-Marc Berroir de m'avoir permis de rejoindre le LPA. Un grand merci à Anne Matignon et Fabienne Renia l'énorme travail qu'elles accomplissent chaque jour. Je remercie tous les membres du LPA et du département de physique avec qui j'ai pu avoir d'enrichissantes discussions scientifiques (ou non) ainsi que tous les doctorants et postdoc avec qui j'ai partagé mon quotidien et bu quelques bières à l'occasion. Dans le désordre, merci à C. Fltyzanis, J. Olejnik, N. Garroum, L.-A. De Vaultier, F.-R. Jasnot, N. Moran, A. Sterdyniak, M. Filippone, Camille, Simon, Simon et Arnaud.

Je tiens à remercier Caroline qui m'a soutenue (et supportée) pendant ces années, dans les bons moments comme dans les moments difficiles.

Je remercie mes parents, Evelyne et Luigi, de m'avoir permis d'en arriver jusqu'ici et pour leur soutien inconditionnel pendant toutes ces années. Merci à toute ma famille : Lorène, Angelina, Marie-Christine, Patrice, Virginia, Philippe, Elona, Raphaël. Merci également à mes amis Benjamin, Vincent et Hélène.

Enfin, un grand merci à tous ceux que j'oublie.

Résumé

La gamme térahertz est une région du spectre électromagnétique située à l'interface entre les techniques optiques et électroniques de génération et de détection d'un rayonnement. Elle est qualifiée de « fossé » technologique THz en raison du manque de dispositifs alors que les applications potentielles concernant cette gamme sont vastes. Cette thèse comporte trois axes de recherches articulés autour d'une source THz prometteuse : les lasers à cascade quantique (LCQ). Ces hétérostructures de semiconducteurs sont des lasers unipolaires dont l'émission repose sur la relaxation d'électrons entre des états confinés de la bande de conduction (transitions intersous-bandes). Tout d'abord, un système de spectroscopie THz dans le domaine temporel, adapté à l'étude du spectre du gain des LCQ THz, a été développé et optimisé. Des sources d'impulsions THz (antennes photoconductrices) ont été réalisées pour ce système permettant d'accéder à une large bande spectrale. Puis, ce système a été employé pour accéder au spectre du gain de LCQ THz, un paramètre clé, et en particulier appliqué à l'étude de LCQ hétérogènes (i.e. comprenant plus d'une région active permettant une émission large bande). Ces études ont permis de déterminer les facteurs limitant et d'améliorer leurs dessins, conduisant à un gain large et une émission laser à deux fréquences simultanément. Enfin, les propriétés non-linéaires résonantes de LCQ THz ont été étudiées. Une exaltation de la susceptibilité non-linéaire a été démontrée en accordant un faisceau proche-IR avec des transitions interbandes du LCQ. En combinant cela à la grande puissance THz intracavité des LCQ, la conversion de l'émission THz du LCQ sur une porteuse optique proche-IR est montrée avec des efficacités élevées (0.12 %).

Mots clés : Lasers à cascade quantique, Téraherz, Spectroscopie THz dans le domaine temporel, Optique non-linéaire résonante, Antennes photoconductrices, Spectre du gain

Abstract

The terahertz (THz) range is a region of the electromagnetic spectrum that lies between optical and electronic techniques to generate and detect radiation. It is also known as the THz "gap" because of a critical lack of devices whereas potential applications are wide ranging. This thesis comprises three research areas, all related to a promising THz source : the Quantum Cascade Laser (QCL). QCLs are unipolar lasers based on semiconductor heterostructures where emission relies on electron relaxation between confined states in the conduction band i.e. intersubband transitions. In the first part of this thesis, a THz time domain spectroscopy (TDS) system was developed and optimised that would be adapted to the study of the spectral gain of THz QCLs. Specifically THz pulse sources (photoconductive antennas) for THz TDS were realised allowing access to a large frequency bandwidth. This system development was used to access the spectral gain of THz QCLs, a key parameter of the device, and applied in particular to the study of heterogeneous THz QCLs (i.e. comprising more than one zone active for broadband emission). The investigations permitted the limiting factors to be determined, improvements in the designs and a resulting broad gain with laser operation at two frequencies simultaneously. Finally, the resonant non-linear optical properties of THz QCLs were studied. An enhancement of the non-linear susceptibility was demonstrated by bringing an injected NIR beam in resonance with interband transitions of the QCL. Combined with the large intracavity THz power of the QCL, we show that it is possible to convert the THz QCL emission onto a near-infrared optical carrier with large efficiencies (0.12%).

Keywords : Quantum cascade lasers, Terahertz, THz time-domain spectroscopy, Resonant non-linear optics, Photoconductive antennas, Gain spectrum

Table des matières

Introduction	1
1 Dispositifs et techniques pour la gamme THz	7
1.1 La gamme THz	7
1.2 La spectroscopie THz dans le domaine temporel	10
1.2.1 Généralités	10
1.2.2 Composants de la spectroscopie THz dans le domaine temporel	10
1.2.3 Echantillonnage en temps équivalent	15
1.2.4 Montage expérimental	17
1.3 Les antennes photoconductrices	19
1.3.1 Description générale	19
1.3.2 Modèle de Drude-Lorentz	20
1.3.3 Matériaux pour les antennes photoconductrices	23
1.4 Références	24
2 Les lasers à cascade quantique térahertz	27
2.1 Ingénierie des lasers à cascade quantique	29
2.1.1 Niveaux d'énergie dans une hétérostructure de semiconducteurs	29
2.1.2 Fonctionnement des LCQ	32
2.1.3 Régions actives	35
2.1.4 L'injecteur	38
2.2 Géométrie des LCQ	38
2.2.1 Description	40
2.2.2 Pertes optiques	41
2.2.3 Guidage par plasmons de surface	42
3 Les antennes photoconductrices interdigitées	45
3.1 Antennes photoconductrices à géométrie interdigitée	46
3.1.1 Description des antennes photoconductrices interdigitées	47
3.1.2 Avantages de la structure interdigitée	50
3.1.3 Inconvénients des antennes interdigitées	50
3.1.4 Modèle de Drude-Lorentz appliqué aux antennes photoconductrices interdigitées	51
3.1.5 Simulations numériques	53
3.1.6 Mesures et validité du modèle	53
3.2 Fabrication des antennes photoconductrices interdigitées	55
3.2.1 Techniques de fabrication utilisées	56
3.2.2 Protocole de fabrication des antennes interdigitées	59
3.3 Etude de l'accordabilité des antennes photoconductrices interdigitées	66

3.3.1	Mesure des spectres et champs électriques THz des antennes fabriquées	66
3.3.2	Comparaison aux données expérimentales	66
3.4	Optimisation du spectre émis : émission par réflexion	70
3.5	Conclusion	72
4	Mesures du gain de lasers à cascade quantique THz	73
4.1	Mesure du gain dans un laser	75
4.1.1	Techniques classiques	75
4.1.2	Mesure de gain par spectroscopie THz	75
4.2	Protocole expérimental	76
4.2.1	Techniques et matériels pour l'étude des LCQ	76
4.2.2	Mesure et calcul du gain	80
4.3	Lasers homogènes	84
4.3.1	Description de l'échantillon V455	84
4.3.2	Résultats	86
4.3.3	Comparaison du gain avec les pertes calculées	89
4.3.4	Absorptions à hautes fréquences dans la structure	90
4.4	Lasers hétérogènes	94
4.4.1	Laser BTC SP 2.5 et 2.9 THz - V464	95
4.4.2	Laser BTC SP 2.6 et 2.8 THz - V653	102
4.5	Conclusion	109
5	Optique non-linéaire résonante dans les LCQ	111
5.1	Optique non-linéaire	114
5.1.1	Equation d'onde non-linéaire	115
5.1.2	Mélange à trois ondes	115
5.1.3	Susceptibilité non linéaire d'ordre 2	118
5.1.4	Processus d'ordre trois	119
5.2	Etat de l'art	120
5.2.1	Conversion de fréquences avec source THz externe	121
5.2.2	Conversion de fréquences avec un LCQ	124
5.2.3	Objectifs de ce travail	127
5.3	Montage expérimental	128
5.3.1	Montage en alimentation continue	129
5.3.2	Montage en alimentation impulsionnelle	129
5.3.3	Technique d'acquisition des spectres	130
5.3.4	Description de l'échantillon étudié	131
5.4	Résultats	134
5.4.1	Mise en évidence expérimentale	134
5.4.2	Influence du courant injecté dans le LCQ	136
5.4.3	Influence de l'énergie d'excitation	137
5.4.4	Efficacité de conversion	138
5.4.5	Influence de la polarisation du faisceau de pompe	138

5.4.6	Spectres haute résolution	141
5.4.7	Comparaison de différents échantillons	142
5.4.8	Origine des résonances	147
5.5	Modèle du processus non-linéaire d'ordre deux avec accord de phase	150
5.5.1	Accord de phase	151
5.5.2	Calcul des indices dans le proche-IR et le THz	152
5.5.3	Estimation expérimentale de la susceptibilité non-linéaire	155
5.5.4	Effet des pertes sur la longueur d'interaction	155
5.6	Conclusion et perspectives	155
5.6.1	Perspectives de ce travail	156
5.6.2	Liens avec des applications	157
Conclusion		159
A Calibration des caractéristiques L-I-V avec le champ électrique		163
B Calcul des indices proche-IR et THz dans le GaAs		167
C Liste des publications et communications		169
Bibliographie		175

Introduction

La gamme térahertz ($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$), aussi qualifiée d'infrarouge lointain est une région du spectre électromagnétique située à l'interface entre les techniques optiques et électroniques de génération et de détection d'un rayonnement. Typiquement, elle se situe entre 200 GHz et 10 THz (ou à des longueurs d'ondes comprises entre 1.5 mm et $30 \mu\text{m}$), ce qui correspond à des faibles énergies (entre 1 et 40 meV). Il existe déjà certaines sources capables de rayonner à ces fréquences mais dont la puissance s'effondre dans cette gamme de fréquences (diodes Gunn, par exemple) ou bien est très faible (sources photoconductives). Des sources puissantes sont également utilisées en laboratoire (lasers à électrons libres ou lasers pompés CO_2) mais demeurent extrêmement massives et couteuses [Ferguson 2002]. Ces sources sont utiles pour la recherche en laboratoire mais ne sont pas compatibles avec des applications industrielles ou commerciales. La difficulté de réaliser des sources dans cette gamme peut se comprendre simplement que ce soit du point de vue de l'électronique ou de la photonique. En effet, les systèmes électroniques ne sont pas encore assez rapides pour générer des oscillations à ces fréquences. Et, du point de vue de la photonique, obtenir une émission de photons THz est un challenge lorsque l'énergie des transitions radiatives employées (dans le cas d'une diode laser, par exemple) est comparable à l'énergie thermique (kT). Cette région du spectre électromagnétique est donc qualifiée de "fossé" technologique THz en raison du manque de dispositifs fiables, compacts et bon marché alors que les applications potentielles concernant cette gamme couvrent de multiples domaines tels que la détection de substances (drogues, explosifs, polluants, etc...) présentant des signatures spectroscopiques spécifiques dans la gamme THz. Disposer de dispositifs THz présente également un intérêt pour la sécurité. En effet, un grand nombre de diélectriques sont transparents dans cette gamme (textiles, bétons, plastiques, etc...) [Miles 2006]. Ces propriétés s'étendent également, par exemple, au contrôle qualité non destructif pour l'industrie des semiconducteurs ou pharmaceutique [Shen 2008]. Du point de vue de la physique, disposer de sources ou techniques dans cette gamme permet d'étudier des matériaux présentant des interactions de faibles énergies (hétérostructures de semiconducteurs, excitations de spins, etc...) [Tonouchi 2007].

Une source prometteuse pour combler ce fossé technologique est le Laser à Cascade Quantique (LCQ) [Liu 2000]. Les LCQ sont des lasers unipolaires à injection électrique, i.e. dont seuls les électrons participent à l'émission de photons. Ces sources sont des hétérostructures de semiconducteurs dont l'émission de photons est réalisée via des transitions intersousbandes dans la bande de conduction, ce qui diffère du fonctionnement des diodes lasers dont l'émission repose sur des transitions interbandes. Le premier LCQ a été réalisé aux Bell Labs en 1994 [Faist 1994] et émettait dans le moyen-infrarouge ($\lambda = 4.2 \mu\text{m}$). Ce n'est qu'en 2002 que le premier LCQ THz a été élaboré [Köhler 2002]. Si aujourd'hui les LCQ émettant dans

le moyen-IR fonctionnent, pour certains, jusqu'à température ambiante, ce n'est pas encore le cas des LCQ THz dont le record s'établit à 186 K [Kumar 2009]. En effet, à ces longueurs d'ondes, plusieurs problèmes se posent dont le principal concerne la conservation d'une inversion de population (permettant l'effet laser) lorsque l'énergie d'activation thermique (kT) devient comparable à l'énergie des transitions radiatives [Williams 2007]. Un autre aspect important des LCQ THz concerne la cavité optique qui doit permettre de confiner le mode THz dans un guide aux dimensions comparables ou inférieures à la longueur d'onde d'émission. C'est d'ailleurs grâce à un dessin permettant d'obtenir une inversion de population et à un guide d'onde adapté aux fréquences THz que le premier LCQ THz a pu voir le jour. De nombreux travaux se sont penchés sur l'extraction de lumière des LCQ THz pour obtenir une émission monomode en utilisant des résonateurs à rétroaction distribuée (*Distributed Feedback*) [Malher 2004] ou une émission verticale en ajoutant des cristaux photoniques [Chassagneux 2009].

Mais, la recherche sur les LCQ ne s'arrête pas à les rendre plus performants en température. Ces dispositifs présentent des propriétés qui méritent également certains développements. Ils sont très flexibles du point de vue de l'ingénierie quantique et il est possible de réaliser des LCQ spécifiques à certaines applications. Par exemple, créer des LCQ THz émettant à plusieurs fréquences simultanément est d'un grand intérêt pour la spectroscopie de substances [Freeman 2010]. Réaliser des LCQ THz à émission large bande, insérés dans une cavité externe, permettrait de disposer d'une source THz accordable [Xu 2007]. Les LCQ sont également prometteur dans le domaine de l'optique non-linéaire car ils sont très compacts et les densités de puissance intracavité sont très élevées (comparables aux puissances délivrées par un laser à électrons libres). Cela combiné aux très fortes susceptibilités non-linéaires dans les puits quantiques des LCQ permet d'obtenir des processus de mélange d'ondes ou de génération de seconde harmonique efficaces [Belkin 2007].

Pour étudier le fonctionnement des LCQ THz, et plus particulièrement ce qui limite leur fonctionnement en température, ou encore évaluer leurs performances, la technique de spectroscopie THz dans le domaine temporel (*THz Time-Domain Spectroscopy*) se montre particulièrement adaptée. Elle a été mise au point pour l'étude des LCQ parallèlement à Vienne [Kröll 2007] et à Paris, dans notre équipe au LPA [Jukam 2008a]. La spectroscopie THz permet de mesurer un champ électrique THz complexe (amplitude et phase) avec un rapport signal sur bruit très élevé de l'ordre de 10000 :1, typiquement [Han 2001a]. Elle repose sur la génération et la détection d'impulsions THz par une technique cohérente et verrouillée en phase.

Cette technique nous permet d'étudier la façon dont une impulsion THz très brève et présentant un spectre large (0.1 - 4 THz) est transmise à travers un LCQ THz. L'analyse de cette impulsion transmise permet d'accéder à une grandeur fondamentale dans le fonctionnement des lasers en général, le gain et les pertes optiques. Et même plus, d'une part, l'utilisation d'impulsions THz à spectre large permet de

mesurer le spectre du gain, ce qui donne des informations riches sur le fonctionnement du LCQ en dehors de la fréquence d'émission laser (les pertes par absorption, par exemple). D'autre part, la mesure verrouillée en phase n'est pas sensible à l'émission laser du LCQ (dont le déclenchement n'a pas relation de phase fixe avec les impulsions utilisées car gouvernée par l'émission spontanée [Oustinov 2010]), ce qui permet d'accéder au spectre du gain en-dessous et au-delà du seuil laser. En couplant ces mesures à des simulations de structure de bande du LCQ étudié, il est possible d'identifier les états impliqués dans le gain ou les pertes observées, pouvant être la cause de dysfonctionnements [Jukam 2009b].

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à l'optimisation de cette technique pour la mesure du gain des LCQ THz. En effet, les LCQ THz présentent généralement une émission entre 1 et 5 THz et il faut donc disposer de sources d'impulsions permettant d'accéder à cette gamme de fréquences. De plus, élargir le spectre d'émission de ces sources d'impulsions permet de mesurer le spectre du gain sur une plus grande gamme spectrale et d'obtenir une information plus riche sur ces dispositifs. Pour réaliser cela, nous avons étudié les sources d'impulsions THz utilisées au laboratoire, des antennes photoconductrices [Auston 1984a]. Leur émission repose sur la photo-génération de charges en excitant avec des impulsions optiques ultra-brèves (800 nm, 100 fs) un matériau semiconducteur entre des électrodes métalliques polarisées. Les charges photo-crées, soumises à un fort champ électrostatique, créent un courant transitoire très bref auquel est associé un rayonnement dans la gamme THz. Nous avons fabriqué et optimisé un type d'antenne particulier à géométrie interdigitée [Dreyhaupt 2005]. Celles-ci possèdent une grande surface d'illumination, qui permet d'utiliser de fortes puissances optiques et limite la diffraction du faisceau THz émis, et un petit espace entre électrodes, autorisant une faible consommation électrique et une modulation rapide. L'étude que nous avons réalisée sur ces antennes montre qu'il est possible de décaler le spectre d'émission vers des fréquences plus élevées en ajustant la largeur de l'espace entre électrodes lors de la fabrication [Madéo 2010]. Par la suite, en positionnant l'antenne selon un schéma en réflexion dans le montage expérimental, il est possible de s'affranchir de la dispersion de l'indice du substrat (allongeant la durée des impulsions) et d'étendre le spectre d'émission des antennes jusqu'à des fréquences utiles de l'ordre de 6 THz.

Par la suite, nous avons étudié le gain de différents LCQ THz par spectroscopie THz. Nous avons mené ces travaux en étroite collaboration avec J. Freeman du Cavendish Laboratory de l'Université de Cambridge. Nous avons commencé par étudier un LCQ THz homogène (émettant à une unique fréquence), avons mesuré le spectre de son gain et montré expérimentalement la présence d'un blocage du gain (signe d'un effet laser). L'optimisation de l'expérience précédemment réalisée nous a permis de mettre en évidence la présence d'absorptions à hautes fréquences, ce qui n'avait jamais pu être observé auparavant. Puis, nous nous sommes penchés sur l'étude d'un LCQ hétérogène prévu pour émettre simultanément à deux longueurs d'ondes. Les études que nous avons menées montrent que le gain des dispositifs hé-

térogènes présentent un spectre large (au lieu de présenter un gain étroit associé à chaque fréquence laser) [Freeman 2010]. La technique de spectroscopie THz nous a permis d'identifier les causes des faibles performances d'un premier échantillon et d'en produire un second, en ajustant le dessin de la structure, qui a présenté les performances attendues, i.e. un LCQ THz émettant simultanément à deux fréquences et présentant un spectre du gain large.

Dans la dernière partie de cette thèse, nous abordons une thématique nouvelle qui concerne l'étude des non-linéarités optiques résonantes des LCQ THz. Plus particulièrement, nous nous sommes intéressés à la réalisation d'un mélange d'ondes dans un LCQ THz permettant la génération de la somme et de la différence des fréquences entre un faisceau proche-IR et la fréquence d'émission du LCQ. La réalisation d'un tel mélange (ou conversion de fréquences) dans un dispositif compact est tout à fait adapté aux réseaux de télécommunications par fibres optiques, ou bien, par exemple, pour réaliser de la spectroscopie d'ondes THz en s'appuyant sur les technologies de l'infrarouge. Différents travaux sur ce sujet, spécifique au mélange impliquant une onde THz et proche-IR ont été réalisés en utilisant, par exemple, des multipuits quantiques [Carter 2003] conduisant à une efficacité de conversion d'environ 0.2 % mais impliquant l'utilisation d'un laser à électrons libres. Ce type de conversion a même été démontrée dans un LCQ THz [Dhillon 2007] mais avec une faible efficacité (10^{-4}) s'appuyant sur une non-linéarité du matériau massif (relativement faible). Nous nous sommes intéressés à réaliser un tel mélange d'ondes en excitant de manière résonante les transitions interbandes dans les puits quantiques formant le LCQ THz, ce qui permet d'exalter la susceptibilité non-linéaire. Le processus non-linéaire tire parti également de la compacité et de la forte densité de puissance intracavité des LCQ THz (équivalente aux lasers à électrons libres). De plus, nous nous sommes placés dans une géométrie pour laquelle toutes les ondes impliquées se propagent colinéairement dans la cavité optique du LCQ. Cette géométrie permet de tirer avantage d'une grande longueur d'interaction pour réaliser le mélange, mais nécessite de considérer les questions d'accord de phase. Dans cette configuration, nous avons pu obtenir un rendement de conversion de l'ordre de 0.12 %, deux ordres de grandeurs supérieurs aux travaux utilisant des LCQ et comparable aux études impliquant l'utilisation d'un laser à électrons libres comme source THz. Nous avons interprété ce mélange d'ondes par un processus d'ordre deux tenant compte des pertes par absorption de la pompe et dans lequel l'accord de phase est permis grâce à la dispersion de l'indice du GaAs au voisinage des résonances interbandes.

Ce manuscrit se découpe en cinq chapitres. Les deux premiers chapitres précisent le cadre dans lequel se place nos travaux, décrivent les techniques expérimentales employées et le fonctionnement des LCQ THz. Les trois derniers chapitres traitent des études que nous avons réalisées, à savoir : l'optimisation de l'expérience de spectroscopie THz pour étudier le gain de LCQ THz, la mesure du gain de LCQ THz homogènes et hétérogènes et les propriétés non-linéaires résonantes des LCQ THz.

Le **chapitre 1** présente brièvement la gamme THz et pourquoi elle suscite un grand intérêt tant du point de vue de la recherche que des applications. Nous décrivons la technique de spectroscopie THz dans le domaine temporel, la méthode de détection cohérente utilisée et le fonctionnement des antennes photoconductrices.

Le **chapitre 2** présente le fonctionnement des lasers à cascade quantique THz. Le principe de fonctionnement est introduit via l'ingénierie quantique qui permet la réalisation de tels dispositifs en ajustant les niveaux d'énergie dans une structure composée de puits quantiques soumis à un champ électrique. Nous présentons différents dessins de structures de bandes permettant d'obtenir une inversion de population entre sousbandes (et l'effet laser). Ce chapitre se termine par une description de la géométrie des LCQ THz, des pertes optiques dans ces structures et des guides d'onde utilisés pour permettre le confinement des ondes THz dans la cavité.

Le **chapitre 3** décrit l'étude que nous avons réalisée pour optimiser l'expérience de spectroscopie THz permettant de mesurer le gain et les pertes spectrales d'un LCQ THz. Nous présentons l'étude qui a permis d'ajuster le spectre d'émission d'antennes photoconductrices interdigitées. Pour cela, nous avons fabriqué différentes antennes et comparé leur émission à un modèle simple de type Drude-Lorentz que nous avons adapté à la particularité des antennes interdigitées. Enfin, nous montrons que positionner une antenne selon un schéma en réflexion dans le montage expérimental permet d'étendre la gamme spectrale jusqu'à 6 THz (contre 5 THz auparavant).

Le **chapitre 4** commence par une description du protocole expérimental permettant de mesurer le gain de LCQ par spectroscopie THz. Après cette description, nous présentons l'étude menée sur un LCQ THz homogène mettant en évidence la présence d'absorptions hautes fréquences, puis le travail concernant l'amélioration des performances d'un LCQ hétérogène par cette technique.

Le **chapitre 5** présente l'étude des propriétés non-linéaires résonantes des LCQ THz. Après un état de l'art détaillant certains travaux sur le sujet et une description du montage expérimental, nous présentons le résultat des mesures démontrant la présence d'un mélange d'ondes efficace qui doit son origine à une non-linéarité résonante avec les transitions interbandes dans les puits quantiques d'un LCQ THz. Puis, nous discutons de l'origine des résonances observées et proposons un modèle utilisant un processus du second ordre pour décrire l'origine de cette interaction non-linéaire qui fait apparaître de nouvelles conditions d'accord de phase.

Dispositifs et techniques pour la gamme THz

Ce chapitre a pour objet d'introduire le cadre dans lequel s'inscrit cette thèse. Dans un premier temps, nous décrivons la gamme THz et ses spécificités, ainsi que les enjeux technologiques et de recherche qu'elle véhicule. Ce travail dans son ensemble s'articule autour d'une source de rayonnement THz : les lasers à cascade quantique. Pour étudier certaines propriétés de ces sources, telles que le gain et les pertes optiques, nous avons mis au point et employé au laboratoire un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous présentons son fonctionnement afin de permettre au lecteur de mieux appréhender les résultats expérimentaux du **chapitre 4** qui décrit les études du gain de LCQ THz. Enfin, cette technique nécessite elle-même l'emploi de sources d'impulsions THz appelées antennes photoconductrices dont nous avons réalisé une étude, présentée au **chapitre 3**, dans le but d'optimiser l'expérience de mesure du gain des LCQ. C'est pourquoi nous dressons, dans la troisième partie de ce chapitre, une description générale de ces dispositifs utilisés pour générer des impulsions THz. La description des LCQ, objet central de cette thèse, est faite au **chapitre 2**.

1.1 La gamme THz

La gamme THz ou infrarouge lointain ($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$) est une région du spectre électromagnétique située à l'interface entre les techniques optiques et électroniques pour générer et détecter un rayonnement électromagnétique. Généralement, il est admis que cette région du spectre correspond à une gamme de fréquences comprises entre 200 GHz et 10 THz environ. Pour se donner une idée, ces fréquences correspondent à des énergies comprises entre environ 1 et 40 meV et à des longueurs d'onde situées entre 1.5 mm et $30 \mu\text{m}$ (voir figure 1.1). Le tableau suivant donne les ordres de grandeurs pour une onde dont la fréquence est de 1 THz.

Fréquence	Temps	Energie	Longueur d'onde	Température
1 THz	1 ps	4.1 meV	$300 \mu\text{m}$	48 K

Si, aujourd'hui, des technologies matures et maîtrisées ont vu le jour tant pour les basses énergies (radio et micro-ondes) que les plus hautes énergies (infrarouge,

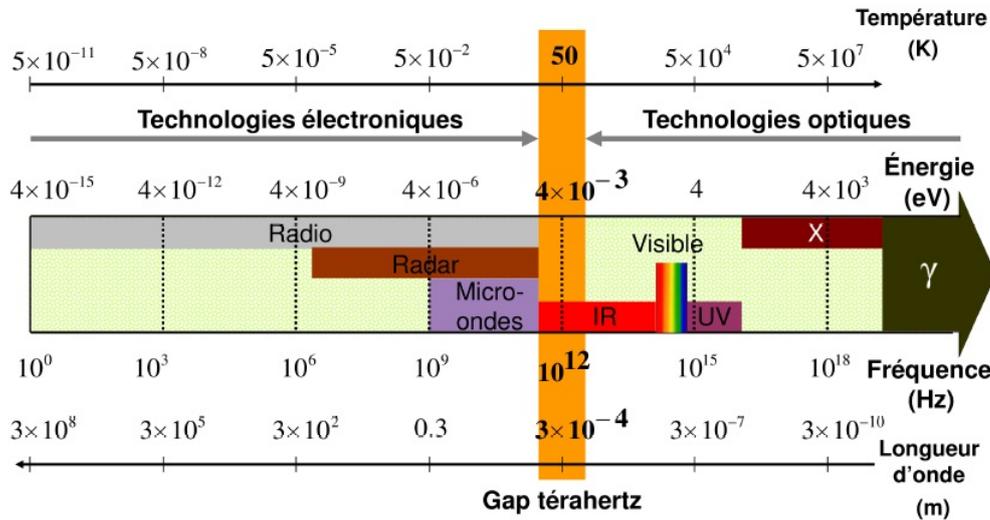


FIGURE 1.1 – Spectre du rayonnement électromagnétique spécifiant la situation du gap THz. Figure issue de [Oustinov 2011].

visible, UV, etc...) et ont trouvé de nombreuses applications, ce n'est pas le cas pour la gamme THz. Effectivement, cette région du spectre est qualifiée de fossé technologique THz ou "gap THz" en raison du manque de sources compactes, fiables et bon marché alors que les applications potentielles couvrent de nombreux domaines ? [Tonouchi 2007]. La figure 1.2 permet de mieux comprendre l'origine de cette appellation. Sur ce graphe est représenté la puissance de différentes sources en fonction de la fréquence (en échelle log). Cette figure montre, aux "basses" fréquences, l'effondrement de la puissance des sources électroniques (telles que les diodes Gunn ou IMPATT [Glover 2005]). Il en est de même du côté des techniques optiques où, par exemple, la puissance des diodes lasers à semiconducteurs III-V chute proche de la gamme THz. Entre 1 et 10 THz, diverses méthodes existent pour générer un tel type de rayonnement comme la rectification optique dans un cristal non-linéaire [Xu 1992] ou la photoconductivité [Auston 1984a], mais nécessitent une source externe. Les LCQ THz, sources qui nous intéressent dans cette thèse, ont la capacité de combler ce fossé technologique et de plus sont très compacts (comparées aux méthodes nécessitant une source externe).

Le rayonnement THz est de faible énergie et non-ionisant. En cela, son utilisation est adaptée à l'étude non destructive de matériaux. Par exemple, des techniques d'imagerie permettent de révéler les esquisses sous différentes couches de peintures d'œuvres d'art [Abraham 2010]. Dans un autre domaine, de nombreuses molécules présentent des raies d'absorption (liées à des transitions vibrationnelles ou rotationnelles) dans ce spectre tel que l'eau [von Exeter 1989] et même des molécules plus complexes comme l'ADN [Bucherseifer 2000]. Ce type de rayonnement est donc

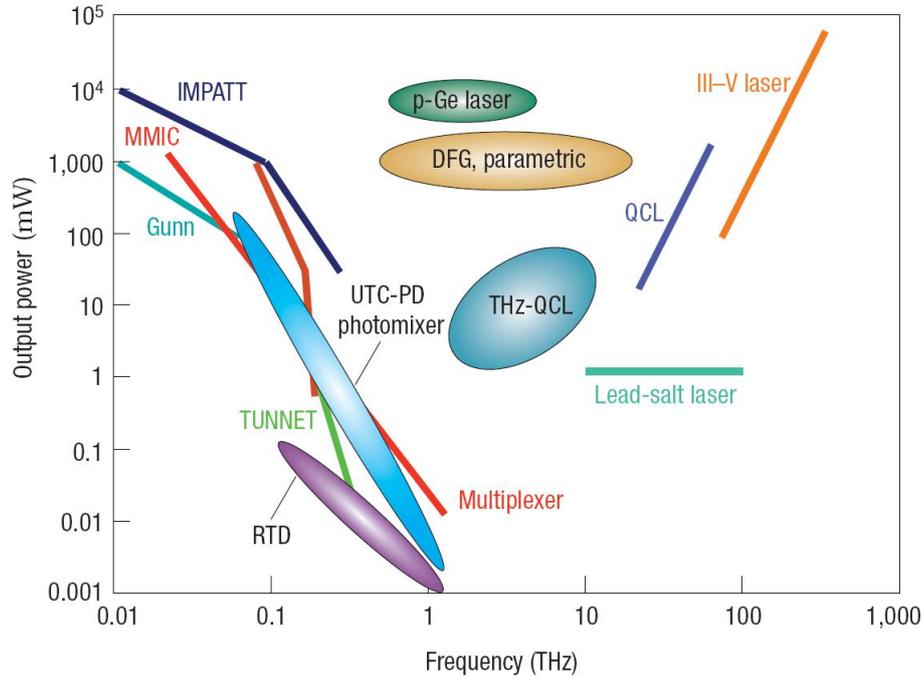


FIGURE 1.2 – Puissance des sources dans la gamme THz. Figure issue de [Tonouchi 2007]

prometteur pour tout ce qui concerne l'étude de systèmes biologiques fragiles, ou encore le domaine médical. De nombreux matériaux et composés chimiques ont des signatures spectroscopiques spécifiques aux fréquences THz comme les drogues, les médicaments, les explosifs ou encore les polluants.

De plus, bon nombre de diélectriques (polymères, textiles, béton,...) ou semiconducteurs sont quasi-transparents dans cette gamme ce qui offre de vastes possibilités d'applications dans le domaine de l'imagerie pour, par exemple, l'industrie pour le contrôle qualité de composants électroniques, de produits pharmaceutiques, ou encore dans le domaine de la sécurité ou militaire (scanners corporels) [Federici 2005].

Du point de vue de la physique et de la recherche fondamentale, de nombreux phénomènes sont liés à cette gamme d'énergies tels que les transitions intersous-bandes dans les hétérostructures de semiconducteurs [Kröll 2007], les excitations de spins [Hu 2003] ou le gap des supraconducteurs [Nuss 1991].

Dans cette thèse, nous avons élaboré des sources d'impulsions THz, développé et optimisé une technique spécifique à cette gamme, la spectroscopie THz dans le domaine temporel, afin d'étudier des LCQ THz. La suite de ce chapitre se concentre donc sur la description de cette technique qui permet de mesurer un champ électrique

THz complexe (amplitude et phase). Puis, dans la section suivante, nous décrivons le fonctionnement général d'une antenne photoconductrice, source que nous utilisons dans nos expériences de spectroscopie.

1.2 La spectroscopie THz dans le domaine temporel

La spectroscopie THz dans le domaine temporel (*THz-Time Domain Spectroscopy* en anglais) est une technique permettant de faire la mesure d'un champ électrique THz complexe, i.e. son amplitude et sa phase. Cette technique repose sur des sources d'impulsions THz d'une part, et une méthode de détection cohérente et verrouillée en phase, d'autre part.

1.2.1 Généralités

Les techniques permettant de générer et mesurer des signaux ultra-brefs dans la gamme THz sont apparus dans les années 1980 grâce à plusieurs travaux réalisés aux Bells Labs et IBM [Auston 1980][Auston 1984b][Fattinger 1988]. Grâce à ces travaux et à la commercialisation des lasers femtoseconde à modes bloqués dans les années 1990, la spectroscopie THz dans le domaine temporel en espace libre s'est significativement répandue [Han 2001b]. Une technique très répandue et permettant également de réaliser de la spectroscopie dans la gamme THz est la spectroscopie infrarouge par transformée de Fourier (*FTIR* en anglais). Cependant, avec cette dernière, la mesure cohérente d'ondes THz n'est pas possible. La spectroscopie THz dans le domaine temporel permet d'accéder au champ électrique complexe donnant directement l'information sur l'amplitude et la phase sans recourir à des transformations de Kramers-Kronig. De plus, la détection cohérente permet de s'affranchir du rayonnement THz ambiant et d'atteindre des sensibilités plus élevées qu'un bolomètre [Han 2001a]. Aujourd'hui, cette technique est utilisée dans de nombreux domaines comme la spectroscopie de substances, la mesure de paramètres de matériaux ou encore l'étude de nanostructures semiconductrices [Tonouchi 2007] [Duvillaret 1996] [Kröll 2007].

1.2.2 Composants de la spectroscopie THz dans le domaine temporel

Avant d'entrer dans le détail du fonctionnement de cette expérience, il est important de décrire sur quels dispositifs et techniques elle s'appuie, à savoir une source optique dans le proche infrarouge permettant de délivrer des impulsions très brèves, un dispositif de génération d'impulsions THz et un système de détection cohérent utilisant une balance optique. Par la suite, nous décrirons la façon dont ces éléments sont employés afin de permettre l'échantillonnage d'un champ électrique THz.

1.2.2.1 Lasers femtosecondes à modes bloqués

L'émergence de sources capables de générer des impulsions ultra-brèves a d'abord été motivée par la volonté de comprendre la dynamique de phénomènes dont l'échelle de temps est très courte (< 1 ps) tel que la dynamique moléculaire vibrationnelle [Zewail 2000]. L'apparition des lasers femtosecondes à mode bloqués [Siegman 1986], capables de délivrer des impulsions de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes, a permis l'essor d'une multitude de techniques pour l'infrarouge lointain, dont la spectroscopie THz dans le domaine temporel. Dans cette technique, l'utilisation d'un laser délivrant des impulsions ultra courtes est essentiel tant du point de vue de la génération d'impulsions THz que pour la détection (ces points sont détaillés dans la suite de cette section). Au laboratoire, la génération d'impulsions optiques dans nos montages de spectroscopie THz reposent sur des lasers Titane:Saphir (Ti:Sa) Mira 900 de la marque "Coherent" capables de délivrer des impulsions de 100 fs avec un taux de répétition de 76 MHz et accordables entre 750 et 1000 nm environ. La puissance moyenne de cette source est d'environ 1.5 W.

1.2.2.2 Génération d'impulsions THz

Dans nos montages de spectroscopie THz, nous utilisons des antennes photoconductrices pour générer des impulsions THz dont le spectre est compris entre 0.1 et 4 THz, typiquement. Notons, tout de même, l'existence de la rectification optique dans un cristal non-linéaire qui permet également de générer des impulsions THz [Xu 1992].

De façon simple, une antenne photoconductrice est constituée de deux électrodes métalliques entre lesquelles un champ électrostatique est appliqué. Ces électrodes sont déposées sur un substrat semiconducteur, communément du GaAs, dont le temps de vie des porteurs est très faible (~ 1 - 10 ps). Des porteurs de charge sont photo-générés entre les électrodes par une impulsion optique très brève et accordée avec le gap du matériau (~ 800 nm). Sous l'effet du champ électrostatique, les charges photo-générées vont brutalement accélérer ce qui donne lieu à l'apparition d'un courant transitoire sur une durée de l'ordre de 1 ps auquel est associé un rayonnement THz. Une description plus détaillée des mécanismes de génération par ces dispositifs est présenté en partie 1.3.

1.2.2.3 Détection cohérente d'une onde THz

La méthode que nous utilisons pour faire la mesure d'un champ THz est appelée échantillonnage électro-optique. La détection électro-optique est composée d'un cristal non-linéaire, d'une lame quart d'onde, d'un prisme de Wollaston et d'une balance de photodiodes. Ces trois derniers éléments constituent ce qu'on appelle une balance optique (voir figure 1.3). Ce type de détection s'appuie sur l'effet Pockels dans un cristal non-linéaire (ZnTe ou GaP dans notre cas) induit par un champ électrique THz. L'application d'un champ THz va induire une biréfringence supplémentaire

dans le cristal pour des longueurs d'ondes dans le proche-IR. Cette technique est une mesure indirecte du champ électrique THz et en réalité une mesure de l'ellipticité d'un faisceau optique.

Notons également que les antennes photoconductrices peuvent également être utilisées pour réaliser le même type de détection [Kono 2001], mais dans les expériences présentées par la suite, seule la détection électro-optique est employée.

Le cristal de détection Dans certains cristaux non centrosymétriques tels que le ZnTe ou le GaP, l'application d'un champ électrique THz permet d'induire un effet Pockels ou plus précisément d'engendrer une anisotropie due à la déformation du réseau cristallin par un champ électrique. Ainsi, lorsqu'un faisceau THz et proche-IR sont conjointement focalisés sur le cristal, la biréfringence induite par le champ électrique THz aura pour effet d'introduire un déphasage des composantes de polarisation du faisceau infrarouge. Il a été montré que cette biréfringence est maximale si, pour un cristal de ZnTe orienté $\langle 110 \rangle$, l'onde THz et le faisceau infrarouge sont polarisés parallèlement ou perpendiculairement à l'axe (001) du cristal [Planken 2001].

Fonctionnement de la détection électro-optique La figure 1.3 présente un schéma de la détection électro-optique et la façon dont la polarisation d'un faisceau proche-IR (que nous appellerons faisceau de référence par la suite) évolue après passage au travers des composants du système.

Sans champ THz En l'absence de champ THz, le cristal de détection est isotrope ainsi, la polarisation du faisceau de référence (initialement rectiligne et orientée à 45° des axes neutres du cristal) reste inchangée. Après passage au travers de la lame quart d'onde, sa polarisation devient circulaire, puis ses deux composantes orthogonales sont séparées spatialement par un prisme de Wollaston. Chacune des composantes de polarisation est collectée séparément par une des deux photodiodes de la balance, aux bornes de laquelle une tension est mesurée correspondant à la différence d'intensité optique reçue sur chaque photodiode. Dans ce cas, la polarisation avant le prisme de Wollaston étant circulaire, les deux composantes rectilignes sont d'égale intensité et la tension en sortie de la balance de photodiodes est nulle.

Avec champ THz Lorsqu'un champ THz focalisé se superpose au faisceau optique, une biréfringence est induite dans le cristal par effet Pockels. La polarisation du faisceau devient elliptique et les composantes de polarisation après le prisme de Wollaston sont dans ce cas d'intensités différentes. L'effet Pockels étant linéaire avec le champ électrique THz appliqué, le déphasage mesuré et donc la différence d'intensité optique ΔI est elle aussi proportionnelle à la valeur du champ électrique THz. Cette relation s'écrit [Planken 2001] :

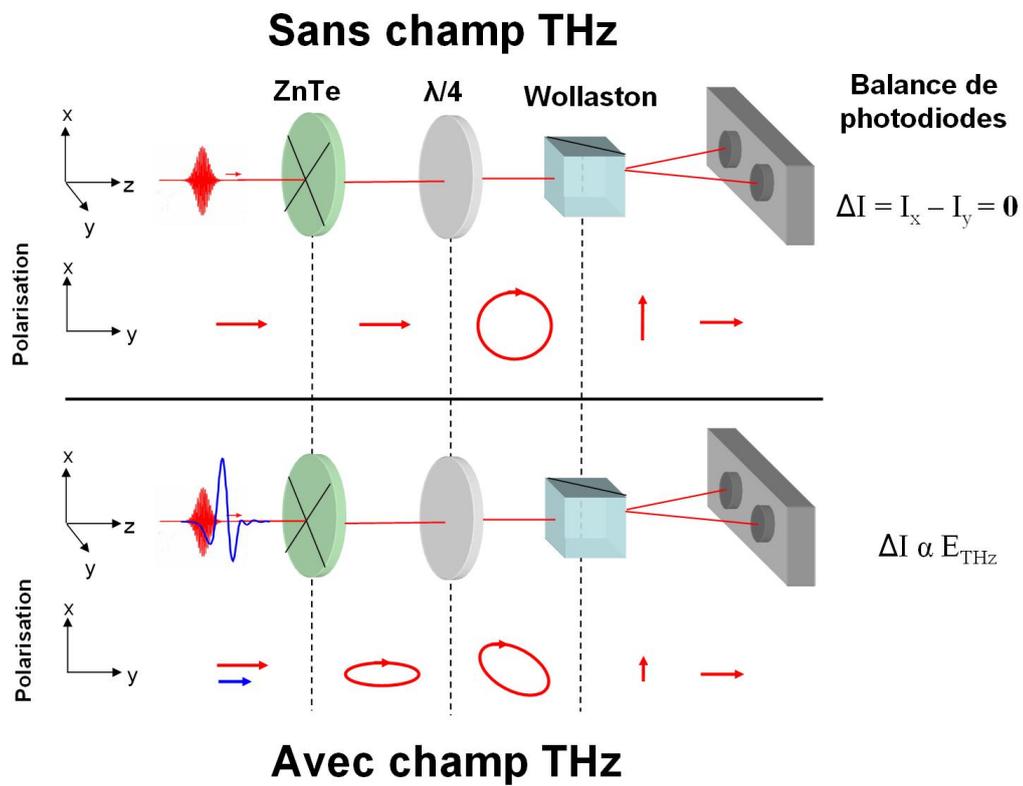


FIGURE 1.3 – Schéma présentant le principe de la détection électro-optique

$$\Delta I = I_p \frac{\omega n^3 r_{41} L}{2c} E_{THz} \quad (1.1)$$

où I_p est l'intensité du faisceau proche-IR sur le cristal, n l'indice de réfraction du ZnTe autour de 800 nm, r_{41} est le coefficient électro-optique du cristal et L son épaisseur.

Choix du cristal de détection Plusieurs paramètres doivent être pris en compte quant au choix du cristal de détection. Tout dépend de la gamme de fréquences à laquelle la détection doit être sensible. Dans les études présentées dans cette thèse, notre choix s'est porté sur un cristal de ZnTe d'une épaisseur de 200 μm qui présente une bonne réponse dans la gamme 0.1-4 THz ou un cristal de GaP dont la réponse est plus faible, mais permet d'étendre la sensibilité au-delà de 4 THz.

Le premier critère important dans le choix du cristal est l'accord de phase entre l'onde THz et l'onde utilisée pour la détection. En effet, pour l'effet Pockels, le déphasage induit sur les deux composantes du faisceau proche-IR correspond à la somme des déphasages accumulés pendant la traversée dans le cristal. Ainsi, il est nécessaire que la vitesse de groupe des impulsions proche-IR soit idéalement égale à la vitesse de phase de l'onde THz. En particulier, le ZnTe respecte quasiment les conditions d'accord de phase pour des ondes THz autour de 2 THz et proche-IR autour de 800 nm. Le premier aspect limitant spectralement la détection et notamment pour les hautes fréquences provient du fait que l'indice pour les deux ondes, bien que très proches, ne sont pas les mêmes. Ce critère impose donc un choix sur l'épaisseur du cristal et met en évidence un dilemme. Plus le cristal est épais plus le déphasage des composantes de polarisation du faisceau IR est important (donc conduit à un meilleur signal détecté) mais le déphasage des deux ondes, proportionnel avec l'épaisseur, réduit la détection des hautes fréquences.

Un autre aspect à prendre en compte est l'absorption par les phonons d'une partie du spectre THz. Dans le ZnTe, les phonons TO apparaissent autour de 5 THz ce qui va limiter la détection d'un signal à l'approche de ces fréquences [Gallot 2006]. Le ZnTe est plus adapté à une gamme comprise entre 0.1 et 4 THz. Un autre type de cristal est souvent employé, il s'agit du GaP qui donne une moins bonne réponse que le ZnTe avec un coefficient électro-optique plus faible ($r_{41}(\text{GaP}) = 1 \text{ pm/V}$ et $r_{41}(\text{ZnTe}) = 4 \text{ pm/V}$). Dans le GaP, l'accord de phase est réalisé autour de 6 THz pour un faisceau IR à 810 nm, et possède une absorption par les phonons TO vers 11 THz [Wu 1997]. Il est donc plus adapté que le ZnTe aux fréquences au-delà de 4 THz.

En pratique, il faut employer des cristaux de 50 à 200 μm tant pour le GaP que le ZnTe, ce qui offre un bon compromis entre signal et largeur spectrale. Une multitude de cristaux sont disponibles pour la détection électro-optique d'onde THz, la référence [Wu 1996] en dresse une liste assez complète.

Détection synchrone La tension en sortie de la balance de photodiodes est mesurée par une détection synchrone. Cette technique permet de s'affranchir du bruit ambiant. En pratique, la tension aux bornes de l'antenne photoconductrice est modulée avec une fréquence de 50 kHz et cette modulation est donnée comme référence à la détection synchrone. Ainsi, la détection synchrone ne va renvoyer que la valeur du signal qui est modulé à la fréquence de référence. En augmentant la constante de temps de la détection synchrone, il est possible de moyenniser la mesure d'un échantillon sur un grand nombre de périodes, ce qui permet d'atteindre des rapports signal sur bruit très importants (10000 :1, typiquement) [Han 2001b].

1.2.3 Echantillonnage en temps équivalent

De manière générale, les impulsions THz générées dans une expérience de spectroscopie THz présentent un spectre large (100 GHz-4 THz), cela correspond à des impulsions dont la durée ne dépasse pas la picoseconde. Pour pouvoir mesurer un tel signal, il faut pouvoir l'échantillonner. Or, pour échantillonner correctement un signal de fréquence f sans pertes d'informations, le théorème de Nyquist-Shannon doit être respecté, à savoir :

$$f_{\text{echantillonnage}} \geq 2f_{\text{max}} \quad (1.2)$$

Autrement dit, pour s'assurer que l'information contenue dans le signal échantillonné soit conservée, il faut que la fréquence d'échantillonnage soit au minimum deux fois plus grande que la plus haute fréquence constituant le signal à mesurer. D'un point de vue pratique, cela implique qu'il faut employer des dispositifs d'acquisition ultra-rapides, i.e. capables d'acquérir un nombre très important d'échantillons sur la durée du signal. Or, il n'existe actuellement aucun dispositif électronique assez rapide pour permettre ce type d'échantillonnage en temps réel. Pour ces raisons, une technique d'échantillonnage en temps équivalent est utilisée en spectroscopie THz, qui permet l'utilisation d'appareils d'acquisition lents à condition que le signal à mesurer soit périodique et synchrone avec le système de détection. Le système est alors verrouillé en phase, i.e. les impulsions à mesurer et celles servant à leur mesure sont synchronisées et ont une relation de phase fixe.

Le principe de l'échantillonnage en temps équivalent est de prendre un échantillon du signal à reconstituer sur de nombreuses périodes. En d'autres termes, cela équivaut à mesurer la valeur de l'amplitude du signal à un instant t de la période sur un grand nombre n de périodes identiques grâce à une impulsion ultra-brève (typiquement issue d'un laser femtoseconde à modes bloqués). Puis, à l'aide d'une ligne à retard, l'impulsion sonde est décalée temporellement à un instant t' de la période et une mesure de la valeur de l'amplitude est à nouveau réalisée sur un grand nombre de périodes. Ainsi, pas-à-pas, un signal THz peut être reconstruit (voir figure 1.4).

L'utilisation d'une ligne à retard permet également de déterminer la résolution de l'échantillonnage. La résolution temporelle est convertie en résolution spatiale

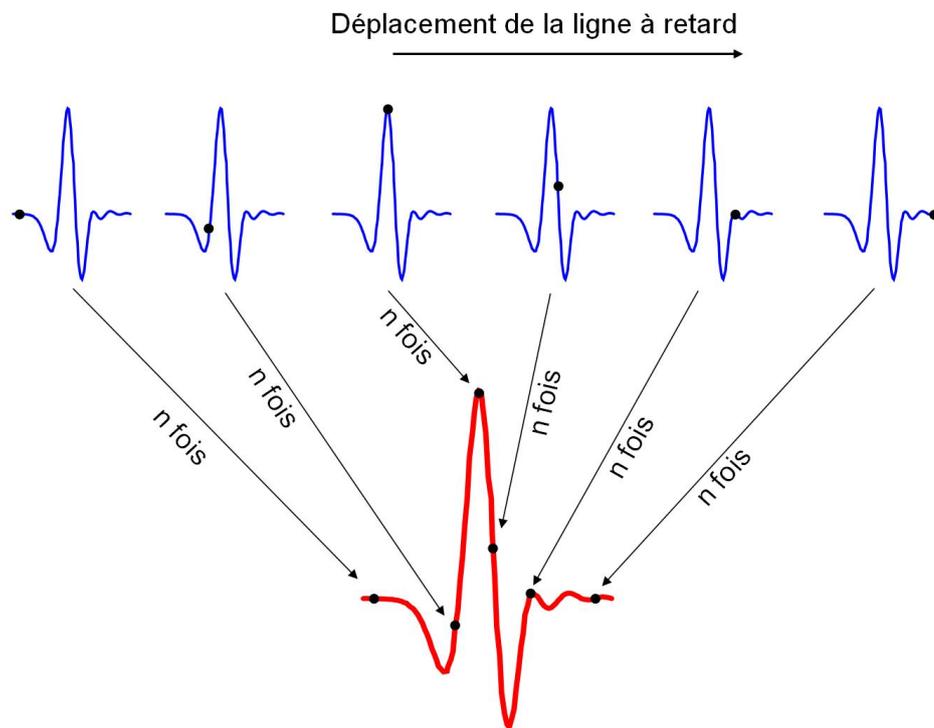


FIGURE 1.4 – Principe de l'échantillonnage en temps équivalent. Le signal à échantillonner (en bleu) est répété n fois pour réaliser la mesure de l'amplitude du signal à un instant. En déplaçant, une ligne à retard, le signal peut être échantillonné (en rouge).

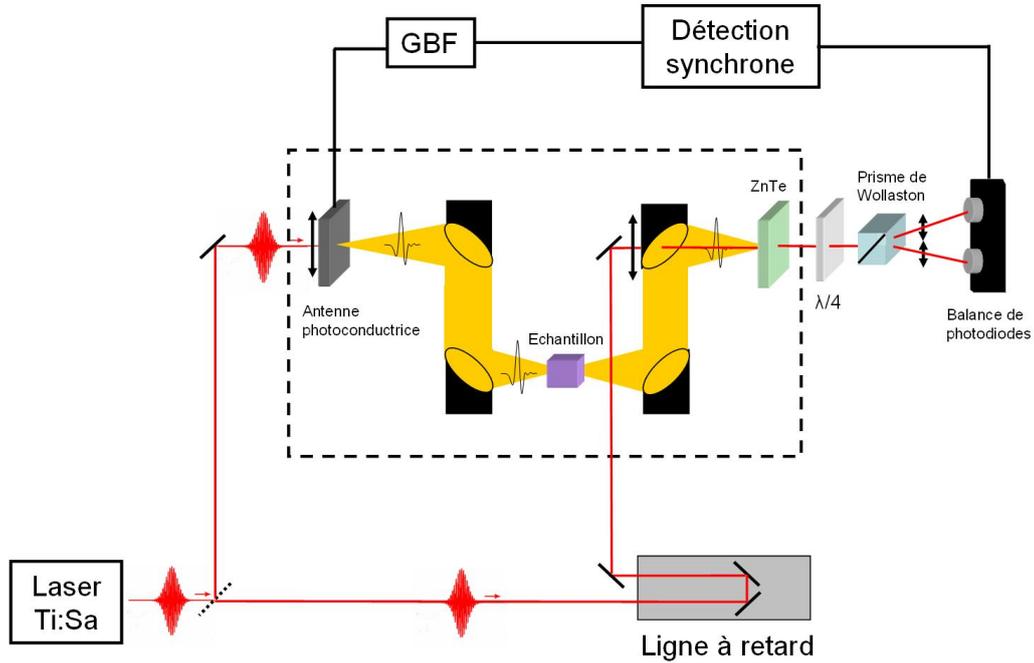


FIGURE 1.5 – Schéma de l'expérience de spectroscopie THz

par :

$$\Delta t = 2 \frac{\Delta x}{c} \quad (1.3)$$

où Δt est le pas en temps, Δx le pas de la ligne à retard et le facteur 2 exprime le fait qu'au niveau de la ligne à retard le faisceau fait un aller-retour. Typiquement, lors des mesures présentées dans cette thèse, le pas utilisé est de 30 fs ce qui correspond à un pas de la ligne à retard de $4.5 \mu\text{m}$.

1.2.4 Montage expérimental

La figure 1.5 présente le montage de spectroscopie THz en transmission que nous avons développé et dont nous présentons l'optimisation (**Chapitre 3**) pour mesurer de gain de LCQ THz (**Chapitre 4**).

1.2.4.1 Fonctionnement de l'expérience de spectroscopie THz

Le faisceau d'un laser à modes bloqués Ti:Sa est séparé par une lame semi-réfléchissante en, d'une part un faisceau d'excitation pour la génération d'impulsions THz et, d'autre part un faisceau de référence utilisé pour la détection d'onde THz. Les pointillés noirs sur la figure 1.5 représentent une boîte dont l'atmosphère est purgée à l'air sec afin de réduire les fortes absorptions de la vapeur d'eau. Cela correspond à la partie du montage comprenant tout le trajet du faisceau THz. Le

premier faisceau illumine une antenne photoconductrice (voir section 1.3) qui permet la génération d'une impulsion THz pour chaque impulsion optique reçue. Ces impulsions THz sont collectées par des miroirs paraboliques hors axes, puis focalisées à travers un échantillon. Les impulsions THz transmises à travers l'échantillon sont à nouveau collectées par des miroirs paraboliques pour être focalisées sur le système de détection. Le faisceau de référence passe par une ligne à retard qui permet de décaler temporellement l'arrivée de l'impulsion de référence par rapport à l'impulsion THz. Ce faisceau est ensuite focalisé au même endroit que l'impulsion THz sur le système de détection. Le système de détection mesure une valeur proportionnelle au champ électrique THz appliqué sur le cristal non-linéaire à un instant t de la période de l'impulsion THz. Cette valeur mesurée provient de la tension aux bornes de la balance de photodiodes, amplifiée par un amplificateur transimpédance et lue par une détection synchrone. Cette dernière est synchronisée avec la fréquence de polarisation de l'émetteur THz.

L'acquisition complète d'un signal THz est automatisée et contrôlée par ordinateur. Le programme de mesures consiste à prendre la valeur donnée par la détection synchrone pendant un temps défini par la constante de temps qui détermine le nombre de points moyenné pour prendre un échantillon. Puis, la ligne à retard se déplace de l'incrément choisi (30 fs) et la mesure est réalisée à nouveau. La valeur lue aux bornes des photodiodes est proportionnelle au champ électrique THz par la relation (1.4). Il est possible d'estimer en unité S.I. la valeur du champ électrique par la relation :

$$E_{THz} = \alpha \frac{\Delta I}{I_p} = \alpha \frac{\Delta P}{P_p} \quad (1.4)$$

où P_p est la puissance optique au niveau du cristal de détection. La relation précédente peut se réécrire en fonction de la tension donnée par la détection synchrone et aux bornes de chacune des photodiodes :

$$E_{THz} = \alpha \frac{\pi}{\sqrt{2}} \frac{S}{10^4(V_{D1} + V_{D2})10^{-2}} \quad (1.5)$$

avec

$$\alpha = \frac{c}{\omega_{IR} L n^3 r_{41}} = 14.87 kV/cm \quad (1.6)$$

où les facteurs 10^4 et 10^{-2} sont spécifiques à notre montage expérimental. Le premier facteur représente le gain de l'amplificateur transimpédance situé dans la balance de photodiodes. Le second facteur est lié à la mesure des tensions V_{D1} et V_{D2} aux bornes de chacune des photodiodes (la tension aux bornes d'une photodiode est mesurée en bloquant le faisceau sur l'autre) qui est réalisé en plaçant une résistance de 100Ω en parallèle du circuit transimpédance afin de ne pas le saturer. α est calculé pour un cristal d'épaisseur $L = 200 \mu m$ et une longueur d'onde centrée sur 800 nm. S est la valeur donnée par la détection synchrone en volts. Le facteur $\frac{\pi}{\sqrt{2}}$ représente le fait que la valeur de S sur la détection synchrone est obtenue

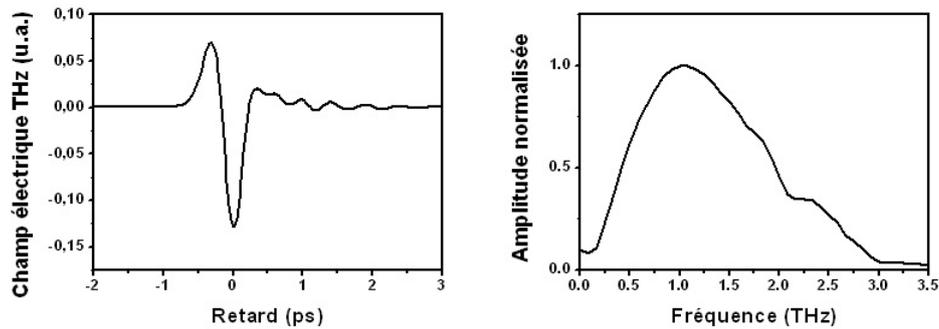


FIGURE 1.6 – Mesure d’une impulsion THz typique et spectre associé obtenu par transformée de Fourier rapide

par convolution de la valeur efficace de la tension aux bornes des photodiodes avec une sinusoïde à la fréquence de référence. Typiquement, dans cette configuration, le champ électrique THz pic détecté est de l’ordre de 100 V/cm en employant une antenne photoconductrice interdigitée (voir chapitre **3**).

La figure 1.6 montre la mesure de l’impulsion THz générée typiquement dans ce système par une antenne photoconductrice et le spectre en fréquence de cette impulsion obtenu en faisant une transformée de Fourier rapide du signal temporel.

1.3 Les antennes photoconductrices

1.3.1 Description générale

Une antenne photoconductrice, dans sa forme la plus simple, est un dispositif consistant en deux électrodes métalliques (usuellement 10 nm de chrome ou titane sous 100 nm d’or) déposées sur un substrat semiconducteur (GaAs). Les électrodes sont polarisées en tension de sorte que dans l’espace les séparant réside un champ électrostatique (typiquement de quelques dizaines de kV/cm). En excitant l’espace entre électrodes avec une impulsion ultra-brève accordée avec la bande interdite du substrat (~ 800 nm pour le GaAs), des paires électrons-trous sont photo-crées. Le matériau devient alors conducteur et permet la création d’un courant auquel est associé un rayonnement THz. Plus précisément, les porteurs de charge photo-générés sont soumis au champ électrostatique et accélèrent brutalement. Cette brutale accélération se traduit par la création d’une impulsion de courant dont l’allure est présentée figure 1.8 (qui comporte le résultat de simulations numériques que nous avons calculées à l’aide d’un programme MATLAB résolvant les équations présentées en section **1.3.2**). L’allure du courant s’explique par le fait que, dans un premier temps, les charges accélèrent dans une direction perpendiculaire aux électrodes, puis la déplétion des charges provoque l’écrantage du champ électrostatique appliqué ce

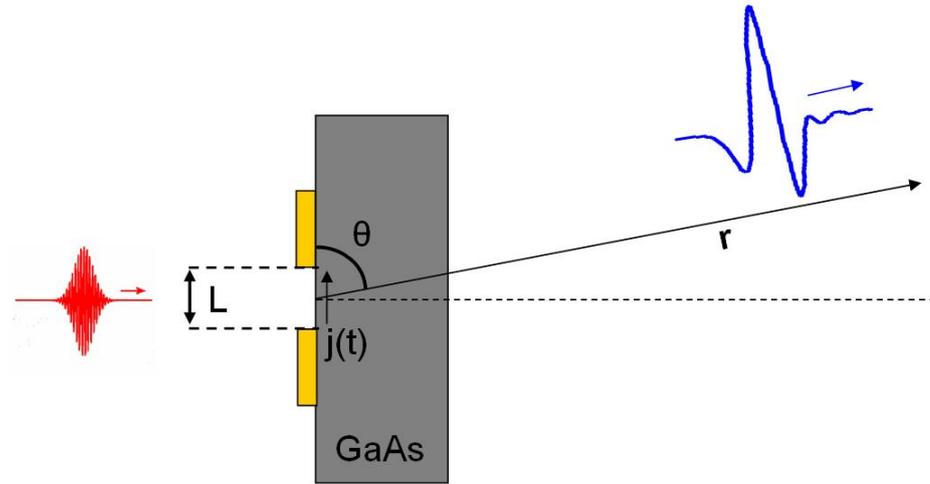


FIGURE 1.7 – Schéma d'une antenne photoconductrice

qui induit un champ contre-réactif et provoque la décélération des charges (i.e. la chute du courant). Une fois le champ écranté, la vitesse des porteurs est rapidement gouvernée par des processus aléatoires comme les collisions et le photocourant devient nul à mesure que les paires électrons-trous se recombinent de manière très rapide par des processus non radiatifs liés aux défauts profonds dans le substrat.

Le rayonnement peut être compris comme celui d'un dipôle de Hertz dans le cas où l'émetteur est petit devant la longueur d'onde du rayonnement. Dans notre cas, la taille de la source correspond au diamètre du faisceau optique. Le champ E_{THz} à une distance r très grande devant la longueur d'onde émise par le dipôle (i.e. en champ lointain) peut s'écrire [Lee 2009] :

$$E_{THz}(r, t) = \frac{L \sin \theta}{4\pi \epsilon_0 c^2 r} \frac{\partial J(t)}{\partial t} \propto \frac{\partial J(t)}{\partial t} \quad (1.7)$$

où $J(t)$ est le courant dans le dipôle, L la longueur du dipôle, et θ l'angle entre le dipôle et la direction observée.

1.3.2 Modèle de Drude-Lorentz

Un modèle classique simple peut être utilisé pour décrire le fonctionnement de ces dispositifs et notamment évaluer l'influence de différents paramètres sur le rayonnement THz tel que la durée de l'impulsion optique, le temps de vie des porteurs ou encore le champ électrique appliqué. C'est un modèle de type Drude-Lorentz tenant compte de l'écrantage rapide par les charges du champ appliqué. Ce modèle a été mis en place par Jepsen et al. dans un cas simple [Jepsen 1996]. Dans ce modèle

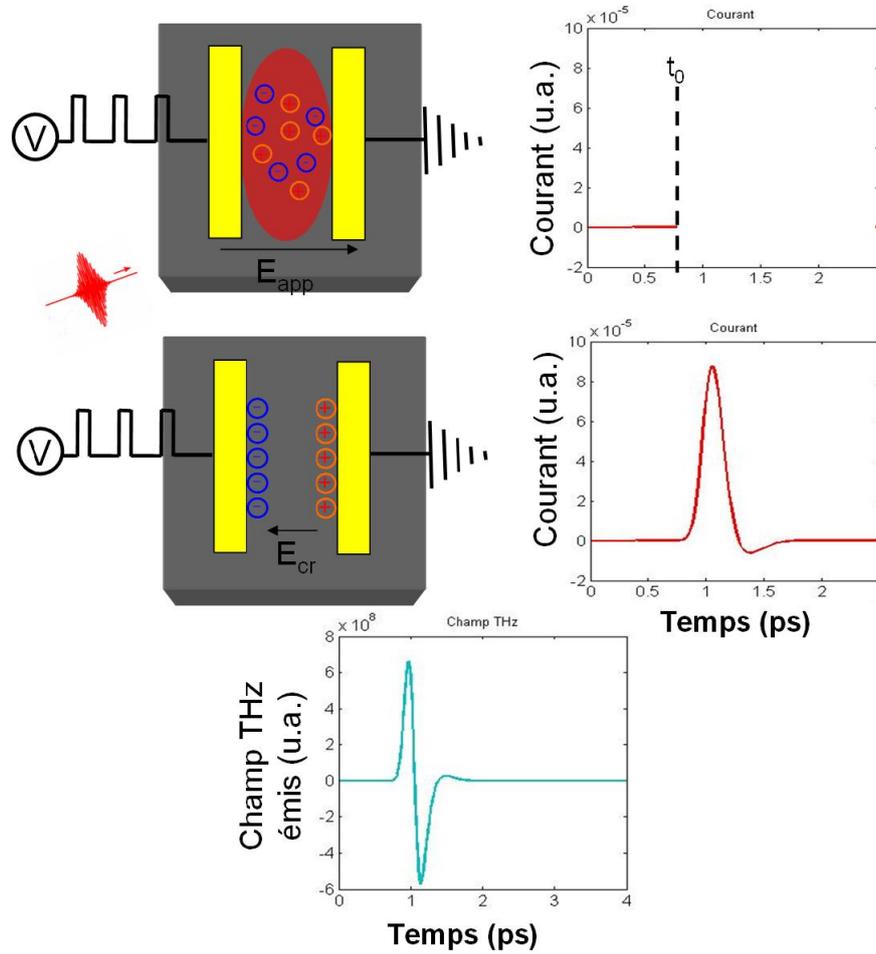


FIGURE 1.8 – Schéma du principe de fonctionnement d’une antenne photoconductrice et le courant en fonction du temps entre les électrodes. L’antenne est composée de deux électrodes métalliques (en jaune) parallèles sur lesquelles une tension est appliquée. **En haut** : une impulsion ultra-brève permet de générer des paires électron-trou. L’arrivée de l’impulsion correspond à l’instant t_0 sur le graphe de droite. **Au milieu** : le champ appliqué sépare les charges correspondant à la montée de courant sur le graphe associé, puis la déplétion des charges écrante le champ appliqué et induit un champ contre réactif qui va changer le sens du courant correspondant à la descente du courant. **En bas** : allure du champ rayonné par les charges.

n'est considérée que la contribution des électrons en raison de leur faible masse effective comparées à celle des trous (pour le GaAs, $m_e^* = 0.063m_0$ et $m_t^* = 0.51m_0$ dans la vallée Γ). Dans l'antenne, la densité de courant $j(t)$ est reliée à la vitesse des porteurs libres par :

$$j(t) = -en(t)v(t) \quad (1.8)$$

où e est la charge élémentaire, $n(t)$ la densité de porteurs libres et $v(t)$ la vitesse des porteurs. L'évolution au cours du temps de la densité de porteurs photo-générés s'écrit :

$$\frac{dn(t)}{dt} = -\frac{n(t)}{\tau_c} + G(t) \quad (1.9)$$

avec

$$G(t) = n_0 e^{(-\frac{t}{\Delta t})^2} \quad (1.10)$$

où τ_c est le temps de capture des porteurs par les niveaux de défauts du matériau, $G(t)$ la fonction de génération de porteurs par l'impulsion optique gaussienne, n_0 la densité de porteurs initiale et Δt la durée de l'impulsion laser. La dépendance en temps de la vitesse des porteurs est donnée par :

$$\frac{dv(t)}{dt} = -\frac{v(t)}{\tau_d} + \frac{e}{m^*} E(t) \quad (1.11)$$

où τ_d est le temps de diffusion et $E(t)$ le champ électrique à la position des porteurs qui est donné par :

$$E(t) = E_{app} - \frac{P_{ecr}}{\eta\varepsilon} \quad (1.12)$$

où E_{app} est le champ appliqué entre les électrodes, P_{ecr} la polarisation induite par la distribution spatiale des charges et η est un facteur géométrique valant 3 dans le cas d'un matériau diélectrique isotrope. Ce dernier terme représente l'écrantage coulombien du champ appliqué par les charges photo-générées. La dépendance en temps de la polarisation induite par les charges peut elle-même s'écrire :

$$\frac{dP_{ecr}}{dt} = -\frac{P_{ecr}}{\tau_r} + j(t) \quad (1.13)$$

où τ_r est le temps de recombinaison. De manière générale, $\tau_d < 100$ fs et $\tau_c, \tau_r \sim 1-100$ ps. Ce modèle assez simple permet de mettre en évidence les paramètres importants qui influencent le rayonnement des ces dispositifs. Duvillaret et al. ont étudié par le biais d'un modèle similaire l'influence des différents paramètres sur le spectre d'émission [Duvillaret 2001] [Coutaz 2008].

1.3.2.1 Influence de la tension appliquée

L'amplitude du champ THz rayonné par une antenne photoconductrice est proportionnelle à la tension appliquée. Ainsi, la puissance rayonnée évolue comme V_{app}^2 . Cependant, il a été montré expérimentalement que le spectre émis s'élargit également avec des champs appliqués élevés [Ludwig 1996]. Cela ne peut être expliqué qu'avec des simulations Monte-Carlo tenant compte de la diffusion entre vallées de la bande de conduction [Castro-Camus 2005]. En effet, lorsque les charges acquièrent, grâce au champ appliqué, une énergie de même ordre que l'énergie séparant deux vallées, elles sont diffusées vers des vallées latérales dans lesquelles leur masse effective est beaucoup plus grande. Cela a pour effet de fortement décélérer ces charges, ce qui conduit à une impulsion de courant plus brève et donc à un spectre rayonné plus large.

1.3.2.2 Paramètres influençant la largeur du spectre d'émission

Deux paramètres sont critiques quant à la largeur spectrale d'émission. Tout d'abord, la durée de l'impulsion optique détermine le temps pendant lequel les charges sont photo-générées et donc le temps de montée du courant. L'impulsion de courant étant plus brève, le spectre d'émission s'élargit. Puis, lorsque le temps de vie des porteurs devient très bref le spectre comporte plus de composantes hautes fréquences [Duvillaret 2001].

1.3.2.3 Ecrantage du champ électrostatique appliqué

Pour des fortes densités optiques d'excitation, un phénomène de saturation du champ THz rayonné est observé [Rodriguez 1996]. Ce phénomène est lié à l'écrantage du champ appliqué. De manière générale deux types d'écrantages doivent être pris en compte : l'écrantage radiatif qui correspond à l'écrantage par le champ THz rayonné mais qui n'est observable que dans les antennes à large espace inter-électrode (i.e. longueur d'onde d'émission très petite devant l'espace inter-électrode) [Kim 2006] et l'écrantage coulombien qui est d'autant plus marqué sous de fortes puissance, i.e. en présence d'une forte densité de porteurs. L'écrantage coulombien est surtout valable dans le cas des antennes à petit espace inter-électrode. Cet écrantage coulombien dépend fortement de la densité de porteurs photo-générés, donc de l'intensité de l'excitation optique. En effet, plus la densité de porteurs est grande plus l'écrantage du champ appliqué est rapide. L'oscillation des charges dans le système se fait à la fréquence plasma $\omega_p^2 = \frac{ne^2}{m^*\epsilon}$ qui est proportionnelle à la densité n . Cela se traduit par un décalage du spectre d'émission vers des fréquences plus élevées [Coutaz 2008].

1.3.3 Matériaux pour les antennes photoconductrices

Les caractéristiques du substrat utilisé sont cruciales pour le bon fonctionnement d'un tel dispositif. Il faut que le temps de vie des porteurs dans le matériau soit très court car cela permet d'obtenir des impulsions de courant courtes (auxquelles

sont associés un rayonnement dont le spectre est large). Les matériaux permettant d'obtenir une bonne photoconductivité doivent également rassembler certains autres critères. Ils doivent tout d'abord posséder un champ de claquage élevé car le champ appliqué entre les électrodes permet d'augmenter l'amplitude du champ THz rayonné, mais aussi une haute résistivité ce qui permet d'obtenir un signal contrasté et une forte mobilité des porteurs. Un matériau, en particulier, est largement utilisé pour la photoconductivité, il s'agit du GaAs semi-isolant obtenu par la méthode de Czochralski [Williams 1990] qui permet d'atteindre des temps de vie de l'ordre de la dizaine de ps et du GaAs dont la croissance est faite par épitaxie par jet moléculaire à basse température appelé GaAs Basse Température (GaAs-BT ou LT-GaAs en anglais) qui possède les temps de vie les plus courts pouvant atteindre jusqu'à 100 fs. Ces méthodes de fabrication permettent d'obtenir des matériaux comportant beaucoup d'impuretés comparé au GaAs pur, dégradant ainsi le temps de vie des porteurs. Ce type de substrat peut atteindre des mobilités de l'ordre de 5000 cm²/V.s et des résistivités de l'ordre de 10⁶-10⁸ Ω.cm avec des champs de claquage de l'ordre de 100 kV/cm.

Dans les optimisations que nous avons réalisées au **chapitre 3** sur un type particulier d'antennes photoconductrices, le substrat utilisé est du GaAs semi-isolant.

1.4 Références

Pour avoir une vue d'ensemble sur les techniques de la gamme THz tant en détection qu'en émission, le lecteur est invité à consulter les ouvrages [Coutaz 2008] [Sakai 2005]. En ce qui concerne la technique de spectroscopie THz et en particulier l'étude du bruit dans cette technique, le lecteur est invité à consulter la thèse de D. Oustinov qui traite ce sujet pour le même type de montage expérimental [Oustinov 2011].

+

Les lasers à cascade quantique téraherz

Sommaire

1.1	La gamme THz	7
1.2	La spectroscopie THz dans le domaine temporel	10
1.2.1	Généralités	10
1.2.2	Composants de la spectroscopie THz dans le domaine temporel	10
1.2.3	Echantillonnage en temps équivalent	15
1.2.4	Montage expérimental	17
1.3	Les antennes photoconductrices	19
1.3.1	Description générale	19
1.3.2	Modèle de Drude-Lorentz	20
1.3.3	Matériaux pour les antennes photoconductrices	23
1.4	Références	24

Ce chapitre présente l'objet central d'étude de cette thèse : le Laser à Cascade Quantique THz (LCQ). Les LCQ sont des lasers unipolaires à injection électrique épitaxiés à partir de matériaux semiconducteurs et se présentent sous la forme de rubans lasers. Par unipolaire, il faut comprendre que, contrairement aux lasers à puits quantiques classiques tels que les diodes lasers, l'émission radiative repose sur la relaxation d'un seul type de charge (les électrons entre des sousbandes de la bande de conduction). Ces sousbandes sont obtenues par confinement des électrons selon une direction de l'espace qui correspond à l'axe de croissance du dispositif. L'énergie séparant les sousbandes peut être choisie en ajustant, par exemple, l'épaisseur des couches des matériaux. Cela permet d'obtenir des transitions radiatives permettant de couvrir une grande gamme de longueurs d'onde et d'offrir une grande flexibilité dans la réalisation des LCQ.

L'idée de réaliser un laser unipolaire utilisant des transitions intersousbandes a d'abord été proposée par Kazarinov et Suris en 1971 [Kazarinov 1971] qui tiraient partie de la découverte du super-réseau un an auparavant par L. Esaki et R. Tsu [Esaki 1970]. C'est seulement en 1994, grâce aux progrès technologiques et plus particulièrement à la précision atteinte par les techniques d'épitaxie par jets moléculaires [Panish 1980], que le premier laser dont l'émission repose sur des transitions intersousbandes a été réalisé par Faist et al. [Faist 1994]. Ce LCQ émettait dans le

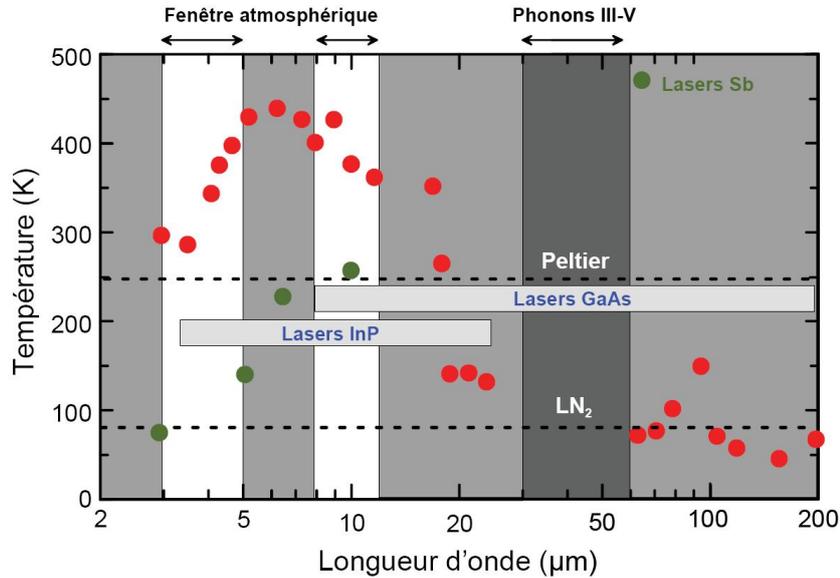


FIGURE 2.1 – Température de fonctionnement des LCQ en fonction de la longueur d’onde d’émission. Figure issue de [Bahriz 2008]

moyen-IR à une longueur d’onde de $4.2 \mu\text{m}$. Ce n’est qu’en 2002 que le premier LCQ émettant dans la gamme THz, à 4.4 THz ($68 \mu\text{m}$) a été réalisé par Köhler et al. [Köhler 2002]. Les performances de ces dispositifs n’ont eu de cesse d’évoluer depuis puisque désormais les LCQ couvrent une large gamme dans le moyen-IR ($2.75 \mu\text{m}$ à $24 \mu\text{m}$) [Faist 2001] [Devenson 2007] et dans le THz ($60 \mu\text{m}$ à $250 \mu\text{m}$) [Walther 2007].

Si certains LCQ moyen-IR ont pu être optimisés pour fonctionner jusqu’à température ambiante en régime continu [Beck 2002], les LCQ THz ne fonctionnent encore qu’à basse température. Le record de température de fonctionnement est actuellement de 186 K en régime pulsé [Kumar 2009]. La figure 2.1 présente un récapitulatif de des températures de fonctionnement atteintes par les LCQ en fonction de la longueur d’onde d’émission. Les lignes pointillées représentent l’opération par refroidissement à l’azote liquide (77 K) et refroidissement par module à effet Peltier ($\sim 250 \text{ K}$). Les raisons de cette limitation en température réside en premier lieu dans l’énergie des photons qui est très faible ($4\text{-}20 \text{ meV}$). Cela rend difficile de conserver une bonne inversion de population (qui est nécessaire pour obtenir un effet laser), i.e. obtenir assez de gain dans le dispositif, lorsque l’énergie des photons devient comparable à l’énergie d’activation thermique, favorisant l’émission de phonons.

Un autre aspect important des LCQ THz est le confinement optique du mode THz dans la cavité. A ces fréquences, le confinement par guidage diélectrique est difficile car cela nécessiterait l’emploi de couches épaisses. Des guides d’ondes spé-

cifiques aux LCQ THz ont ainsi vu le jour, et c'est leur utilisation qui a permis la réalisation du premier LCQ THz. Des guides faisant intervenir des plasmons de surface sont principalement utilisés aujourd'hui : les guides dits simple plasmon (où l'onde est confinée entre une couche métallique et une couche dopée) et les guides dits métal-métal (ou double métal) où le mode est confiné entre deux couches métalliques.

Ce chapitre fournit les bases nécessaires à la compréhension du fonctionnement des LCQ THz étudiés dans les chapitres 4 et 5. Nous introduisons les bases de leur fonctionnement et de leur conception sous l'aspect de l'ingénierie de structure de bande, pour ensuite exposer des dessins de LCQ dits "bound-to-continuum" et par émission de phonons LO permettant d'obtenir une inversion de population. Puis, nous présentons la géométrie des LCQ THz pour terminer sur la présentation des guides d'onde utilisés.

2.1 Ingénierie des lasers à cascade quantique

2.1.1 Niveaux d'énergie dans une hétérostructure de semiconducteurs

2.1.1.1 Transitions interbandes et intersousbandes

Il est possible de distinguer dans les lasers à puits quantiques deux types de transitions optiques, les transitions interbandes et les transitions intersousbandes. L'émission radiative impliquant des transitions interbandes résulte de la recombinaison entre un électron de la bande de conduction et un trou de la bande de valence. L'émission des diodes lasers à semiconducteurs repose sur ce type de transitions et couvre aujourd'hui une très large gamme de rayonnement du bleu à l'infrarouge de 375 nm à 2.6 μm . Pour ce type de laser, l'énergie de l'émission dépend du gap du matériau.

Pour émettre dans le moyen-IR (40-800 meV) ou le THz (1-40 meV), peu de matériaux présentent un gap dont l'énergie soit assez petite pour rayonner par recombinaison de paires électrons/trous (les diodes PbSe, par exemple, peuvent atteindre des longueurs d'onde de 20 μm mais sont peu performantes). Aussi, des transitions intersousbandes sont employées résultant de la quantification des niveaux d'énergie lié au confinement des charges dans une direction de l'espace. Ces états discrets sont obtenus par confinement des électrons (ou trous) dans un matériau situé entre deux couches d'un autre matériau possédant une bande interdite plus grande. Ce type d'assemblage se nomme hétérostructure et il est possible d'y réaliser des transitions dont l'énergie soit assez petite pour couvrir le moyen-IR et la gamme THz.

La première preuve expérimentale de l'existence des transitions intersousbandes a été apportée en 1985 dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs [West 1985]. La

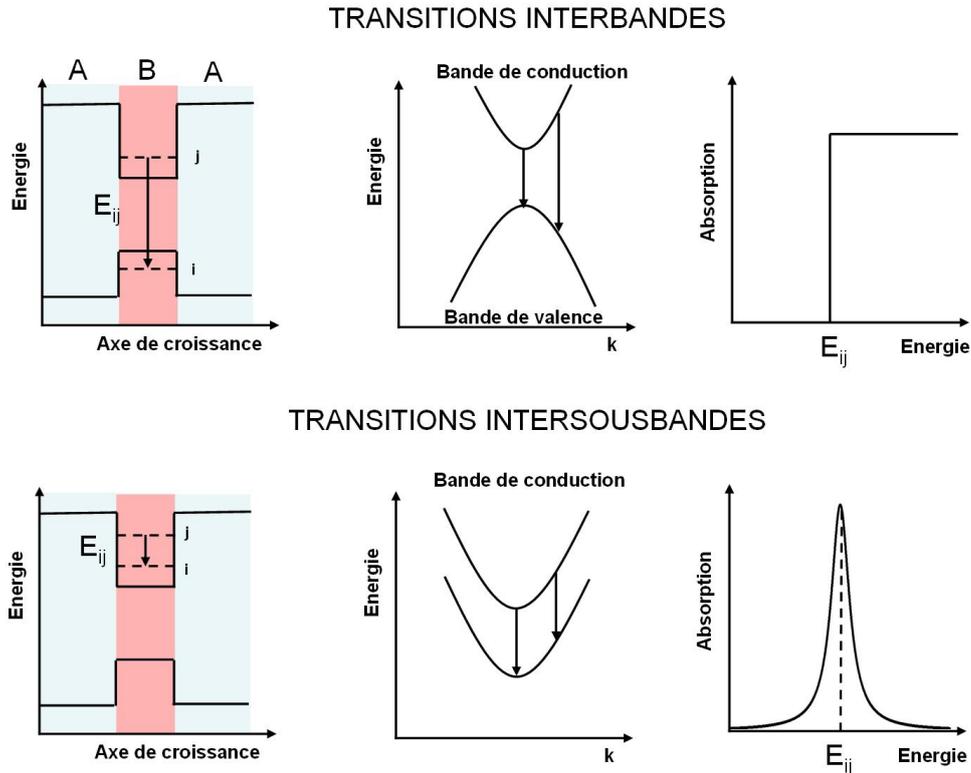


FIGURE 2.2 – Comparaison entre les mécanismes d’émission par transition interbande et transition intersousbande. Les électrons sont confinés dans la direction z dans le matériau B placé entre deux couches d’un matériau A de plus grand gap.

première émission radiative intersousbandes a été observée en 1988 par Helm et al. [Helm 1988].

La figure 2.2 présente schématiquement les caractéristiques liées aux transitions interbandes et aux transitions intersousbandes. De gauche à droite sont représentés le confinement liés à la juxtaposition de couches de deux matériaux de gap différent et les états impliqués dans les transitions, l’allure des sousbandes d’énergies dans le plan des couches et l’allure de l’absorption dans les deux cas. La principale différence entre ces deux types de transitions est que dans le cas interbande, électrons et trous sont impliqués alors que seuls les électrons participent dans le cas intersousbandes. De plus, dans le cas intersousbandes, la dispersion des sousbandes étant parallèle en première approximation, l’absorption (ou l’émission) est très fine, similaire à une transition atomique. En outre, le dipôle des transitions radiatives intersousbandes est orienté selon l’axe de croissance, l’émission de lumière est donc perpendiculaire au plan des couches (polarisation Transverse Magnétique ou TM).

2.1.1.2 Niveaux d'énergie dans un puits

Pour décrire ce confinement, le modèle le plus simple est celui d'un électron dans un puits quantique de potentiel infini. L'électron est décrit par sa fonction d'onde $\psi(\mathbf{r})$. Dans l'approximation de la fonction enveloppe la fonction d'onde de l'électron s'écrit [Bastard 1988] :

$$\psi(\mathbf{r}) = \psi_n(\mathbf{r})u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (2.1)$$

où $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ est la fonction de Bloch qui reproduit la périodicité du réseau cristallin du matériau et $\psi_n(\mathbf{r}) = a_n e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \chi_n(z)$ est la fonction enveloppe variant lentement à l'échelle atomique. De manière générale, la description du mouvement de l'électron de masse m_0 peut être traité comme celui d'un électron libre ayant une masse effective m^* . En approximant par un développement au deuxième ordre la relation de dispersion de l'énergie $E(k)$, la masse effective est donnée par :

$$m^* = \hbar^2 \left(\frac{\partial^2 E(k)}{\partial k^2} \right)^{-1} \quad (2.2)$$

Dans ce cadre, les fonctions propres électroniques dans un puits de potentiel $V(z)$ peuvent être déterminées par résolution de l'équation de Schrödinger :

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + V(z) \right) \chi_n(z) = E_n \chi_n(z) \quad (2.3)$$

où z est la direction d'axe de croissance du puits quantique et $\chi_n(z)$ les fonctions d'ondes enveloppe dans la sousbande n selon z . La figure 2.3 représente le module au carré des fonctions propres solutions de l'équation dans le cas d'un puits en GaAs de 20 nm entre deux barrières $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$.

Dans le cas le plus simple d'un puits de potentiel infini, les énergies propres sont :

$$E_n = \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2m^* L^2} \quad (2.4)$$

où L est la largeur du puits. L'écart entre deux niveaux est alors donné par :

$$\Delta E_n = \frac{\hbar^2 \pi^2 (2n + 1)}{2m^* L^2} \quad (2.5)$$

Cela permet de constater que l'énergie entre deux niveaux ou deux sousbandes (en tenant compte que dans le plan des couches les électrons sont libres et présentent un dispersion parabolique), dépend uniquement de la largeur du puits et le nombre de sousbandes de la hauteur des barrières de potentiel, i.e. la différence d'énergie entre les gaps des matériaux utilisés (aussi appelé *offset*). Ainsi, cela offre une très grande flexibilité pour ajuster l'émission des LCQ en jouant simplement sur la largeur des puits afin de choisir la position des états. C'est l'ingénierie de structure de bande.

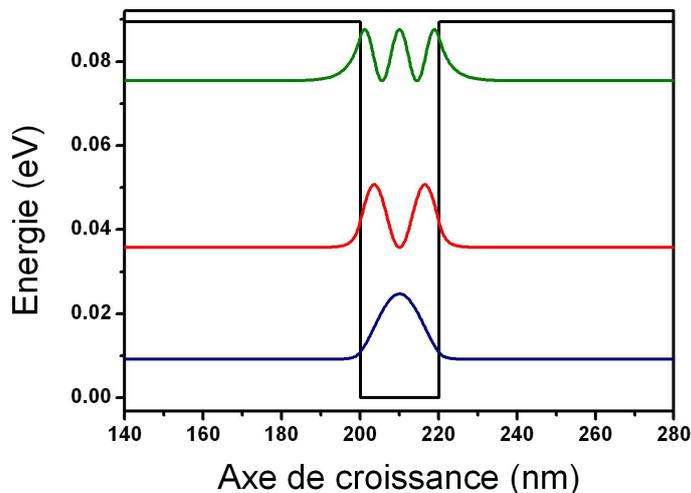


FIGURE 2.3 – Module au carré des fonctions d’ondes électroniques dans un puits quantique déterminé par résolution de l’équation de Schrödinger.

2.1.1.3 Puits quantiques couplés

La figure 2.4 présente l’effet de l’épaisseur de la barrière séparant deux puits quantiques identiques sur le couplage des fonctions d’ondes. Dans cette figure, le module au carré des fonctions d’ondes est représenté. Dans le premier cas, lorsque la barrière est suffisamment épaisse, les fonctions d’ondes sont identiques et localisées chacune dans un puits avec la même énergie propre. Il n’y a pas de couplage entre les électrons des deux puits. La fonction d’onde décroît exponentiellement dans la barrière. Ainsi lorsque celle-ci est suffisamment fine, les électrons des deux puits peuvent se coupler par effet tunnel. Dans ce cas, les fonctions d’onde sont délocalisées dans les deux puits et sont séparées par une énergie d’autant plus grande que la barrière est fine.

Cet effet est utilisé dans la conception des LCQ car en plus de donner un degré de liberté supplémentaire pour définir l’énergie de transitions, cela permet de réaliser le couplage entre différents états par effet tunnel et permettre l’injection d’un courant. L’extension de ce couplage à de nombreux puits a permis l’apparition des super-réseaux proposé en 1970 par L. Esaki et R. Tsu [Esaki 1970]. Dans ces systèmes, l’ensemble des fonctions d’ondes des différents puits forment un continuum nommé minibande. La figure 2.5 présente une simulation pour des puits GaAs/ $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$. La minibande fondamentale et la minibande excitée sont séparés par un minigap.

2.1.2 Fonctionnement des LCQ

Les LCQ sont des lasers unipolaires dont l’émission repose sur des transitions radiatives intersousbandes. La structure de bande d’un LCQ est un multipuits quan-

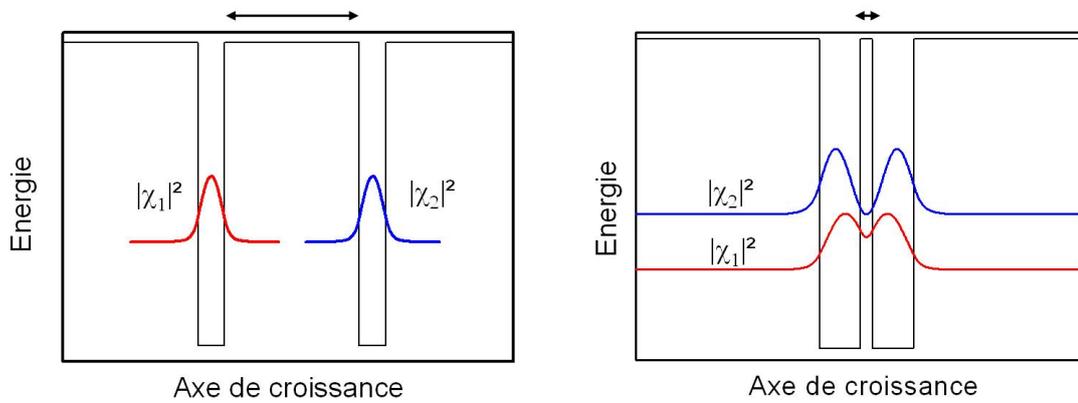


FIGURE 2.4 – Effet de la largeur de barrière sur le couplage des électrons dans des puits quantiques identiques. **A gauche**, pour une barrière large, les fonctions d'onde χ_1 et χ_2 sont localisées dans chaque puits. **A droite**, pour une barrière fine, les fonctions d'onde se délocalisent dans les deux puits par effet tunnel.

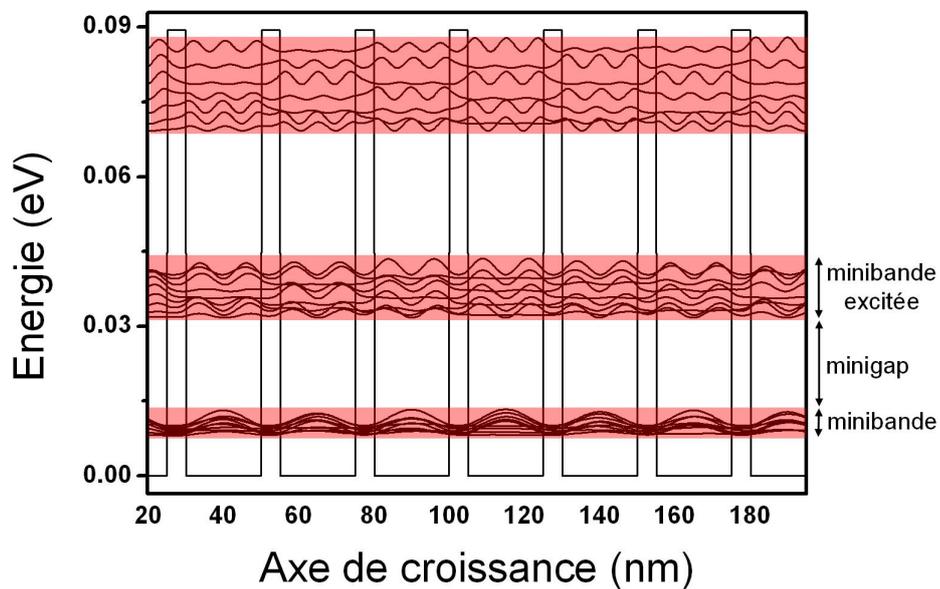


FIGURE 2.5 – Simulation représentant le module au carré des fonctions d'ondes dans un super-réseau constitué de puits en GaAs de 20 nm et de barrières en $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$ de 5 nm. Les minibandes sont surlignées en rouge.

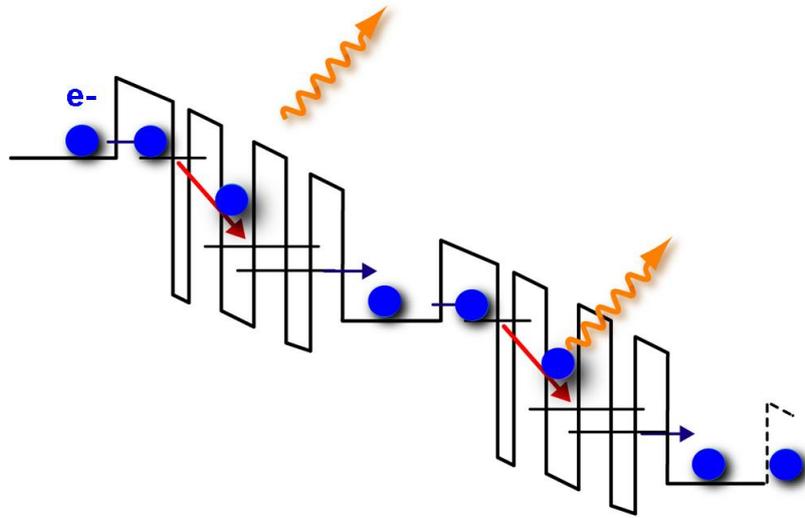


FIGURE 2.6 – Représentation schématique du principe de fonctionnement d'un LCQ.

tiques constitué de barrières fines. Le pompage électrique de ces dispositifs est réalisé par application d'un champ électrique perpendiculairement aux couches minces. Ce champ électrique a pour effet d'introduire un gradient de potentiel dans la structure de bande dont le but est d'aligner les niveaux dans la structure afin d'obtenir une inversion de population et de permettre l'injection de courant. Plus précisément, pour obtenir l'effet laser, il faut qu'au niveau de la transition radiative le temps de vie des électrons sur l'état excité soit plus grand que le temps de vie des électrons de l'état fondamental. Puis, placer ce milieu, disposant d'une inversion de population qui fournit du gain, au sein d'une cavité pour obtenir une rétroaction, conduit à de l'émission stimulée et à l'effet laser. La section **2.2.3** présente le dessin de régions actives (siège de l'effet laser dans un laser) permettant d'obtenir cette inversion de population.

La figure 2.6 montre de façon schématique l'idée sur laquelle repose le fonctionnement des LCQ. L'application d'un champ électrique permet l'injection d'électrons (disques bleus). Un électron est injecté par effet tunnel vers l'état excité de la transition radiative (flèche rouge) pour émettre un photon THz (flèche jaune). Puis l'électron est extrait rapidement après émission d'un photon afin d'être injecté par effet tunnel dans période suivante. C'est le schéma en "cascade". Typiquement, dans un LCQ, ces périodes, qui comprennent un mécanisme d'injection et d'émission radiative, peuvent être répétée plus de cent fois.

Gain des transitions intersousbandes Dans les transitions intersousbandes, le gain intrinsèque, dans le cas où la raie d'émission est lorentzienne, est relié à l'inversion de population par la relation [Liu 2000] :

$$G = \frac{4\pi e^2 z_{ij}^2}{\varepsilon_0 n \lambda \Delta\nu} \Delta n \quad (2.6)$$

où z_{ij} est l'élément de matrice dipolaire entre l'état i et j , n l'indice optique, λ la longueur d'onde, $\Delta\nu$ la largeur de raie et Δn la différence de densité d'électrons volumique entre l'état haut et bas de la transition. Cela permet de comprendre que pour disposer d'un gain élevé dans la structure il faut avoir un fort recouvrement des fonctions d'ondes de la transition optique, une faible largeur de raie et une inversion de population.

Cependant, dans les LCQ, il faut tenir compte du recouvrement du mode optique avec la région active qui n'est pas nécessairement de 100 % selon le type de cavité (voir section 2.3). Pour cela le gain intrinsèque doit être pondéré par un facteur de confinement Γ qui exprime le rapport entre l'énergie de l'onde contenue dans la région active (RA) par rapport à l'énergie totale de l'onde, soit :

$$\Gamma = \frac{\int_{RA} |E(V)|^2 dV}{\int_{-\infty}^{+\infty} |E(V)|^2 dV} \quad (2.7)$$

Dans ce cas, le gain modal est défini comme $\gamma = \Gamma G$.

2.1.3 Régions actives

Nous décrivons dans cette section les principaux dessins de LCQ THz étudiés au LPA et les mécanismes utilisés pour obtenir une inversion de population. Les LCQ THz sont épitaxiés en général à partir de puits en GaAs et de barrières $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. (Pour plus de détails sur la fabrication des LCQ THz, voir la description des échantillons étudiés au **chapitre 4**). En général, différentes zones dans la structure de bande sont à distinguer : la zone d'émission où s'effectue la transition radiative et l'injecteur conçu pour acheminer de manière efficace les électrons d'une zone d'émission à une autre. La zone d'émission et l'injecteur constituent une période de la région active.

Les mécanismes d'émission des LCQ THz que nous étudions au LPA, reposent essentiellement sur deux types de dessins : le premier faisant intervenir une transition radiative entre un continuum d'état et un état lié (par la suite nous dirons par commodité avec la littérature "bound-to-continuum"), le second dessin repose sur un mécanisme de dépopulation de l'état fondamental de la transition laser par émission de phonons optiques.

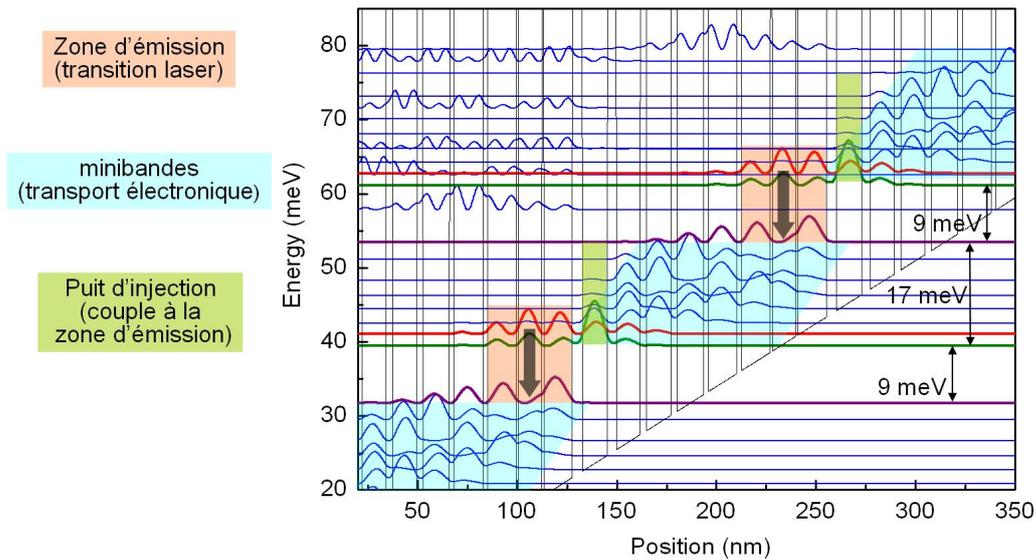


FIGURE 2.7 – Structure de bande d'un LCQ "bound-to-continuum" émettant à 2.1 THz. Les minibandes sont surlignées en bleu, le puits d'injection en vert et la zone d'émission en rouge. L'état haut de la transition laser est représenté en rouge, l'état bas en violet et l'état d'injection en vert.

2.1.3.1 Bound-to-continuum

La figure 2.7 donne un exemple d'une structure de bande pour un LCQ "bound-to-continuum" (BTC) émettant à 2.1 THz dont le dessin a été réalisé par Worrall et al. [Worrall 2005]. Cette simulation représente le module au carré des fonctions d'ondes électroniques calculées par résolution de l'équation de Schrödinger. Dans ce dessin, le transport électronique d'une période à une autre est réalisé par des minibandes (en bleu), réservoirs d'électrons permis par le dopage de certains puits formant les minibandes. Un état est découplé de cette minibande grâce à un puits étroit pour former l'état haut de la transition laser (en rouge). Cet état est peuplé grâce à un état d'injection (en vert) qui couple la minibande à l'état haut de la transition radiative. L'état bas de la transition laser (en violet) correspond à l'état haut de la minibande suivante. Les minibandes permettent de dépeupler rapidement l'état bas de la transition laser grâce à des mécanismes tel que la diffusion aux interfaces [Leuliet 2006] et les interaction électron-électron [Smet 1996].

2.1.3.2 Dépopulation par émission de phonons LO

Les LCQ THz les plus performants à ce jour reposent sur l'émission de phonons LO pour dépeupler l'état bas de la transition laser. Ce type de mécanisme non radiatif est très rapide devant le temps de vie d'une transition radiative. Dans le

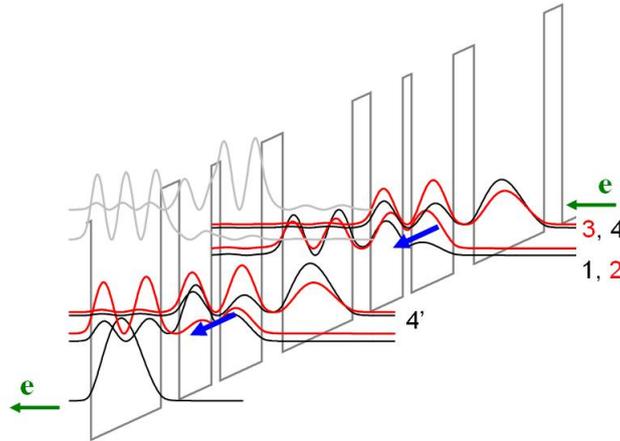


FIGURE 2.8 – Structure de bande d'un LCQ à dépopulation par émission de phonons LO.

GaAs, l'énergie des phonons LO est de 36 meV. Le nombre de puits nécessaires est plus faible que le cas d'un LCQ "bound-to-continuum". La figure 2.8 présente la structure de bande d'un LCQ reposant sur ce type de mécanisme réalisé par Luo et al. [Luo 2007]. Chaque période de la région active est constituée de trois puits. L'état 4 permet l'injection des électrons vers la transition optique 3-2. Puis, l'état bas est rapidement dépeuplé par l'émission d'un phonon optique entre l'état 1 et 4' dont la transition est résonante avec les phonons LO du matériau.

Ces deux types de dessins présentent différents avantages. Les LCQ BTC ont en règle générale un courant seuil plus faible mais sont moins performants en terme de température et de puissance émise. Les LCQ à dépopulation par phonons LO demandent quant à eux un champ appliqué plus grand et ont un courant seuil plus élevé mais présentent de meilleures performances en température et délivrent une plus grande puissance optique. Cela est permis grâce à la dépopulation résonante.

2.1.3.3 Limitations des LCQ THz

Les LCQ THz ne fonctionnent encore qu'à basse température. Lorsque la température (ou kT) augmente, il devient difficile de conserver la sélectivité de l'injection d'électrons par effet tunnel pour conserver une inversion de population. Généralement, le processus de relaxation électron-phonon optique est dominant et présente des temps de vie très brefs (quelques ps) [Ferreira 1989]. Dans le cas des LCQ THz, les transitions impliquées sont plus faibles en énergie que les phonons optiques et ces mécanismes de relaxation deviennent importants à mesure que l'énergie des transitions approche l'énergie des phonons optiques. Dans le cas de transitions inférieures à l'énergie des phonons optiques, ce sont généralement les interactions électrons avec phonons acoustiques et électron-électron qui dominent. Les temps de relaxa-

tion de ces mécanismes sont très dépendants de la température des électrons. La limitation en température est donc en partie liée au fait que lorsque la température des électrons est grande et que ceux-ci occupent des états de grand vecteur d'onde dans une sousbande, l'interaction avec phonons LO peut se produire avec des temps de relaxation très brefs, détériorant l'inversion de population. De plus, ces temps de relaxation diminuent quand la température augmente et favorisent également d'autres mécanismes tels que l'interaction entre électrons et impuretés ou interfaces [Callebaut 2003].

2.1.4 L'injecteur

L'injecteur est la partie de la structure qui permet le transport des électrons jusqu'à la transition radiative. Dans le cas d'un LCQ BTC, par exemple, l'injecteur est constitué d'un grand nombre de puits formant une minibande (voir figure 2.7). Les injecteurs dans la structure sont dopés n par des atomes de silicium pendant la croissance. L'utilité du dopage dans ces couches est de fournir des porteurs pour le passage du courant. La concentration du dopage est un point important lors du dessin de LCQ car une concentration trop élevée ($>10^{17} \text{ cm}^{-3}$) augmente les pertes par porteurs libres et une trop faible concentration ($< 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) réduit la plage de courant à laquelle le laser peut opérer.

La figure 2.9 présente une mesure typique de la tension aux bornes du LCQ en fonction de la densité de courant (en noir) et la puissance optique en rouge, aussi appelée caractéristique L-I-V (pour Lumière-Intensité-Voltage). Un spectre d'émission typique est ajouté en insert. Trois principaux régimes sont discernables. Le régime 1 correspond à celui sous le seuil laser et le champ électrique perpendiculaire aux couches n'apporte pas à un gradient de potentiel suffisamment élevée afin de coupler convenablement l'injecteur avec la transition optique. En général, ce régime est également qualifié de parasite car le transport du courant est opéré par des canaux différents de ceux permettant une émission radiative. Le régime 2 correspond au régime où le pompage est suffisant pour que le gain augmente. Lorsque le gain est suffisamment élevé, l'action laser se déclenche et une puissance optique est détectée. Ce changement de régime se manifeste par un changement de la pente sur la caractéristique tension-courant, signe d'une baisse de la résistance. Cela est caractéristique d'un régime d'inversion de population, signe que les niveaux dans la structure sont bien alignés. Enfin, le régime 3 correspond à l'arrêt de l'action laser dû au découplage de l'injecteur avec la transition radiative. La puissance optique diminue et l'effet laser stoppe.

2.2 Géométrie des LCQ

Dans les sections précédentes nous décrivions la zone de gain du LCQ. Dans cette section, nous nous concentrons sur la géométrie des LCQ THz qui est adaptée à un pompage électrique et constituée d'une cavité optique. Il existe une particularité

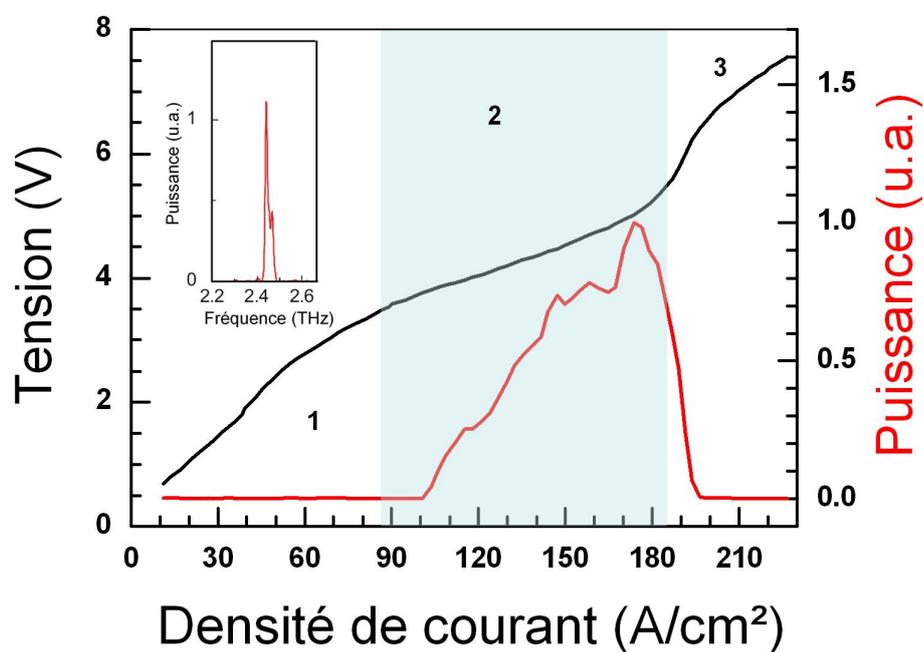


FIGURE 2.9 – Tension en fonction de la densité de courant d'un LCQ THz (en noir) et puissance optique (en rouge). En insert est représenté le spectre d'émission mesurée par FTIR.

spécifique aux LCQ THz qui réside dans la nécessité de guider des ondes de grande longueur d'onde ($\lambda \sim 100 \mu\text{m}$). Différents types de cavités ou résonateurs existent et sont déterminants quant à la puissance émise, l'orientation et la divergence du faisceau ou encore l'aspect spectral de l'émission. Les LCQ THz étudiés dans cette thèse sont pourvus de cavités les plus communes, à savoir de type Fabry-Pérot. D'autres types de cavités ont été étudiés pour, par exemple, obtenir une émission monomode en couplant un réseau à la cavité (DFB pour *Distributed FeedBack*) [Malher 2004]. Ou encore, l'émission par la surface a été rendue possible par l'ajout de cristaux photoniques [Colombelli 2004].

2.2.1 Description

La figure 2.10 présente de façon schématique la géométrie typique d'un LCQ munie d'une cavité de type Fabry-Pérot. La cavité est obtenue par clivage du matériau où chaque extrémité sert de miroir (appelés également "facettes"). Une fois le procédé technologique de fabrication achevé, un LCQ THz se présente sous la forme d'un ruban laser (appelé *ridge*) dont la longueur est de l'ordre de quelques centaines de μm à quelques mm. L'épaisseur du ruban est environ équivalente à celle de la région active soit $\sim 10 \mu\text{m}$ et sa largeur peut varier de quelques dizaines à quelques centaines de μm . Sur le schéma, le plan des couches formant les puits et barrières quantiques sont représentées par des traits noirs. Le haut du ruban se termine généralement par une couche dopée ($\sim 10^{18} \text{cm}^{-3}$) et une couche métallique afin d'assurer l'injection électrique. La circulation du courant est permise par l'ajout de bandes métalliques de part et d'autre du ruban permettant de polariser le LCQ.

La cavité de type Fabry-Pérot permet de confiner longitudinalement l'onde THz et la gravure en méssa du ruban permet le confinement transverse par contraste d'indice. En ce qui concerne le confinement vertical, des guides à plasmons de surface confinant l'onde entre une couche métallique et la région active sont adaptés aux longueurs d'ondes des LCQ THz (faibles pertes). Dans ce cas, deux types de guidage sont connus : les guides simple plasmons dans lesquels le mode THz est guidé entre le contact supérieur métallique et le substrat, et les guides métal-métal (ou double métal) où la région active est insérée entre deux couches métalliques.

Le rôle du guide est d'optimiser le recouvrement entre le mode optique et la région active tout en minimisant les pertes. Celui-ci a donc un rôle déterminant sur le courant seuil du dispositif. Le courant seuil dépend effectivement des pertes optiques et est défini par :

$$J_{seuil} = \frac{\alpha_m + \alpha_g}{g\Gamma} \quad (2.8)$$

où α_m sont les pertes induites par les miroirs ou facettes de la cavité optique et α_g les pertes liées au guide, en général liées au dopage de la région active. g est le gain en $\text{cm}^{-1}.\text{A}^{-1}$ et Γ le facteur de confinement donné en (2.7).

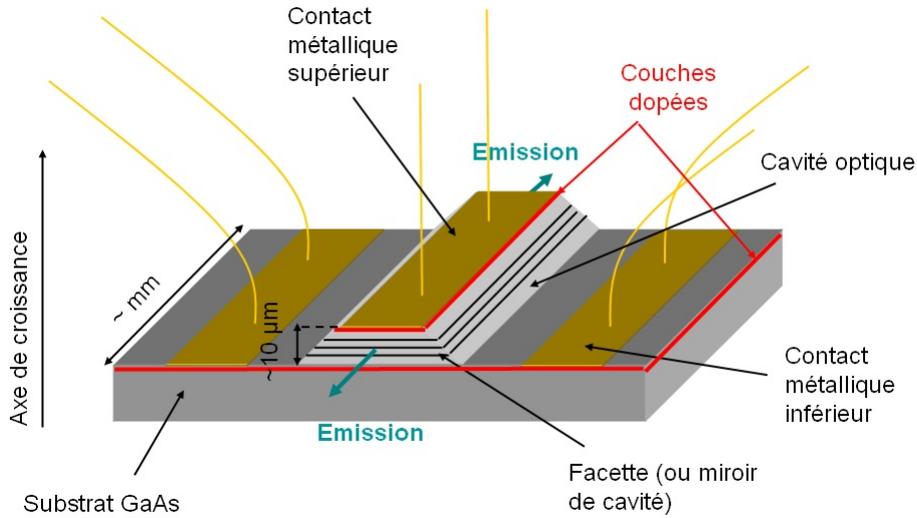


FIGURE 2.10 – Schéma présentant la géométrie d'un LCQ avec une cavité Fabry-Pérot. La région active est en gris clair dans laquelle des lignes noires indiquent l'orientation des couches.

2.2.2 Pertes optiques

Le contrôle des pertes optiques est décisif dans le bon fonctionnement d'un LCQ et même d'un laser en général. Deux types de pertes doivent être considérées, les pertes par les facettes (ou miroirs) de la cavité Fabry-Pérot et les pertes liées à l'absorption par le matériau causée par les porteurs libres issus du dopage de l'injecteur.

2.2.2.1 Pertes par les facettes

Les pertes par les facettes sont données par :

$$\alpha_m = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{1}{R} \right) \quad (2.9)$$

où L est la longueur de la cavité et R la réflectivité des facettes définie par le contraste d'indice entre l'air et le semiconducteur, soit $R = \frac{(n_1 - n_2)^2}{(n_1 + n_2)^2}$. Par exemple, pour une cavité de 3 mm et $R=0.32$, les pertes sont de 3.8 cm^{-1} . Il faut noter cependant que cette expression de la réflectivité reste une approximation convenable dans le cas d'un guide simple plasmon mais n'est plus valable dans le cas d'un guide double métal dont la réflectivité peut-être bien supérieure (0.5-0.9) et dans la réflectivité des facettes doit plutôt être traitée comme un problème de désadaptation d'impédance [Kohen 2004].

2.2.2.2 Pertes par les porteurs libres

Dans les LCQ, la principale cause des pertes dans le guide sont liées à l'absorption par porteurs libres. De manière classique, ce type de pertes peut être décrit par un modèle de Drude en estimant l'indice complexe dans le matériau semiconducteur. La constante diélectrique du matériau peut se mettre sous la forme $\varepsilon(\omega) = \varepsilon' + i\varepsilon'' = (n' + in'')^2$. Dans ce cas, les parties réelle et imaginaire de la constante diélectrique peuvent s'écrire :

$$\varepsilon'(\omega) = \varepsilon'_0 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (2.10)$$

$$\varepsilon''(\omega) = \frac{\tau\omega_p^2}{\omega(1 + \tau^2\omega^2)} \quad (2.11)$$

où τ est un temps de diffusion dans le matériau, et où ω_p est la fréquence plasma donnée par :

$$\omega_p = \frac{e^2 n}{\varepsilon_0 m^*} \quad (2.12)$$

où ε_0 est la permittivité du vide et n le dopage par unité de volume. Les parties réelles et imaginaires de l'indice complexe peuvent s'écrire alors sous la forme :

$$n' = \sqrt{\frac{|\varepsilon| + \varepsilon'}{2}} \quad (2.13)$$

$$n'' = \sqrt{\frac{|\varepsilon| - \varepsilon'}{2}} \quad (2.14)$$

En sachant que les pertes sont reliées à la partie imaginaire de l'indice par :

$$\alpha = \frac{4\pi n''}{\lambda} \quad (2.15)$$

les pertes par porteurs libres peuvent se simplifier sous la forme, dans le cas où $\omega \gg \omega_p$ et $\varepsilon' \gg \varepsilon''$:

$$\alpha = \frac{4\pi\omega_p}{2\lambda\sqrt{\varepsilon'_0}\omega^3\tau} \quad (2.16)$$

Typiquement, les régions actives des LCQ THz contribuent aux pertes à hauteur environ de $5\text{-}10 \text{ cm}^{-1}$ pour un guide simple plasmon. Elles sont en général plus grande dans un guide de type double métal.

2.2.3 Guidage par plasmons de surface

Pour permettre la propagation de l'onde THz dans la cavité du LCQ et confiner au maximum celle-ci dans la région active, des plasmons de surface sont utilisés. (Le guidage diélectrique est difficile en raison des grandes longueurs d'onde de la gamme THz.) Les plasmons de surfaces sont des solutions particulières de équations

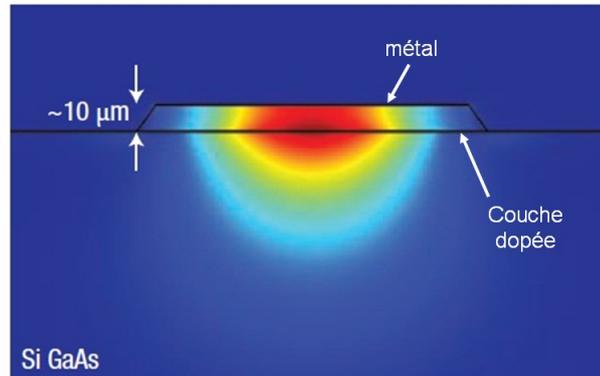


FIGURE 2.11 – Allure du mode transverse THz dans une cavité à guide simple plasmon. Figure issue de [Williams 2007]

de Maxwell apparaissant lorsque deux matériaux dont la partie réelle des constantes diélectriques sont de signes opposés [Raether 1988]. Dans un LCQ THz, les plasmons de surface sont générés à l'interface entre la couche métallique et la région active. Le plasmon de surface est alors une onde évanescente de part et d'autre de l'interface dont l'épaisseur de peau est faible dans le métal en raison d'une très forte absorption et assez grande dans le semiconducteur pour recouvrir au moins toute la région active.

2.2.3.1 Guide simple plasmon

Les guides simple plasmon consistent à confiner l'onde THz entre, d'une part, la couche métallique supérieure par plasmons de surface et une couche mince fortement dopée ($0.2-0.8 \mu\text{m}$) située sous la région active et déposées sur le substrat GaAs semi-isolant (voir figure 2.10). La figure 2.11 présente l'allure typique du mode transverse dans un LCQ THz à guide simple plasmon. Dans ce type de guidage, le mode s'étend substantiellement dans le substrat et les facteurs de confinement typiques sont de l'ordre de $0.1-0.3$. Comme le mode est relativement peu confiné, ce type de guide autorise l'utilisation de ruban assez large avant d'observer l'apparition de modes transverses multiples. Néanmoins, l'emploi de rubans plus étroits que $100 \mu\text{m}$ environ tend à déplacer le mode vers le substrat, empêchant l'utilisation de dispositifs de petite surface.

Dans cette thèse, les LCQ étudiés comportent ce type de guide.

2.2.3.2 Guide métal-métal

L'alternative au guide simple plasmon est le guide métal-métal qui consiste en deux couches métalliques disposées au-dessus et en-dessous de la région active. Cela permet d'accéder à un facteur de confinement proche de l'unité (voir figure 2.12) permettant de meilleures performances en température. C'est d'ailleurs avec ce type

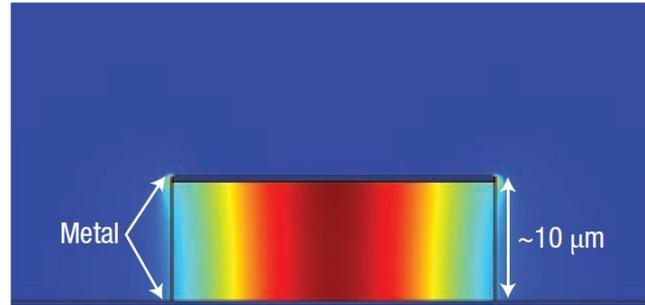


FIGURE 2.12 – Allure du mode transverse THz dans une cavité à guide double métal. Figure issue de [Williams 2007]

de guide que les meilleures performances en température ont été démontrées. En effet, le confinement extrêmement fort du mode permet de réduire la taille du ruban laser de façon sublongueur d'onde. Or, cela induit une augmentation de la réflectivité des facettes liés à la désadaptation d'impédance entre le mode intracavité et le mode en espace libre. Cela permet ainsi de réduire les pertes les miroirs et d'obtenir une densité de courant seuil plus faible, favorisant le fonctionnement à température plus élevée. Les principaux inconvénients de ce type de guide est la divergence du rayonnement très forte en comparaison d'un guide simple plasmon [Adam 2006], une fabrication difficile (*wafer bonding*) et des facettes pas toujours lisses.

Les antennes photoconductrices interdigitées

Sommaire

2.1	Ingénierie des lasers à cascade quantique	29
2.1.1	Niveaux d'énergie dans une hétérostructure de semiconducteurs	29
2.1.2	Fonctionnement des LCQ	32
2.1.3	Régions actives	35
2.1.4	L'injecteur	38
2.2	Géométrie des LCQ	38
2.2.1	Description	40
2.2.2	Pertes optiques	41
2.2.3	Guidage par plasmons de surface	42

Dans le chapitre suivant, nous verrons comment la technique de spectroscopie THz est utilisée pour mesurer le spectre du gain de LCQ THz. Cette expérience repose sur la mesure d'une impulsion THz transmise à travers la cavité d'un LCQ. Dans notre montage expérimental de spectroscopie THz, nous utilisons des antennes photoconductrices pour générer ces impulsions THz. Or, pour obtenir l'information la plus riche possible sur le comportement spectral du gain et des pertes dans un LCQ THz, il faut disposer d'antennes photoconductrices dont le spectre d'émission soit le plus large possible. Pour réaliser cela, notre montage s'appuie sur une génération d'impulsions THz par des antennes à géométrie interdigitée [Dreyhaupt 2005] et à un système de détection électro-optique (voir **chapitre 1**). Ce montage nous permet, typiquement, d'accéder à une gamme spectrale comprise entre 1 et 4 THz. La limitation à haute fréquence provient principalement de la source photoconductrice dont la durée des impulsions est limitée par la durée de celles du laser à modes bloqués Ti:Sa employé (voir **chapitre 1**).

Cependant, des raisons nous motivent à vouloir disposer d'une source dont le spectre s'étend vers des fréquences plus élevées. Tout d'abord, cela ouvre la possibilité d'accéder au gain des LCQ THz dont la fréquence d'émission (et le gain) se situe au-delà de 4 THz. Puis, dans l'optique de mieux comprendre le fonctionnement des LCQ, étendre le spectre d'émission des antennes photoconductrices permet d'accéder au spectre du gain et des pertes à plus haute fréquence.

Pour étendre ce spectre, nous avons réalisé deux types d'optimisations. La première optimisation concerne les antennes photoconductrices à géométrie interdigitée. De nombreuses études ont été réalisées sur l'optimisation des antennes à géométrie plus simple (constituées de deux électrodes métalliques coplanaires ou en nœud de papillon) par ajustement de paramètres géométriques [Cai 1997] ou encore de paramètres liés au faisceau d'excitation [Shi 2009]. Encore aucune étude sur l'optimisation des antennes interdigitées n'a été proposée alors qu'elles présentent de nombreux avantages pour la spectroscopie THz comme nous le verrons dans ce chapitre. Nous montrons qu'il est possible de décaler le spectre d'émission des antennes interdigitées en ajustant un paramètre géométrique lors du processus de fabrication : la largeur de l'espace entre les électrodes métalliques. Nous avons procédé à une étude comparative de plusieurs antennes interdigitées d'espaces inter-électrodes différents (que nous avons fabriquées dans la salle blanche de l'ENS) dont nous avons mesurer le spectre d'émission par spectroscopie THz. Nous avons comparé le résultat de ces mesures aux simulations issues d'un modèle simple de type Drude-Lorentz que nous avons adapté à la spécificité des antennes interdigitées. Cette étude montre que le spectre se décale vers les hautes fréquences lorsque l'espace entre électrodes diminue. Nous avons attribué cet effet à l'écrantage coulombien du champ électrique entre électrodes plus rapide pour les petits espaces inter-électrodes [Madéo 2010].

La seconde optimisation réalisée concerne le montage expérimental en lui-même. Classiquement, les antennes sont illuminées par les impulsions optiques via la face où se situent les électrodes et le rayonnement THz émis est ensuite collecté après transmission du faisceau à travers son substrat en GaAs. Or, celui-ci présente une dispersion aux fréquences THz ce qui induit un allongement de la durée des impulsions THz et un rétrécissement du spectre d'émission. Pour se soustraire à ce phénomène, nous avons réalisé un montage de l'antenne en réflexion qui permet d'étendre le spectre jusqu'à 6 THz.

Ce chapitre commence par une description des antennes à géométrie interdigitée, puis présente les avantages et inconvénients de cette structure comparées aux antennes photoconductrices "conventionnelles". Nous présentons le modèle utilisé pour réaliser nos simulations et les informations qu'il nous permet d'obtenir sur ce dispositif (comme l'évolution du champ électrique entre électrodes). Dans la deuxième partie, nous exposons les techniques de micro-fabrications utilisées puis le protocole permettant l'élaboration de ces antennes. Enfin, nous présentons les études concernant l'optimisation des antennes et du montage expérimental.

3.1 Antennes photoconductrices à géométrie interdigitée

La façon dont une source photoconductrice permet de rayonner des impulsions dans la gamme THz est détaillée au chapitre 1. Pour rappel, le principe est d'illuminer avec un faisceau proche-IR délivrant des impulsions très brèves (~ 100 fs

typiquement) l'espace entre deux électrodes métalliques polarisées déposées sur un substrat en GaAs. La brusque accélération des charges photo-créées génère un courant transitoire auquel est associée une impulsion électromagnétique courte dans la gamme THz (0.1-4 THz généralement).

Les antennes photoconductrices les plus couramment employées sont les antennes de type dipôle consistant simplement en deux électrodes métalliques parallèles ou en nœud de papillon (*bow-tie*) [Cai 1997] dont l'espace entre électrodes peut varier de quelques μm à quelques mm. Pour les émetteurs à petit espace entre électrodes, l'émission THz est très divergente car la diffraction de l'onde THz est très prononcée. L'inconvénient de ces dispositifs est que le faisceau d'excitation, alors focalisé sur une petite surface, agit comme une pupille diffractante pour l'onde THz conduisant à un rayonnement fortement divergent et donc à une mauvaise collection de celui-ci par des optiques telles que des miroirs paraboliques. Pour palier à ce problème, il est courant d'utiliser des lentilles en silicium collées sur le substrat pour limiter l'effet de la diffraction mais l'ajout d'une telle optique, bien que techniquement maîtrisé, reste délicat. L'espace entre électrodes peut alors être augmenté afin de limiter l'effet de la diffraction. Mais dans ce cas, une tension plus importante est nécessaire.

Les antennes photoconductrices que nous utilisons (à géométrie interdigitées) sont des dispositifs micro-structurés à large surface d'illumination ce qui permet de limiter l'effet de diffraction, donc sans recourir à l'ajout d'une lentille en silicium. Elles fonctionnent également avec de faibles tensions électriques (quelques volts) ce qui permet l'emploi de sources commerciales standard (GBF) et une modulation en fréquence élevée facilement réalisable.

3.1.1 Description des antennes photoconductrices interdigitées

L'utilisation d'une structure interdigitée pour la génération d'impulsions THz a été montrée par Dreyhaupt et al. en 2005 [Dreyhaupt 2005]. Ce type d'antenne consiste en deux électrodes métalliques en peigne symétriques (voir figure 3.1), dans le sens où les électrodes et l'espace les séparant sont de même largeur (de l'ordre de $10 \mu\text{m}$). Les électrodes qui constituent la région centrale appelée région active (en moyenne de $500 \mu\text{m} \times 500 \mu\text{m}$) sont reliées entre elles de part et d'autre par des contacts métalliques permettant la mise sous tension (voir figure 3.1). Le disque rouge sur le schéma de la figure 3.1 représente le diamètre du faisceau optique permettant la génération de porteurs. Le diamètre du faisceau est sensiblement le même que celui de la région active. Cela permet d'illuminer cette région avec un faisceau dont le diamètre est plus grand que la longueur d'onde d'émission ($1 \text{ THz} \sim 300 \mu\text{m}$ dans l'air) permettant ainsi de limiter l'effet de la diffraction.

Si une structure telle qu'elle est présentée en figure 3.1 était utilisée en l'état, le champ THz émis serait quasi nul. En effet, la polarisation du champ électrostatique appliqué, dans ce cas de figure, est de sens opposé entre deux espaces inter-électrodes

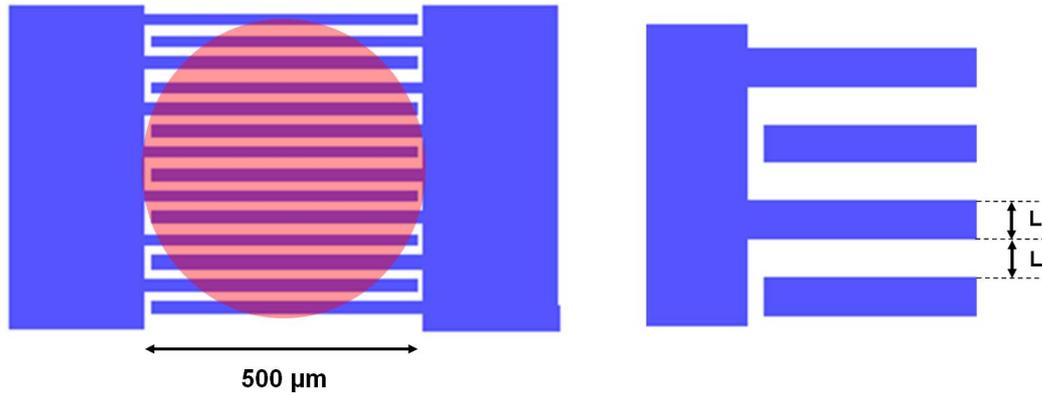


FIGURE 3.1 – **A gauche** : Schéma des électrodes interdigitées. Le disque rouge représente la taille du faisceau d’excitation optique. **A droite** : Agrandissement d’une partie du schéma de gauche. L’espace entre deux électrodes est égal à la largeur de chaque électrode.

successifs. La polarisation des ondes THz émises dans un espace inter-électrode est la même que le champ électrostatique appliqué car le mouvement des charges suit ces lignes de champ. Cela conduit à ce que les champs THz rayonnés entre deux espaces inter-électrodes successifs sont en opposition de phase et interfèrent de manière destructive en champ lointain (voir figure 3.2).

Pour supprimer ces interférences destructives, il faut faire en sorte que seules les régions dont la polarisation du champ appliqué sont de même sens puissent rayonner. La technique consiste à masquer un espace sur deux avec une grille métallique superposée au premier motif métallique, appelée seconde métallisation (voir figure 3.2). La figure 3.3 montre une vue en coupe d’une antenne interdigitée. Elle est constituée d’un substrat en GaAs d’une épaisseur de $500\ \mu\text{m}$ sur lequel est déposé le motif interdigité tel qu’il est représenté en figure 3.1 et appelé première métallisation. Ensuite, un isolant de type SiO_x d’une épaisseur d’environ $600\ \text{nm}$ et transparent dans l’infrarouge est déposé au dessus de la première métallisation afin de l’isoler électriquement de la seconde métallisation. En fait, l’épaisseur de cette couche d’isolant est suffisamment faible pour que les pertes par absorption soient négligeables dans le proche-IR et le THz [Palik 1998]. La seconde métallisation est un dépôt métallique dont le motif est de périodicité double du premier motif et permet de masquer un espace inter-électrode sur deux. Les champs THz rayonnés issus des espaces inter-électrode non masqués sont ainsi en phase et interfèrent de manière constructive en champ lointain.

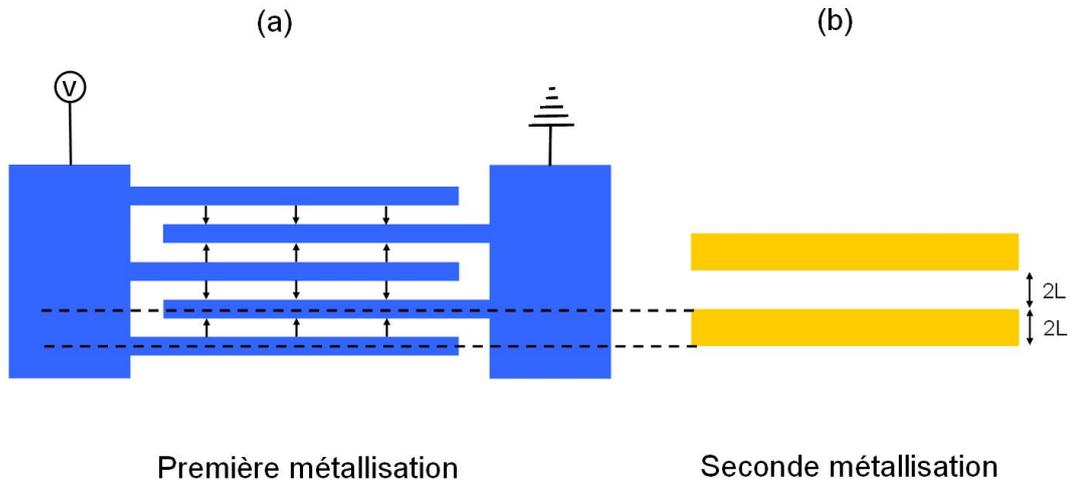


FIGURE 3.2 – (a) Schéma représentant l'orientation et le sens du champ statique entre les électrodes interdigitées de la première métallisation. La géométrie interdigitée impose que le sens du champ électrostatique change de sens d'un espace inter-électrodes à l'autre. (b) Seconde métallisation permettant de sélectionner le sens de la polarisation de périodicité double masquant un espace inter-électrode sur deux.

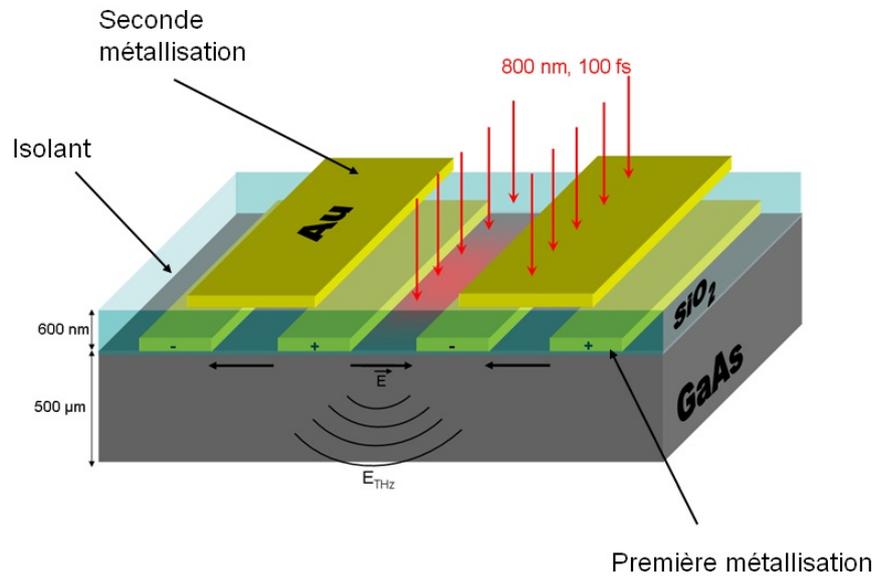


FIGURE 3.3 – Vue en coupe d'une partie d'une antenne interdigitée constituée d'un substrat en GaAs d'une épaisseur de $500\ \mu\text{m}$, du motif interdigité en or, d'une couche d'isolation électrique transparente pour le faisceau d'excitation d'une épaisseur de $600\ \text{nm}$ et d'une grille métallique de masquage.

3.1.2 Avantages de la structure interdigitée

Ces dispositifs présentent de nombreux avantages comparés aux émetteurs photoconductifs constitués de deux électrodes. Comparés aux antennes dipôles à petit espace entre électrodes, l'illumination recouvre une large surface limitant ainsi l'effet de diffraction et ne nécessite pas d'avoir recours à une lentille en silicium pour limiter l'effet de la diffraction. Une surface d'illumination large permet également de limiter les contraintes thermiques liées à l'excitation laser et de pouvoir employer des impulsions avec des puissances crêtes plus élevées (provenant d'amplificateurs régénératifs Ti:Sa par exemple) afin de disposer d'une source THz plus intense.

Comparées aux antennes à large surface, les structures interdigitées demandent une faible consommation électrique. Usuellement, le champ statique inter-électrodes est de l'ordre de plusieurs dizaines de kV/cm. Cela équivaut, pour des antennes de type dipôle à large espace, à appliquer des tensions pouvant aller jusqu'à plusieurs centaines de Volts à des fréquences de modulation pour la détection synchrone de l'ordre de 50 kHz (modulation typique). De telles alimentations sont onéreuses et, de plus, ajoutent du bruit et des interférences sur les équipements électroniques sensibles de laboratoire à proximité. Les antennes photoconductrices interdigitées, en raison du faible espace inter-électrodes (micrométrique), peuvent être alimentées par des générateurs basses fréquences commerciaux standard capable de délivrer des tensions de 10 V.

3.1.3 Inconvénients des antennes interdigitées

Pour une antenne interdigitée, le nombre d'espaces inter-électrodes peut être grand (~ 50 pour une antenne à espace inter-électrodes de $5 \mu\text{m}$). Cela donne une capacité plus élevée à la structure comparé à un dipôle simple et peut limiter son fonctionnement à fréquence élevée. Ensuite, du point de vue de l'émission, les antennes munies d'une lentille Si ne présentent pas d'écho dans le domaine temporel. A l'inverse, une antenne interdigitée possède une interface substrat/air plane qui conduit à ajouter des échos correspondant à un aller-retour dans le substrat dans les traces temporelles. Cela peut être gênant dans la mesure où le signal transmis à travers un échantillon coïncide avec un de ces échos. La figure 3.4 présente la trace temporelle d'une antenne photoconductrice interdigitée montrant les échos séparés par le temps que parcourt l'onde THz pour effectuer un aller-retour dans le substrat.

Pour limiter cet effet, un substrat épais du même type que celui utilisé pour fabriquer l'antenne, ou ayant un indice très proche est collé sous le substrat de l'antenne. Cela permet de repousser ces échos si leur présence est néfaste pour les mesures.

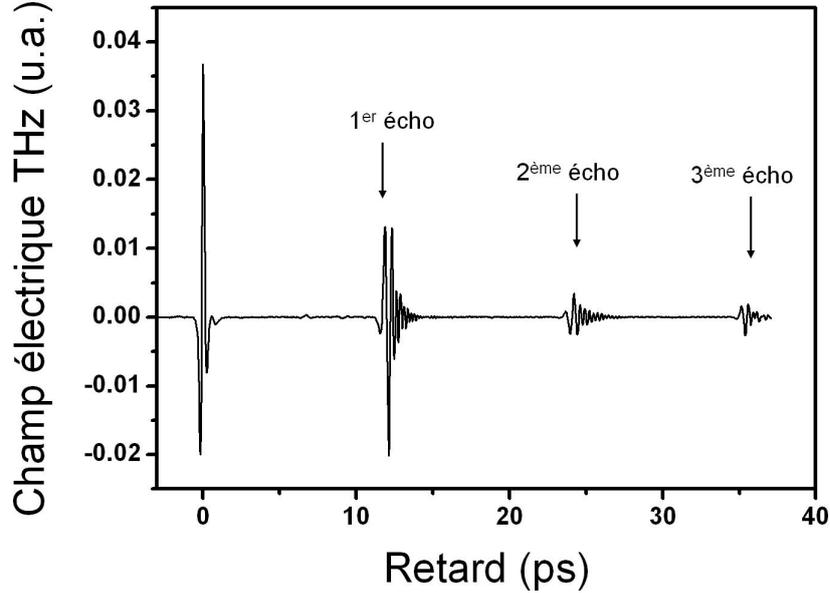


FIGURE 3.4 – Trace temporelle d’une antenne photonconductrice interdigitée sur un substrat GaAs de $500\ \mu\text{m}$. Le premier écho est à 12 ps, le second à 24 ps et le troisième à 36 ps.

3.1.4 Modèle de Drude-Lorentz appliqué aux antennes photoconductrices interdigitées

Pour étudier ces structures, nous avons adapté le modèle présenté au **chapitre 1** à la spécificité de la structure interdigitée. Dans ce modèle adimensionnel, les champs électriques ainsi que les densités de charges sont supposés uniformes. Seule la contribution des électrons est prise en compte. La géométrie ne pouvant pas être intégrée dans ce modèle, tous les espaces inter-électrodes composant la géométrie interdigitée sont ramenés à un dipôle uniformément éclairé ayant la capacité équivalente de l’ensemble de la structure. L’antenne est alors considérée comme une capacité se déchargeant par l’impulsion optique.

L’évolution du nombre de porteurs photo-générés $N(t)$ générés par une excitation optique gaussienne peut s’écrire [Jepsen 1996] :

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\frac{N(t)}{\tau_c} + G(t) \quad (3.1)$$

où τ_c est le temps de vie des porteurs et plus précisément le temps de capture par les impuretés. $G(t)$ est la fonction de génération de porteurs par l’impulsion optique et s’écrit :

$$G(t) = \frac{1}{4} \frac{N_{photons}(1-R)}{T\sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{t-t_0}{T}\right)^2} \quad (3.2)$$

avec

$$N_{photons} = \frac{\langle P_{opt} \rangle}{f_{rep} E_{photon}} \quad (3.3)$$

où $N_{photons}$ est le nombre de photons contenus dans une impulsion optique, $\langle P_{opt} \rangle$ la puissance moyenne optique d'excitation, R la réflectivité du matériau ($\simeq 0.25$ pour le GaAs aux longueurs d'ondes du proche infrarouge), T la durée de l'impulsion optique et f_{rep} le taux de répétition du laser. Le facteur $\frac{1}{4}$ provient du fait que seul le quart de la surface du substrat est illuminée en raison de la géométrie de l'antenne.

L'évolution de la vitesse de dérive des porteurs photo-générés est donnée par :

$$\frac{dv(t)}{dt} = -\frac{v(t)}{\tau_s} + \frac{eE(t)}{m^*} \quad (3.4)$$

où $E(t)$ est le champ inter-électrode et τ_s un temps de diffusion moyen. L'évolution de ce champ induit par le déplacement en bloc du gaz de charges est donnée par :

$$\frac{dE(t)}{dt} = -\frac{2eN(t)v(t)}{CL^2} + \frac{E_{app} - E(t)}{T_c} \quad (3.5)$$

où C est la capacité interdigitée, L la largeur de l'espace entre électrodes et T_c le temps caractéristique de charge du circuit, grand devant la période du battement THz généré, ce qui permet de considérer que toute la physique de l'antenne a lieu avant que celle-ci ait pu se recharger. Le premier terme de l'équation décrit la polarisation créée par déplacement du bloc de charges et le second la recharge (lente) de l'antenne.

La capacité interdigitée dans l'approximation d'un substrat infiniment épais s'écrit [Soole 1991] :

$$C = \frac{K(k)}{K(k')} \frac{\varepsilon_0(1 + \varepsilon_r)A}{L_d + L_g} \quad (3.6)$$

avec

$$K(k) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{\sqrt{1 - k^2 \sin^2 \varphi}} d\varphi \quad \text{et} \quad \begin{cases} k = \tan^2\left(\frac{\pi}{4} \left(\frac{L_d}{L_d + L_g}\right)\right) \\ k' = \sqrt{1 - k^2} \end{cases} \quad (3.7)$$

où ε_0 est la permittivité du vide, ε_r est la constante diélectrique du substrat ($\simeq 13$ dans le GaAs), A est l'aire interdigitée, L_d la largeur de l'électrode et L_g la largeur de l'espace inter-électrode. Dans le cas d'une antenne symétrique, $L_d = L_g = L$.

Nous avons écrit un programme MATLAB pour résoudre ce système d'équations différentielles couplées. Une fois l'évolution de la vitesse des porteurs calculée, il est possible d'évaluer l'allure du courant en utilisant la relation : $j = -en(t)v(t)$, puis d'accéder à l'allure de champ THz rayonné en calculant la dérivée du courant par rapport au temps (voir chapitre 1). Ce modèle bien que simple permet de simuler l'allure du champ électrique THz sous l'influence de divers paramètres. Le spectre des fréquences composant celui-ci est par la suite obtenu par transformée de Fourier rapide.

3.1.5 Simulations numériques

Voici un exemple de simulations obtenues grâce au modèle précédent. Ces simulations sont obtenues pour une antenne d'espace inter-électrode $L = 10 \mu\text{m}$ où règne un champ statique de 30 kV/cm , une excitation optique à 820 nm d'une durée de 100 fs avec un taux de répétition de 76 MHz . Le temps de capture des porteurs choisi est de 30 ps et un temps de diffusion de 70 fs [Jepsen 1996]. La capacité de la structure est calculée à 1.56 pF . L'arrivée de l'impulsion laser coïncide avec $t_0 = 1 \text{ ps}$. La figure 3.5 présente le résultat de ces simulations par résolution des équations du modèle. Le champ électrique THz (a) est un battement quasi mono-cycle d'une durée d'environ 1 ps dont l'allure est calculé par la dérivée du courant par rapport au temps (b). Le spectre associé à ce rayonnement (c) s'étend entre environ 0.1 et 5 THz , avec un maximum à 1 THz environ. La courbe (d) représente l'évolution du champ électrostatique entre les électrodes. Pour un champ appliqué donné initial, après l'illumination par l'impulsion optique, l'amplitude de ce champ décroît rapidement sur une durée égale au temps de montée de l'impulsion de courant. C'est l'effet d'écrantage coulombien induit par la distribution des charges photo-générées.

3.1.6 Mesures et validité du modèle

Pour vérifier la validité du modèle simple exposé au paragraphe précédent, nous comparons le résultat des simulations pour une antenne interdigitée possédant un espace inter-électrode de $10 \mu\text{m}$ aux mesures du champ électrique et du spectre associé par spectroscopie THz dans le domaine temporel. Pour réaliser ces mesures, nous avons employé le dispositif expérimental présenté au chapitre 1. Une tension crête positive de 30 V cadencée à 50 kHz est appliquée aux bornes de l'antenne (soit 30 kV/cm) et utilisée comme référence pour la détection synchrone. L'antenne est illuminée par des impulsions centrées à 820 nm d'une durée à mi-hauteur de 100 fs avec un taux de répétition de 76 MHz . Le faisceau issu de l'antenne est collecté par une série de miroirs paraboliques hors axe puis focalisé sur le système de détec-

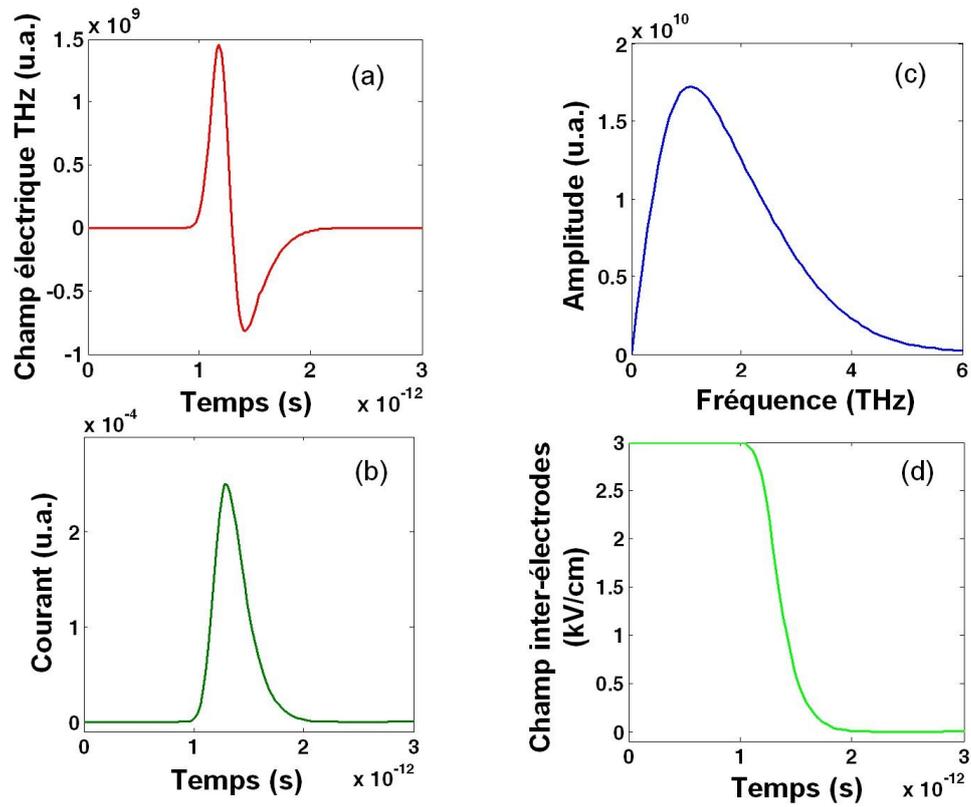


FIGURE 3.5 – Simulation de différents paramètres d’une antenne photoconductrice interdigitée d’espace inter-électrode de $10\mu\text{m}$ reposant sur un modèle de Drude-Lorentz. (a) Champ électrique THz rayonné par le dispositif. (b) Photocourant généré entre les électrodes. (c) Spectre du champ THz rayonné obtenu par transformée de Fourier de la courbe (a). (d) Champ électrique inter-électrodes montrant l’écrantage par les charges photo-générées

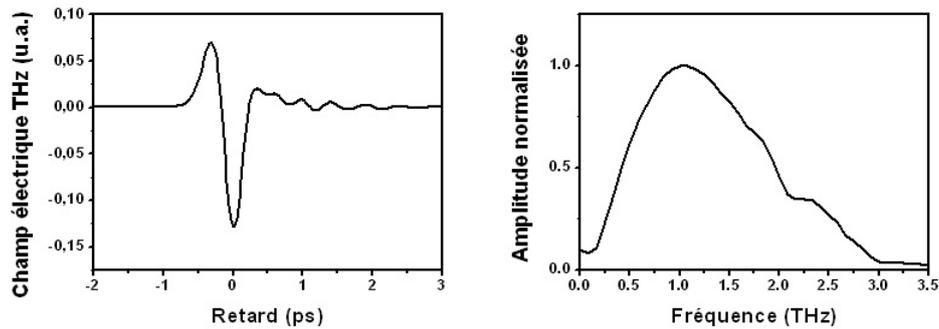


FIGURE 3.6 – **A gauche** Champ électrique THz d’une antenne interdigitée d’espace inter-électrode de $10\ \mu\text{m}$ mesuré par spectroscopie THz dans le domaine temporel. **A droite** Spectre associé obtenu par transformée de Fourier.

tion électro-optique muni d’un cristal de ZnTe d’une épaisseur de $200\ \mu\text{m}$. La figure 3.6 présente les mesures typiques du champ électrique THz détecté en fonction du temps et le spectre associé.

L’amplitude du spectre est maximale autour de 1 THz en accord avec le spectre simulé. Cependant, le spectre détecté ne s’étend pas au-delà de 3 THz environ. Ceci est attribué au fait que les simulations n’incluent pas l’effet de l’absorption et du désaccord de phase dans le cristal de détection [Gallot 2006]. L’allure des champs rayonnés est tout à fait comparable, les différences observées s’expliquant par les mêmes raisons. Ce modèle assez simple permet alors d’estimer l’influence de différents paramètres, notamment géométriques en tenant compte de la capacité interdigitée. En effet, ce modèle a été mis en place pour comparer l’effet de la variation de l’espace inter-électrode dans des conditions d’excitation et d’utilisation identiques (voir section 3.3).

3.2 Fabrication des antennes photoconductrices interdigitées

Dans cette section, nous décrivons comment fabriquer les antennes interdigitées. Nous avons élaborer toutes les antennes présentées dans la suite dans la salle blanche de l’ENS en collaboration de M. Rosticher. Nous présentons dans un premier temps les techniques de micro-fabrication employées avant de déterminer sur une description détaillée du protocole de fabrication de ces dispositifs.

3.2.1 Techniques de fabrication utilisées

3.2.1.1 Lithographie optique

Cette technique est parmi les plus employées pour l'élaboration de micro-structures [Levinson 2005]. Elle consiste à reproduire le motif d'un masque optique sur une résine photosensible. Lorsque ce type de résine est exposée à un rayonnement (UV en général), sa chimie change de telle façon que la partie exposée (ou inversement la partie ombrée selon la résine choisie) puisse être dissoute dans une solution de développement appropriée.

Résine photosensible De nombreux types de résines pour la photolithographie sont disponibles dans le commerce. Deux catégories de résines se démarquent particulièrement. Les résines dites positives pour lesquelles la partie exposée au rayonnement est dissoute dans une solution de développement. A l'inverse, les résines négatives sont celles pour lesquelles la partie ombrée est dissoute.

Notre choix s'est portée sur l'AZ 5214E qui a la propriété de pouvoir agir en résine négative ou positive selon le traitement thermique et optique subi. Ce choix se justifie par l'utilisation d'un procédé de *lift-off* (voir paragraphe 3.2.1.3) nécessitant une résine ayant un profil particulier permis par une résine négative (voir figure 3.8). Cette résine est déposée sur un substrat de GaAs semi-isolant ou basse température (préalablement nettoyé par immersion dans un solvant et dans un bain à ultra-sons) par enduction centrifuge (*spin coating* en anglais). Avec une vitesse de rotation de 4000 tr/min, l'épaisseur de résine déposée est d'environ 1.4 μm (données du fabricant). Après dépôt, le substrat est chauffé afin que la résine durcisse (*soft bake*).

Lithographie UV La lithographie UV se fait à l'aide d'un aligneur de masque (ici le modèle MJB4 de "Carl Suss"). La technique de lithographie utilisée est celle par contact. Le masque optique est positionné au contact direct de la résine photosensible et est exposé au rayonnement issue d'une source UV ($\lambda=350$ nm). La résolution du motif reproduit dans un tel système est donné par la limite de diffraction de Fresnel soit :

$$R \simeq \sqrt{\lambda(d + e)} \quad (3.8)$$

où d est la distance séparant le masque de la résine et e l'épaisseur de résine. Une épaisseur de résine de 1.4 μm implique une résolution maximale théorique d'environ 1 μm . L'exposition est relativement courte (quelques secondes) et permet de transférer l'image du motif dans la résine.

Traitement de la résine La résine utilisée doit subir certains traitements dans le but de devenir négative. Pour inverser l'image, il faut recuire la résine (*hard bake*) puis l'exposer entièrement aux UV pendant 25 s (*flood exposure*). Une fois ces étapes achevées, l'image est inversée et l'échantillon peut être plongé dans une solution de

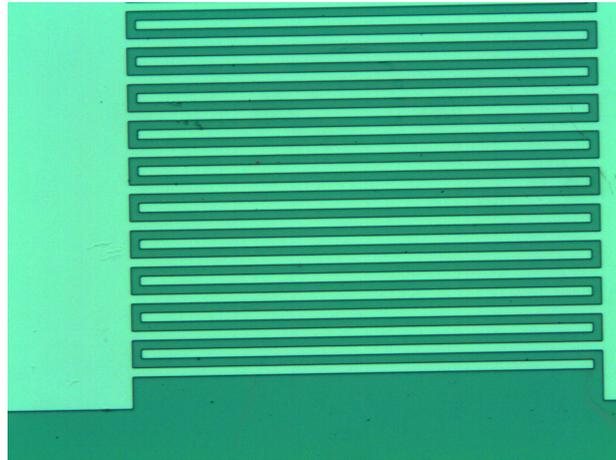


FIGURE 3.7 – Photo au microscope optique du motif pour la première métallisation d’une antenne interdigitée d’espace inter-électrodes de $10\ \mu\text{m}$ après un processus complet de lithographie UV. La partie claire correspond aux endroits où la résine a été dissoute pour faire apparaître le substrat.

développement (AZ MIF 736) qui dissout la résine qui n’a pas été exposée la première fois. Les temps de première exposition et de développement sont critiques sur la rugosité des bords de résine, mais également sur le respect des proportions des motifs. (Pour une résine positive, le protocole est identique, seule la phase d’inversion d’image n’est pas réalisée).

Par exemple, un temps d’exposition trop long conduit à un mauvais contraste entre le motif et le reste de la résine, et provoque des difficultés lors du développement. À l’inverse, un premier temps d’exposition trop court donne un contraste très fort, mais rend l’action de la solution de développement trop rapide. Le temps de recuit est également un paramètre ajustable sur la qualité du contraste et de l’inversion d’image. Une étude systématique de ces paramètres a été réalisée afin de déterminer quels temps caractéristiques permettent de reproduire fidèlement les motifs dessinés. La figure 3.7 montre le résultat d’un processus de photolithographie après dissolution de la résine pour un motif interdigité d’espace inter-électrodes de $10\ \mu\text{m}$.

3.2.1.2 Dépôts de métaux et d’isolants

Les métallisations sont réalisées par évaporation sous vide par effet Joule. Les métaux à évaporer, l’or et le chrome, sont placés dans des creusets en alumine. Ces creusets sont eux-mêmes disposés dans des paniers en tungstène reliés à une source de courant. L’échantillon est placé au dessus des creusets face vers le bas. Lors du passage du courant au travers du panier ($\sim 40\ \text{A}$), une partie de l’énergie thermique est

transmise au creuset, et le métal contenu en son sein est vaporisé verticalement vers l'échantillon dans une enceinte sous vide (10^{-6} mbar). Dans un premier temps, 10 nm de chrome sont déposés. Cette couche est appelée couche "d'accroche" et permet à la couche d'or d'adhérer au matériau. Puis, environ 150 à 200 nm d'or sont déposés.

Le motif interdigité constituant la première métallisation doit être isolé électriquement de la seconde grille de métallisation afin de masquer un espace inter-électrode sur deux. Pour cela, un dépôt de SiO est réalisé. Celui-ci est déposé par la même méthode que les métaux, à la différence que des températures bien plus élevées sont nécessaires à son évaporation. Pour cela, de la silice est placée dans un creuset spécifique en tantale parcouru par un très fort courant (> 150 A) qui a été conçu de telle manière que le flux de chaleur soit concentré en son centre. Un dépôt d'environ 500 nm est réalisé car 400 nm sont requis au minimum afin de s'assurer que la couche d'isolation ne comporte pas de défauts. En effet, ce matériau ne se dépose pas de façon uniforme mais par formation de plots.

3.2.1.3 Technique du *lift-off*

Cette technique, utilisée pour chaque métallisation, consiste à retirer, après évaporation métallique, le métal déposé sur la résine qui n'a pas été dissoute après lithographie UV afin de ne conserver que le motif métallique interdigité. Cette procédure consiste à plonger l'échantillon dans un bain de solvant (acétone). L'acétone va permettre la dissolution de la résine contenue sous la couche métallique et ainsi le retrait de toute la partie métallique excédentaire. L'utilisation d'une résine négative se justifie par l'utilisation de cette technique. En effet, le métal déposé sur le substrat et sur la résine doivent être disjoints. Les flancs de la résine doivent avoir un profil autorisant ceci. La figure 3.8 illustre le principe de la technique et le compare au cas d'une résine positive.

3.2.1.4 Gravure humide et sèche d'isolant

Une étape de gravure de la couche d'isolation en SiO est nécessaire. En effet, le dépôt est uniforme sur toute la surface de l'échantillon. Il faut donc, afin de pouvoir connecter électriquement l'antenne, graver l'isolant jusqu'à la couche métallique tout en laissant la zone interdigitée isolée. Pour cela, de la résine est déposée pour protéger la région interdigitée et le SiO autour est gravé. Deux méthodes de gravure ont été étudiées : la gravure chimique et la gravure ionique réactive. Pour la gravure chimique, l'échantillon est plongé dans un bain d'acide fluorhydrique (HF). Cette méthode a rapidement montré ses limites car l'acide peut s'immiscer sous la couche isolante, faire apparaître une partie du réseau interdigité à nu, rendant l'ajout d'une seconde grille métallique problématique. De plus, le HF est un produit dangereux et demande des précautions importantes de sécurité. La gravure ionique réactive (ou RIE de l'anglais *Reactive Ion-Etching*) est une méthode de gravure de type plasma

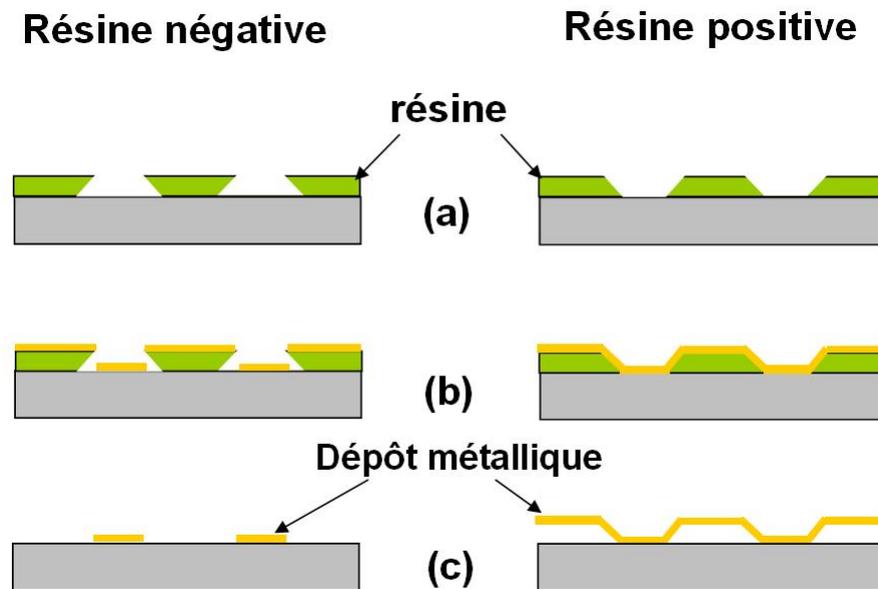


FIGURE 3.8 – **A gauche** Procédure de *lift-off* dans le cas d'une lithographie avec résine négative. **A droite** Procédure de *lift-off* dans le cas d'une lithographie avec résine positive. **(a)** Après lithographie UV et développement. **(b)** Après évaporation métallique. **(c)** Après *lift-off*

très contrôlée [Coburn 1982]. Cette méthode repose sur la génération d'un plasma d'un gaz de CHF_3 qui agit physiquement et chimiquement. C'est cette technique qui est préférée car elle autorise un contrôle précis en temps réel de l'épaisseur gravée.

3.2.2 Protocole de fabrication des antennes interdigitées

La fabrication d'antennes interdigitées se réalise en quatre étapes :

1. Fabrication d'un masque pour lithographie optique
2. Lithographie du motif interdigité - Première métallisation
3. Isolation électrique du motif interdigité
4. Réalisation de la grille de masquage - Seconde métallisation

3.2.2.1 Etape 1 : Fabrication d'un masque pour lithographie optique

La première étape du processus de fabrication consiste à dessiner, à l'aide d'un logiciel de Dessin Assisté par Ordinateur, les différents motifs nécessaires aux différentes étapes de fabrication des antennes. Le logiciel de DAO utilisé est Tanner L-Edit. La figure 3.9 présente le dessin que nous avons réalisé pour une antenne

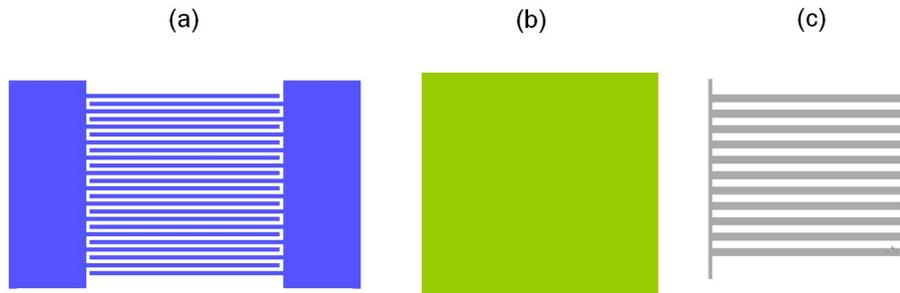


FIGURE 3.9 – Etape 1 : Dessin réalisé pour une antenne interdigitée avec un espace inter-électrode de $10\mu\text{m}$. (a) Motif pour la première métallisation. (b) Motif pour la gravure de l'isolant. (c) Motif pour la grille de seconde métallisation.

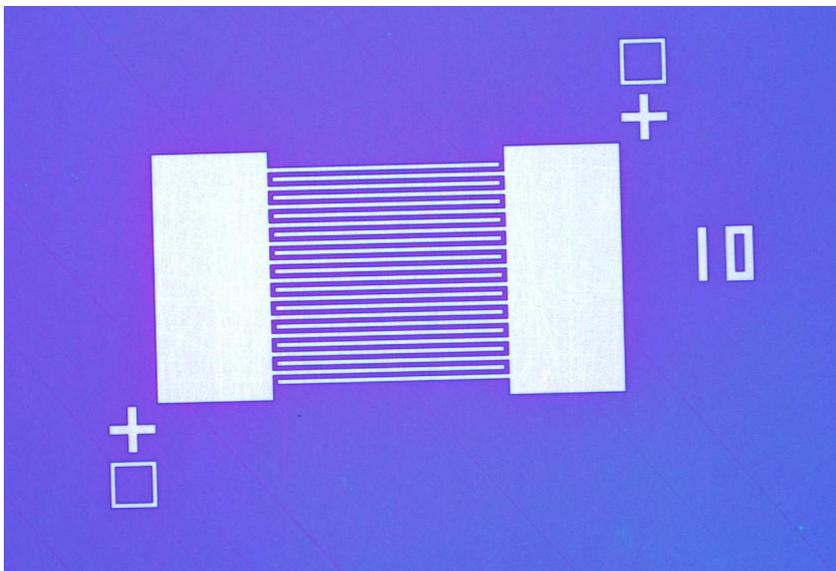


FIGURE 3.10 – Photo prise au microscope optique du motif sur le masque d'une antenne interdigitée d'espace inter-électrode de $10\mu\text{m}$.

interdigitée avec un espace inter-électrode de $10\ \mu\text{m}$.

Ce dessin est utilisé par la suite pour la réalisation d'un masque optique. Les masques ont tous été fabriqués dans la salle blanche de l'UPMC en collaboration de R. Gohier. Les motifs sont reproduits à l'aide d'un appareil de lithographie laser de marque "Heidelberg Instruments". Ce procédé permet d'illuminer une résine photosensible déposée sur une plaque en quartz dont une face est enduite de chrome. Un laser focalisé reproduit automatiquement les motifs dessinés par ordinateur sur la résine chimiquement réactive à la longueur d'onde de ce laser. Par la suite, la technique repose sur le principe décrit au paragraphe 3.2.1.1. La figure 3.10 montre une photo du masque chrome correspondant au motif de première métallisation en figure 3.9. La partie blanche sur la photo correspond à la partie chromée du masque. Les deux croix et carrés observables aux coins opposés du motif sont des marqueurs d'alignement qui permettent de s'assurer de la bonne superposition du motif de seconde métallisation sur ce motif.

3.2.2.2 Etape 2 : Lithographie du motif interdigité et première métallisation

La figure 3.11 présente schématiquement la seconde étape de fabrication. La première métallisation est réalisée en plaçant le masque contenant le motif interdigité en contact direct avec le substrat enduit de résine et préalablement durcie pendant 1min45 à 125°C sur une plaque chauffante. L'échantillon est soumis à la première exposition UV symbolisée par les flèches bleues pendant 5 s. Puis, l'échantillon est à nouveau chauffé (renversement de l'image) pendant 1min50 à 125°C . Il est ensuite exposé à nouveau, mais cette fois-ci sans masque, aux UV pendant 25 s. Enfin, il est plongé dans la solution de développement pendant 30 s. S'ensuit l'évaporation métallique et le *lift-off*.

La figure 3.12 est une photo prise au microscope optique après cette première étape pour une antenne interdigitée avec un espace inter-électrode de $10\ \mu\text{m}$. La zone comportant les doigts interdigités est située entre les deux surfaces métalliques permettant la connexion électrique.

Le tableau suivant récapitule les paramètres optimaux pour la lithographie UV (350 nm) avec résine négative AZ 5214E :

Enduction résine	Soft bake	1 ^{ere} exposition
4000 tr/min, 30s	1'45, 125°C	5s

Hard bake	2 ^{eme} exposition	Développement
1'50, 125°C	25s	30s

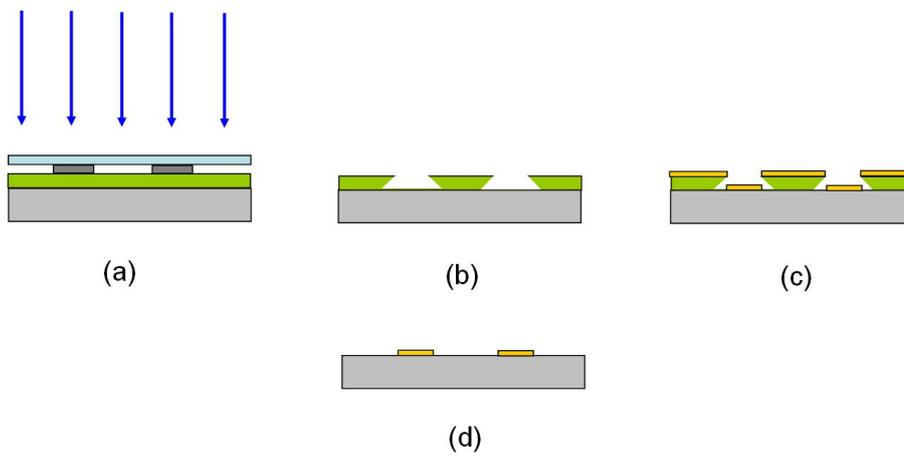


FIGURE 3.11 – **Etape 2** : Réalisation de la première métallisation. (a) : Première exposition avec masque optique. (b) : Résine après processus complet de lithographie. (c) : Echantillon après évaporation métallique. (d) : Echantillon après *lift-off*

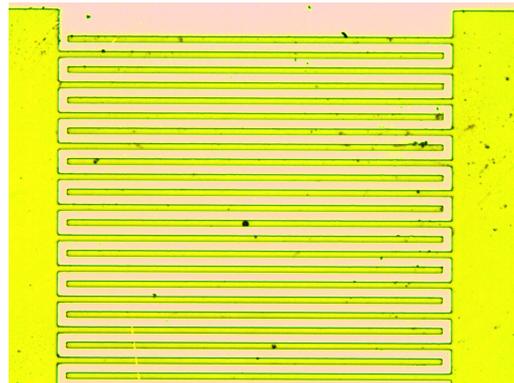


FIGURE 3.12 – Photo au microscope optique de la première métallisation d'une antenne interdigitée.

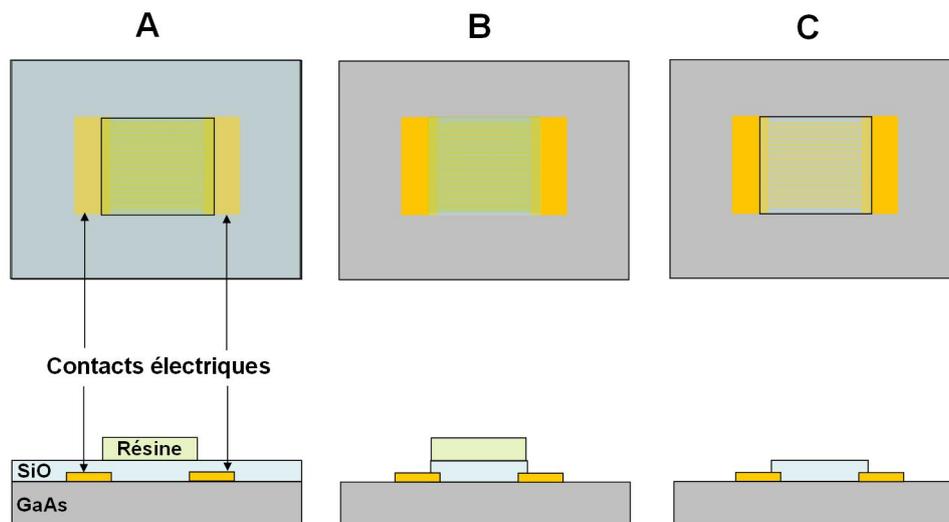


FIGURE 3.13 – **Etape 3** Isolation de la zone interdigitée. **A** Echantillon après dépôt de SiO et résine de protection. **B** Echantillon après gravure ionique réactive. **C** Echantillon après dissolution de la résine restante.

3.2.2.3 Etape 3

La figure 3.13 montre l'étape d'isolation de la partie interdigitée. Une fois la première métallisation achevée, le dépôt de SiO est réalisé. Puis, un second processus de lithographie avec les mêmes paramètres que l'étape 1 doit être opéré. Un masque consistant en un carré dont les dimensions permettent de couvrir la zone interdigitée est utilisé. Après le processus de développement de la résine, l'aire interdigitée est protégée par une couche de résine (A). L'échantillon est préparé pour la gravure ionique réactive et est uniformément gravé jusqu'au substrat, excepté la partie protégée par la résine (B). Enfin, la résine est dissoute dans un solvant (C).

3.2.2.4 Etape 4

La dernière étape de ce processus de fabrication consiste à déposer la grille de masquage. La même technique de lithographie est employée. A l'aide de l'aligneur de masque muni d'un microscope, le motif de la grille sur le masque est aligné (à l'aide de marqueurs d'alignement) sur le motif interdigité de première métallisation. Cette partie est la plus délicate du processus de fabrication car il faut s'assurer, d'une part que la grille ne pourra induire de court-circuit avec la zone interdigitée et d'autre part, qu'un espace inter-électrodes sur deux est parfaitement masqué. De plus, la résolution de ce système tant du point de vue du microscope d'alignement que de la finesse du motif dans la résine atteint rapidement ses limites à partir d'éléments inférieurs à $2\mu\text{m}$. C'est pourquoi les antennes fabriquées les plus fines

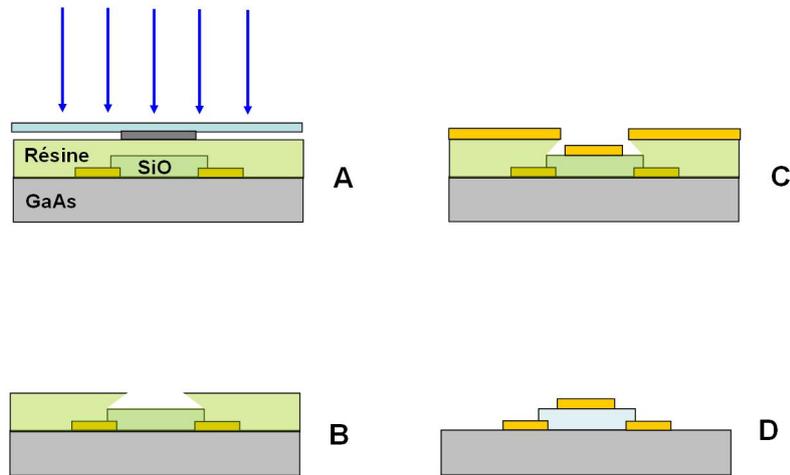


FIGURE 3.14 – **Etape 4** Réalisation de la grille de masquage. **A** Exposition aux UV du motif de la grille. **B** Après lithographie. **C** Après évaporation métallique. **D** Après *lift-off*.

dont les caractéristiques sont présentées dans la suite de ce chapitre ont un espace inter-électrodes de $2 \mu\text{m}$. Des résolutions inférieures au μm peuvent être atteintes par lithographie par projection [Levinson 2005].

La figure 3.15 est une photo d'une antenne interdigitée finale. De manière générale, un grand nombre d'antennes peut être fabriqué en une seule fois avec un masque optique approprié. Usuellement, le quart d'un *wafers* de GaAs de 2 pouces permet de réaliser une matrice de 20 antennes espacées de 2 mm les unes des autres afin de disposer d'un certain confort lors de l'utilisation et du montage de l'échantillon sur un support optique. L'échantillon comportant les antennes est collé à la laque d'argent sur une plaque de cuivre dans laquelle un trou est percé pour le passage de l'onde THz. Le cuivre et la laque d'argent permettent de plus une meilleure tenue en température par une meilleure dissipation thermique. Des plots en céramique enduits d'une couche d'or sont collés de part et d'autre de l'échantillon sur lesquelles des fils de cuivres gainés sont soudés pour la connexion électrique. Les antennes sont reliées connectées à ces plots par microsoudure à ultra-son de fils d'or ou d'aluminium de $25 \mu\text{m}$. Le dispositif est ensuite collé à une monture optique commerciale pour y être inséré comme source dans le montage de spectroscopie THz. La figure 3.16 présente une photo du montage final d'une série de 12 antennes photoconductrices interdigitées dont l'espace inter-électrodes varie de 2 à $20 \mu\text{m}$.

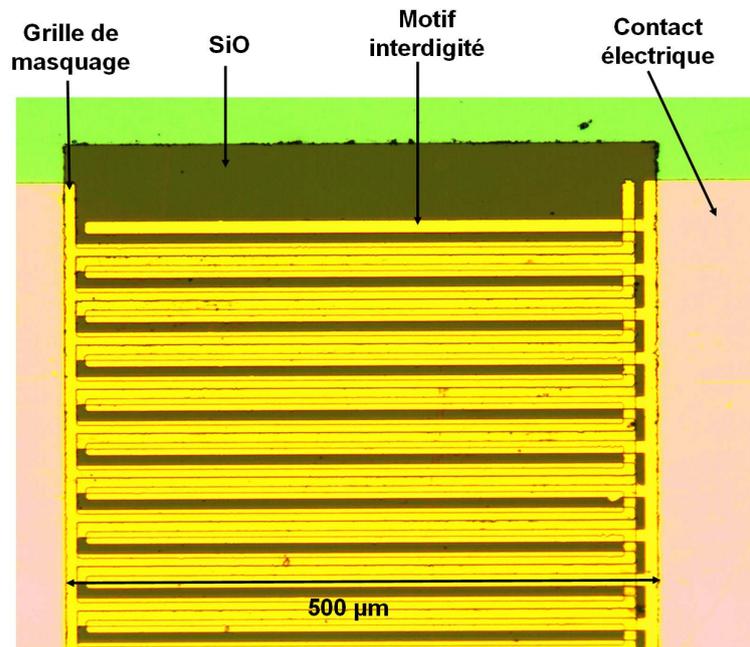


FIGURE 3.15 – Photo au microscope optique de la structure finale d'une antenne interdigitée.

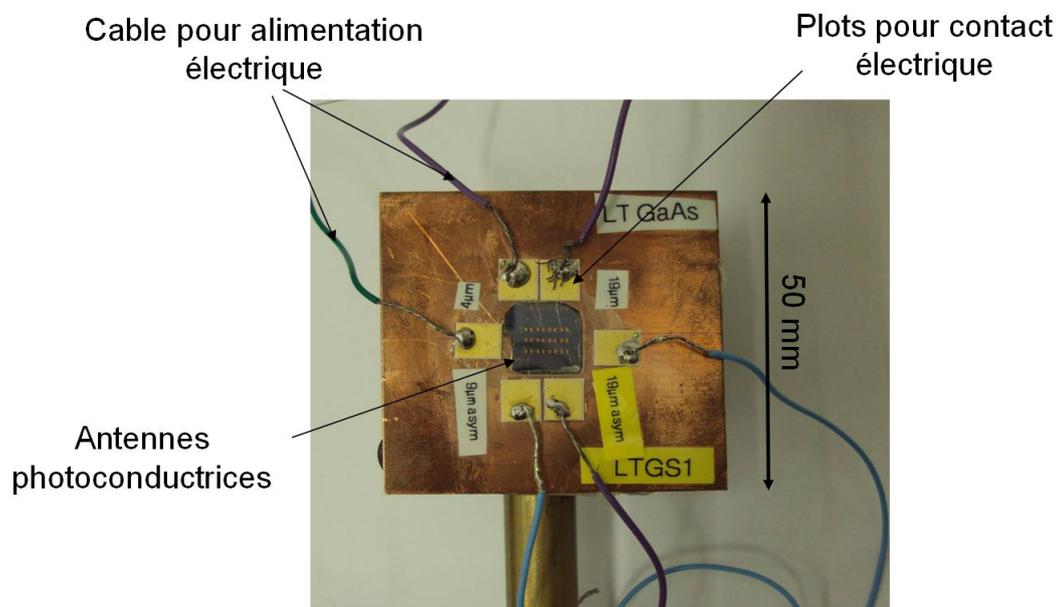


FIGURE 3.16 – Photo du montage finale d'une série de 12 antennes photoconductrices

3.3 Etude de l'accordabilité des antennes photoconductrices interdigitées

Nous présentons dans cette section, l'étude concernant l'optimisation des antennes interdigitées, qui montre qu'il est possible de décaler le spectre d'émission des antennes interdigitées vers les hautes fréquences en réduisant la largeur de l'espace inter-électrodes [Madéo 2010]. Les antennes interdigitées sont des dispositifs récents et aucune étude sur l'aspect géométrique n'a encore été réalisée. De plus, Il est aisé d'étudier l'influence de la largeur de l'espace inter-électrodes sur une structure interdigitée car cette géométrie permet, contrairement aux antennes simples, de conserver la surface totale excitée, même avec des espacements inter-électrodes différents. Alors, seul l'effet de la géométrie de l'espace inter-électrodes sur les impulsions THz générées peut être étudié et découplé de la densité de puissance optique d'excitation qui reste constante d'une antenne à l'autre.

3.3.1 Mesure des spectres et champs électriques THz des antennes fabriquées

Nous avons fabriqué une série d'antennes interdigitées symétriques avec des espaces entre électrodes de $2 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$ et $20 \mu\text{m}$. La surface excitable de chacune de ces antennes est de $6 \times 10^4 \mu\text{m}^2$ pour une surface totale de l'aire interdigitée de $2.5 \times 10^5 \mu\text{m}^2$. Les caractéristiques de l'émission sont mesurées par spectroscopie THz munie d'un cristal de détection de ZnTe de $200 \mu\text{m}$. La surface des antennes est illuminée par un faisceau d'excitation d'un diamètre de l'ordre de l'aire interdigitée ($\sim 500 \mu\text{m}$). Les mesures présentées ont été réalisées avec une puissance moyenne d'excitation de 600 mW et un champ appliqué de 30 kV/cm correspondant à une tension de 60 V , 30 V , 15 V et 6 V pour les antennes de $20 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$ respectivement. La figure 3.17 présente les mesures des spectres en fréquences et des champs électriques en fonction du temps obtenues pour les quatre types d'antennes fabriquées.

Les fréquences associées aux pics des spectres sont 0.73 , 1.04 , 1.25 et 1.33 THz pour les antennes de $20 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$, respectivement. Le spectre se décale vers des fréquences plus élevées à mesure que l'espace entre électrodes est réduit. Par exemple, à 2.75 THz l'amplitude spectrale est de 0.09 , 0.14 , 0.19 , et 0.24 pour les antennes de $20 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$, respectivement.

3.3.2 Comparaison aux données expérimentales

Pour comprendre le phénomène précédemment observé, nous avons comparé le résultat des mesures au modèle établi en section 3.1. La figure 3.18 présente une comparaison entre les valeurs mesurées expérimentalement et calculées par le modèle de Drude-Lorentz de la fréquence du maximum de l'amplitude du spectre pour les quatre types d'antennes fabriquées. Pour s'assurer de la tendance observée, nous

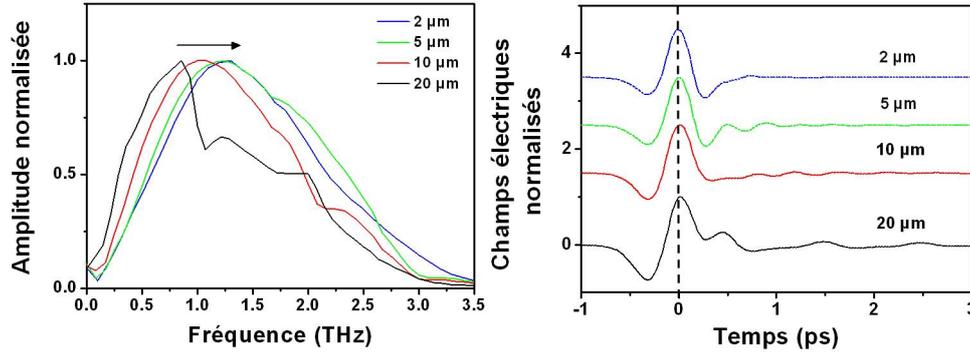


FIGURE 3.17 – Mesures par spectroscopie THz du rayonnement des antennes interdigitées fabriquées. **A gauche** : Spectres normalisés détectés pour des antennes avec un espace entre électrodes de $2 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$ et $20 \mu\text{m}$. **A droite** : Champs électriques THz normalisés mesurés.

avons répété les mesures sur au moins deux antennes de chaque type. Les paramètres utilisés dans les simulations sont les paramètres expérimentaux pour la puissance d'excitation (600 mW), les caractéristiques de l'impulsion d'excitation (820 nm, 100 fs, 76 MHz) et le champ appliqué (30 kV/cm). Pour le substrat en GaAs semi-isolant, des temps typiques de diffusion de 70 fs et de vie des porteurs de 30 ps ont été choisis [Jepsen 1996]. Les capacités interdigitées calculées sont de 0.78, 1.56, 3.13 et 7.8 pF pour les antennes de $20 \mu\text{m}$, $10 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$ respectivement.

La figure 3.19 présente l'évolution du champ entre les électrodes pour ces quatre structures. L'arrivée de l'impulsion optique coïncide avec le temps $t = 1 \text{ ps}$. Le champ entre les électrodes s'effondre très rapidement pour les antennes de 2 et $5 \mu\text{m}$. Il est même totalement écranté pour l'antenne de $2 \mu\text{m}$ expliquant ainsi la dynamique plus rapide de cette antenne. Pour les antennes de plus grand espace entre électrodes, l'écrantage du champ statique est plus lent et la distance entre les charges déplétées est trop grande pour l'annuler.

Les données calculées sont en bon accord avec les valeurs mesurées ce qui conduit à conclure que l'origine du décalage du spectre vers des fréquences plus élevées tire son origine de l'écrantage coulombien du champ inter-électrodes plus rapide.

Un raisonnement relativement simple permet de comprendre pourquoi l'écrantage plus rapide du champ inter-électrodes par les charges décale l'émission de l'antenne. Dans cette expérience, l'espace inter-électrodes est illuminé de manière homogène et la densité d'excitation reste constante pour chaque antenne. Comme les porteurs de charge photo-générés sont considérés balistiquement accélérés entre l'anode et la cathode, les effets d'écrantage sont plus efficaces à mesure que l'espace séparant les électrodes diminue. Le battement généré est ainsi plus bref conduisant à une émission spectralement décalée vers des hautes fréquences.

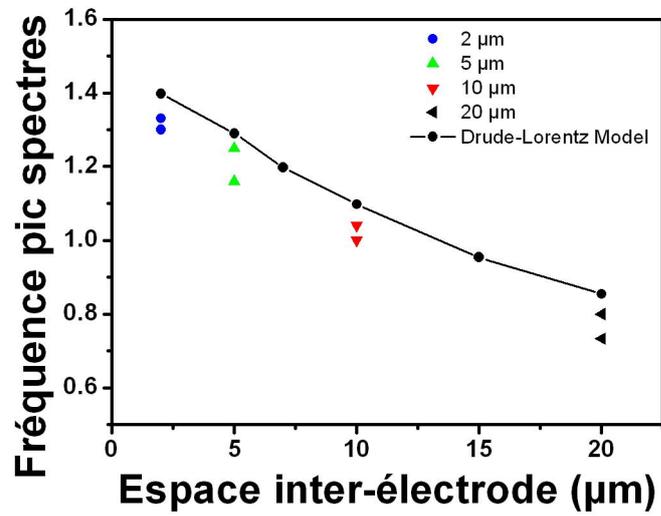


FIGURE 3.18 – Comparaison entre les fréquences pics des spectres calculés et mesurés pour différentes antennes. Chaque point de couleur correspond à une antenne testée.

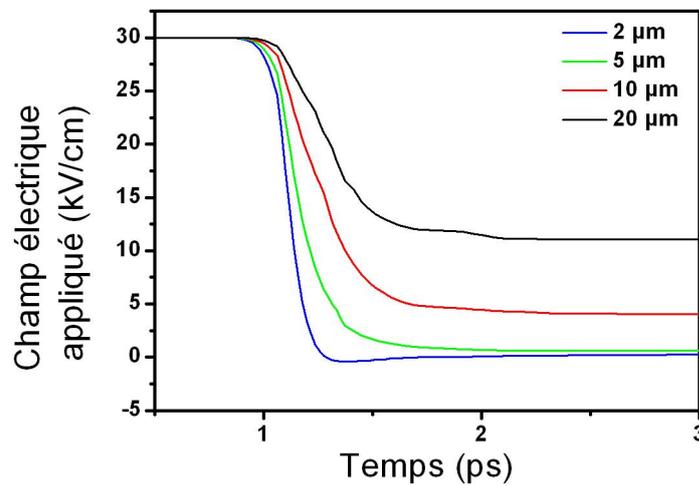


FIGURE 3.19 – Simulations du champ électrique inter-électrodes pour les quatre types d'antennes étudiées.

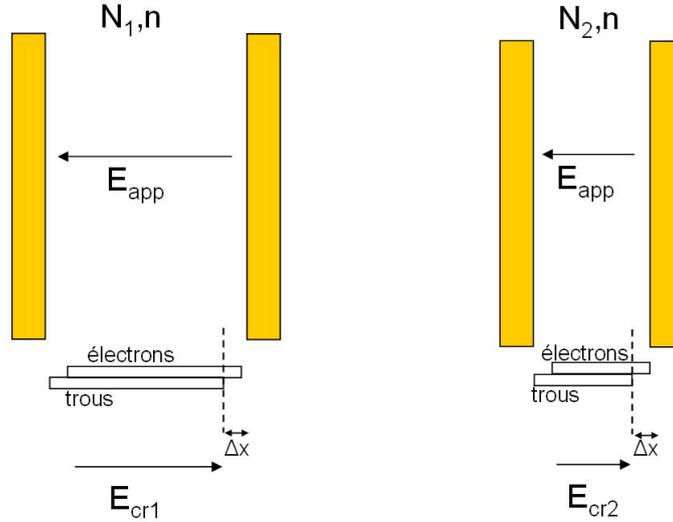


FIGURE 3.20 – Schéma de l'écrantage pour un espace inter-électrodes large et faible.

La figure 3.20 présente schématiquement l'origine de l'écrantage coulombien plus rapide pour les espace inter-électrodes plus petits dans le cadre du modèle utilisé. Dans les deux cas de figures présentés, la densité de porteurs n et le champ électrostatique appliqué E_{app} sont identiques. Le bloc d'électrons se déplace alors de la même quantité Δx dans les deux cas et le même nombre de porteurs sont déplacés (même densité). Ainsi, des champs contre-réactifs E_{cr1} et E_{cr2} , équivalents à une force de rappel, sont induits par le même nombre de porteurs. Or, ce champ est plus faible pour l'espace plus large car proportionnel à l'inverse de la distance, $E_{cr1} < E_{cr2}$. Cela conduit à une oscillation plus lente pour l'espace de grande taille et donc à un spectre rayonné comportant plus de composantes basses fréquences et moins de composantes hautes fréquences, comme cela est observé sur les spectres de la figure 3.17. Sur cette même figure, l'allure des traces temporelles permet également de confirmer cette interprétation. En effet, avant l'instant $t = 0$ ps, les traces temporelles ont des allures similaires. Après l'instant $t = 0$ ps, leurs allures diffèrent, montrant que les impulsions THz générées deviennent plus brèves, conduisant à un spectre contenant plus de hautes fréquences.

Cette étude montre ainsi qu'il est possible d'ajuster le spectre d'émission de ces antennes tout en conservant le même équipement et montage expérimental. Pour les expériences utilisant la spectroscopie THz présentées par la suite, notre choix s'est naturellement porté vers les antennes interdigitées avec un espace inter-électrode de $2 \mu\text{m}$.

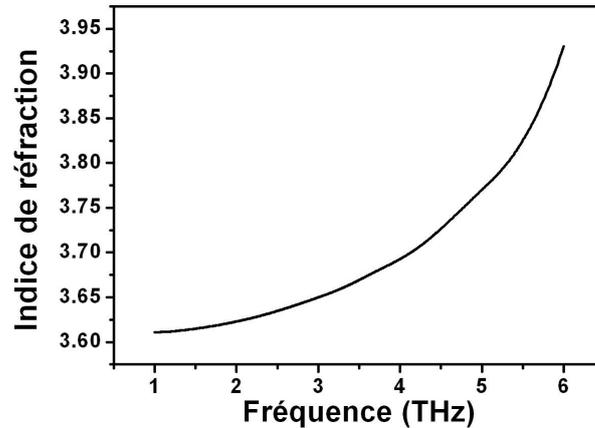


FIGURE 3.21 – Indice de réfraction du GaAs massif à 300 K dans la gamme THz

3.4 Optimisation du spectre émis : émission par réflexion

Nous présentons dans cette section, la seconde optimisation que nous avons réalisée dans le but d'accéder à une gamme spectrale, pour les expériences de spectroscopie THz, étendue le plus possible vers les hautes fréquences. Nous montrons qu'il est possible d'étendre significativement le spectre d'émission des antennes photoconductrices interdigitées en modifiant la configuration de la partie du montage expérimental qui permet la génération d'impulsions THz.

Un autre phénomène est à prendre en compte en ce qui concerne l'utilisation de l'antenne dans une expérience de spectroscopie THz. Usuellement, une antenne photoconductrice est excitée par une impulsion optique par l'une de ses faces et le rayonnement THz émis est collecté via l'autre face. Dans ce cas (voir figure 3.22(a)), l'onde THz émise à la surface du GaAs se propage à travers celui-ci avant d'être collectée. Or, le GaAs présente une certaine dispersion, i.e. l'indice de réfraction dépend de la fréquence de l'onde. La figure 3.21 présente la dispersion de l'indice pour du GaAs massif à 300K tirés des tables de [Palik 1998]. Ce phénomène est d'autant plus marqué que l'impulsion est courte et donc constituée d'un grand nombre de fréquences. L'effet provoque l'étirement temporel de cette impulsion causant ainsi le rétrécissement de son spectre en fréquences [Wu 1997].

Une solution pour s'affranchir de la dispersion du matériau est d'utiliser un montage de l'antenne en réflexion (voir figure 3.22(b)) [Shen 2003]. Dans ce cas, l'excitation optique et la collection de l'onde THz s'effectue sur la même face et les impulsions THz collectées ne sont plus celles issues de la transmission à travers le substrat de GaAs. Une partie du montage de l'expérience doit alors être réadaptée pour permettre cette nouvelle disposition. La figure 3.22 présente les deux types de montages pour l'antenne par collection en transmission et en réflexion.

Un trou est percé au centre du miroir parabolique de collection permettant le passage du faisceau optique. La figure 3.23 montre les mesures par spectroscopie THz du champ électrique THz détecté et les spectres associés normalisés pour une antenne interdigitée avec un espace inter-électrode de $2 \mu\text{m}$ dans le cas d'un montage en transmission et en réflexion. Pour obtenir la meilleure largeur spectrale de détection un cristal de GaP d'une épaisseur de $100 \mu\text{m}$ a été utilisé (car présente une meilleure réponse à haute fréquence).



FIGURE 3.22 – (a) Montage de l'antenne en transmission. (b) Montage de l'antenne en réflexion

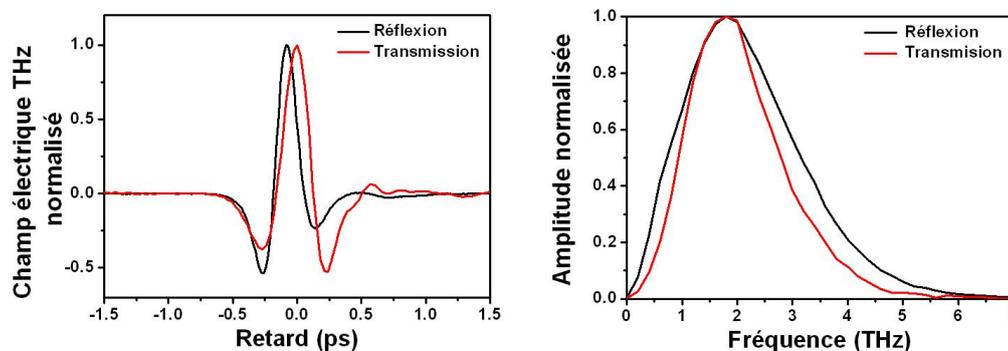


FIGURE 3.23 – Champs électrique THz et spectres normalisés mesurés par spectroscopie THz dans le cas d'un montage d'émission par transmission (en rouge) et en réflexion (en noir).

L'impulsion détectée par le biais du montage en réflexion est plus bref ce qui implique par transformée de Fourier un spectre élargi. La largeur à mi hauteur du spectre en réflexion est de 2.47 THz contre 1.88 THz dans le cas en transmission. Le spectre en réflexion s'étend jusqu'à 6 THz contre 5 THz en transmission. L'élargissement est plus important pour les hautes fréquences car la variation de l'indice plus grande affectant plus fortement la vitesse de ces composantes. il est à noter

que les spectres sont représentés en échelle linéaire (contrairement à la littérature où souvent l'échelle log est utilisée). Cela signifie qu'en réalité le spectre est plus étendu, mais au-delà de 6 THz, les composantes du spectre sont peu utilisables pour des mesures.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude préalable sur les sources d'impulsions THz employées dans notre montage de spectroscopie THz afin de l'optimiser pour mesurer le gain de LCQ THz. Nous avons montré que le spectre d'émission des antennes interdigitées se décale vers les hautes fréquences lorsque l'espace entre électrodes est réduit. De plus, en disposant, dans le montage expérimental, une antenne interdigitée selon un schéma en réflexion, le spectre d'émission peut être étendu jusqu'à 6 THz. Dans le chapitre suivant, en utilisant ce montage optimisé, nous présentons les résultats de la mesure du gain de différents LCQ THz.

Mesures du gain de lasers à cascade quantique THz

Sommaire

3.1	Antennes photoconductrices à géométrie interdigitée	46
3.1.1	Description des antennes photoconductrices interdigitées	47
3.1.2	Avantages de la structure interdigitée	50
3.1.3	Inconvénients des antennes interdigitées	50
3.1.4	Modèle de Drude-Lorentz appliqué aux antennes photoconductrices interdigitées	51
3.1.5	Simulations numériques	53
3.1.6	Mesures et validité du modèle	53
3.2	Fabrication des antennes photoconductrices interdigitées	55
3.2.1	Techniques de fabrication utilisées	56
3.2.2	Protocole de fabrication des antennes interdigitées	59
3.3	Etude de l'accordabilité des antennes photoconductrices interdigitées	66
3.3.1	Mesure des spectres et champs électriques THz des antennes fabriquées	66
3.3.2	Comparaison aux données expérimentales	66
3.4	Optimisation du spectre émis : émission par réflexion	70
3.5	Conclusion	72

L'un des paramètres essentiels permettant de comprendre le fonctionnement d'un laser en général est son gain optique. En effet, l'émission stimulée n'est permise que lorsque que le gain dans le milieu amplificateur est suffisamment grand (égal aux pertes). Lorsque l'action laser se déclenche, le gain s'égalise aux pertes du milieu [Siegman 1986]. Par exemple, mesurer le gain en fonction du paramètre de pompage (optique ou électrique) d'un laser permet d'observer, après son seuil, l'effet de blocage ou clamping du gain.

Accéder au gain des LCQ THz peut permettre de mieux comprendre le fonctionnement de ces dispositifs, ce qui limite leur fonctionnement en température ou encore d'évaluer leurs performances. Certaines techniques ont été mises au point pour mesurer le gain de lasers à semiconducteurs. Par exemple, la technique de Hakki-Paoli permet d'accéder au gain d'un laser sous le seuil en utilisant le signal d'électroluminescence et a été utilisée pour mesurer le gain de LCQ THz [Köhler 2003]. Une

technique plus récente permet la mesure du gain de LCQ moyen-IR sous et au-delà du seuil, mais nécessite le recours à une source externe accordable dans la même gamme (difficile aux fréquences THz) [Revin 2004].

Dans ce chapitre, nous présentons la méthode permettant de mesurer le gain de LCQ THz s'appuyant sur la technique de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Cette méthode présente un avantage important sur les autres techniques existantes, à savoir qu'elle permet d'accéder au spectre du gain (ou gain spectral) et des pertes sur une large gamme (0.1 - 4 THz, typiquement). La mesure du spectre du gain d'un LCQ THz repose sur la mesure d'une impulsion THz transmise à travers la cavité du LCQ. Cette méthode n'est pas sensible à l'émission propre du LCQ (détection cohérente et verrouillée en phase), pour lequel le déclenchement de l'action laser est gouverné par l'émission spontanée, qui n'a pas de relation de phase fixe avec le système de détection. Cela permet également de mesurer le spectre du gain sous et au-delà du seuil laser et ainsi d'obtenir l'information complète sur le gain dans ces dispositifs. De plus, en couplant le résultat de ces mesures à des simulations de structure de bandes et de forces d'oscillateur, il est possible d'identifier les états impliqués dans le gain ou dans l'absorption.

Par exemple, au LPA, Jukam et al. ont montré dans un LCQ reposant sur un mécanisme d'inversion de population par phonons LO la présence de deux absorptions à basse et haute fréquences lorsque la structure est alignée en dessous du seuil laser ajoutant des canaux parasites électroniques pouvant nuire aux performances du laser [Jukam 2009b]. Une autre étude sur un LCQ "bound-to-continuum" a mis en évidence le rétrécissement du spectre du gain lorsque le courant dans la structure augmente, signe d'un découplage en l'état d'injection et la transition radiative [Jukam 2008b].

Nous nous sommes intéressés, dans cette thèse, au gain de LCQ THz dits homogènes et hétérogènes. Dans un premier temps, nous avons étudié le spectre du gain d'un LCQ homogène, i.e. émettant une seule fréquence. Ces résultats permettent de présenter le type d'informations auxquelles nous avons accès grâce à la spectroscopie THz. Nous montrons également, grâce aux optimisations réalisées au **chapitre 3**, la présence de fortes absorptions à hautes fréquences pour lesquelles nous proposons une origine. Dans un second temps, nous avons utilisé la technique de mesure de gain pour étudier et améliorer les performances d'un LCQ hétérogène. Un LCQ est dit hétérogène lorsque plusieurs régions actives sont insérées dans un même guide d'onde, permettant la génération de plusieurs fréquences simultanément (deux dans notre cas). Disposer de sources THz émettant à plusieurs fréquences simultanément est d'un grand intérêt pour, par exemple, la spectroscopie ou la détection de substances. Dans cette étude, un premier échantillon ne présentait des performances optimales. L'utilisation de la spectroscopie THz nous a permis d'identifier les causes du dysfonctionnement. Cela nous a conduit à la réalisation d'un second échantillon tenant compte des premiers résultats et qui présente les performances attendues.

Cette étude nous a également permis de constater que dans ces dispositifs le gain est spectralement large. En d'autres termes, le spectre du gain associé à chaque fréquence laser se recouvre. Cela permet, par exemple, d'envisager l'utilisation de LCQ hétérogènes pour réaliser une source THz accordable (en l'incluant dans une cavité externe).

Dans ce chapitre, nous présentons ces études après avoir décrit les autres techniques employées pour mesurer le gain de lasers à semiconducteurs. Puis, nous décrivons le protocole expérimental permettant d'accéder au gain des LCQ par spectroscopie THz.

4.1 Mesure du gain dans un laser

4.1.1 Techniques classiques

L'une des méthodes expérimentales la plus répandue pour mesurer le gain de lasers à semiconducteur est celle dite de Hakki-Paoli [Hakki 1975]. Dans cette technique, le gain est déterminé par mesure de la variation du signal d'électroluminescence en sortie du laser étudié en fonction de la longueur d'onde. Ce spectre constitué de franges Fabry-Pérot permet d'évaluer le gain à condition de connaître la réflectivité des facettes et d'obtenir une mesure de ce spectre avec des franges suffisamment contrastées. Cette technique ne permet alors pas ou difficilement d'accéder au gain du laser étudié au-delà du seuil à cause de l'émission laser (aveuglement du détecteur) et seulement sur une étroite gamme de fréquences (limitée au spectre d'électroluminescence). Cette technique a été appliquée par Köhler et al. pour étudier le gain sous le seuil d'un LCQ THz [Köhler 2003].

Une technique plus efficace reposant sur la mesure du contraste des franges Fabry-Pérot d'une source externe à travers le laser étudié a été appliquée aux LCQ émettant dans la gamme du moyen infrarouge [Revin 2004]. Cette technique a été optimisée récemment pour permettre d'accéder au gain du mode et pertes de LCQ moyen infrarouge sous le seuil et au-delà du seuil. Dans ce cas, des impulsions issues d'un laser à rétroaction répartie (*Distributed Feedback* en anglais) accordable en fréquence sont injectées dans la cavité du LCQ étudié. Les pertes sont ensuite déterminées à partir des franges Fabry-Pérot transmises à travers la cavité [Benveniste 2009]. Cette technique ne permet pas d'accéder au gain spectral des LCQ, et, de plus, n'est pas transposable aux LCQ THz car cela nécessite l'utilisation d'une source externe accordable dans cette gamme.

4.1.2 Mesure de gain par spectroscopie THz

La méthode que nous avons développée dans notre équipe au LPA repose sur la spectroscopie THz dans le domaine temporel qui permet de mesurer le gain spectral au-dessus et en dessous du seuil laser par une méthode verrouillée en phase qui n'est

pas sensible à l'émission propre du LCQ. Cette technique repose sur la mesure de la transmission d'une impulsion THz à travers la cavité d'un LCQ. Après le passage dans la cavité du LCQ, certaines composantes de fréquences sont amplifiées en raison du gain dans la structure. Cela permet d'évaluer le gain (et les pertes) en fonction de la fréquence. Comparée aux autres techniques, la méthode de mesure du gain par spectroscopie THz permet d'accéder à une information complète sur le gain du dispositif.

L'application de cette méthode à l'étude des LCQ THz a été mise au point en parallèle dans l'équipe de K. Unterrainer à Vienne [Kröll 2007] et dans notre équipe [Jukam 2008a]. Au laboratoire, ce type de mesures sur des LCQ à guide simple plasmon a pu mettre en évidence, par exemple, l'effet de rétrécissement du gain spectral lorsque le champ appliqué augmente [Jukam 2008b]. Plus récemment, des mesures de gains sur LCQ à guide double métal ont été réalisées par des équipes du MIT [Burghoff 2011] et de Vienne [Martl 2011], mais cela impose d'adapter la structure en réalisant une source d'impulsions intégrée et donc une étape d'élaboration technologique supplémentaire dédiée à la mesure.

4.2 Protocole expérimental

Cette partie décrit les démarches employées pour l'étude du gain de lasers à cascade quantique par spectroscopie THz. Le montage expérimental est celui décrit au **chapitre 1**. Avant de procéder aux mesures permettant d'accéder au gain et aux pertes dans un LCQ THz, l'échantillon doit être préparé et ses caractéristiques optiques et électriques doivent être établies.

4.2.1 Techniques et matériels pour l'étude des LCQ

4.2.1.1 Montage et préparation de l'échantillon

Avant de pouvoir déterminer les caractéristiques du laser étudié, celui-ci doit être préalablement préparé pour les mesures. En général, les échantillons bruts se présentent sous la forme d'une partie de *wafers* de quelques cm^2 sur lequel sont disposés un ou plusieurs rubans lasers. Les échantillons étudiés ont généralement des longueurs de cavité comprises entre 1 mm et 3 mm. La première étape consiste à cliver ce matériau à l'aide d'une pointe diamant de façon à ne conserver que la longueur souhaitée. Une fois clivé, la qualité des facettes formant les miroirs de la cavité optique est contrôlée à l'aide d'une loupe binoculaire ou d'un microscope. L'échantillon est ensuite positionné sur une embase en cuivre enduite d'or et monté sur celle-ci par brasure à l'indium. L'indium est porté à température de fusion (210 °C) pour la brasure de façon à se répartir de manière homogène sous le substrat sous lequel est déposée une couche Ti/Au permettant ainsi une bonne dissipation thermique du LCQ vers l'embase. Puis, deux plots en alumine recouverts d'une couche d'or sont

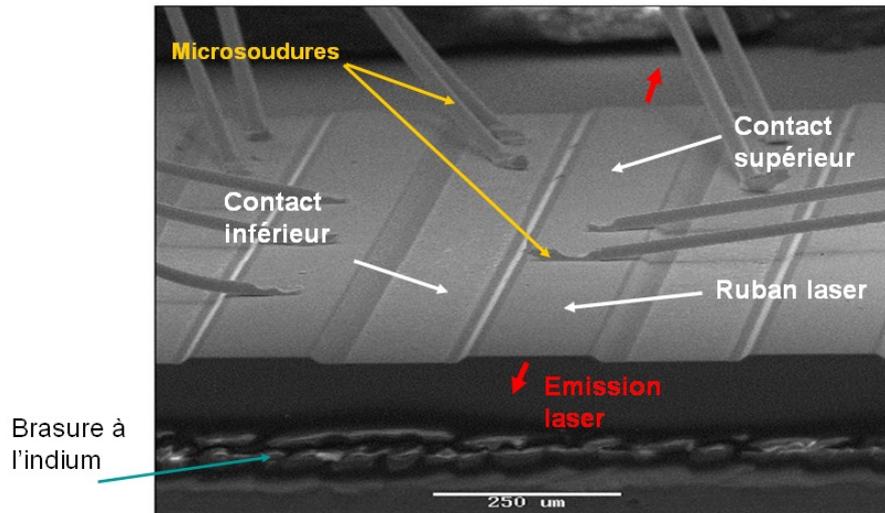


FIGURE 4.1 – Visualisation au microscope électronique à balayage de LCQ à guide simple plasmon avec les connexions par microsoudure. Photo de A. Vasanelli.

collés sur l'embase de chaque côté du LCQ et sont connectés électriquement aux bornes du LCQ par microsoudure (voir photo figure 4.1).

Ensuite, celui-ci est placé sur le doigt froid en cuivre d'un cryostat à flux continu de marque "Janis Research", préalablement enduit d'une couche de pâte thermique pour faciliter le transfert de chaleur. L'échantillon est maintenu de part et d'autre par des lamelles de cuivre permettant ainsi le contact et l'injection électrique dans le dispositif. Enfin, il faut procéder au refroidissement de l'échantillon. Les LCQ THz ne fonctionnent qu'à basses températures et présentent des performances maximales aux températures de l'hélium liquide (4 K). Le cryostat est mis sous vide (10^{-5} mbar) à l'aide d'une pompe turbo-moléculaire, puis l'échantillon est thermalisé jusqu'à 4 K.

4.2.1.2 Mesure de la caractéristique Luminescence-Courant-Tension

Cette étape consiste à établir les caractéristiques du LCQ dans le but de connaître le seuil d'émission laser, la plage d'émission en fonction du courant injecté et l'évolution de la puissance optique. Ces mesures sont couramment appelées L-I-V pour "Luminescence-Intensité-Voltage", c'est d'ailleurs ce terme que nous utiliserons dans la suite. La figure 4.2 présente le montage utilisé pour mesurer ces caractéristiques. L'échantillon est aligné de façon à ce qu'une facette coïncide avec le foyer objet d'un miroir parabolique hors axe. Un second miroir parabolique permet de focaliser le faisceau issu du LCQ sur un détecteur pyroélectrique de marque "Spectrum Detector SPH". La tension en sortie du détecteur (proportionnelle à la puissance optique) est mesurée par une détection synchrone. Ce type de détecteur thermique étant assez

lent, la fréquence de référence pour synchroniser la détection ne peut pas excéder 40 Hz. Pour réaliser cela, le signal de sortie TTL (5V) d'un générateur basse fréquence avec une tension crête de 40 Hz est utilisé d'une part comme référence pour la détection synchrone et d'autre part comme "gate" pour le générateur d'impulsions. Ce dernier (modèle 8114A de marque "Agilent Technologies") sert à polariser le LCQ à une fréquence de 25 kHz avec un rapport cyclique de 25% (voir figure 4.2). Cela correspond aux conditions d'utilisation pour les mesures de gain (voir section 4.2.2).

Le courant est mesuré à l'aide d'une sonde de courant. La tension aux bornes du LCQ ainsi que le courant sont mesurées par un oscilloscope numérique. L'acquisition des caractéristiques I-V et L-I est réalisée de manière automatisée par un programme Labview.

Cette étape est un préalable important pour vérifier le bon fonctionnement du LCQ, pour connaître la valeur du courant de seuil et de la plage de courant pour laquelle l'action laser a lieu, afin d'étalonner les mesures par spectroscopie THz.

4.2.1.3 Couplage d'une impulsion THz dans un LCQ

Pour réaliser les mesures de gain, les impulsions THz doivent se propager dans la cavité du LCQ. Les impulsions THz issues d'une antenne photoconductrice doivent être couplées dans la cavité simple plasmon du LCQ étudié via l'une des facettes. Ce couplage se révèle difficile en raison des dimensions transverses du mode confiné et de la cavité (d'une section transverse d'environ $10 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$) comparé aux longueurs d'ondes contenues dans l'impulsion.

La principale difficulté du couplage réside dans le fait qu'une partie des impulsions peut se coupler dans un mode se propageant dans le substrat et non pas dans la région active. Pour limiter cet effet et optimiser le couplage avec la région active, une plaque métallique munie d'un trou d'un diamètre de $200 \mu\text{m}$ correspondant environ à la largeur du ruban laser est positionnée devant l'une des facettes. La figure 4.3 illustre ce montage. Cette méthode présente également l'avantage de faciliter l'alignement du faisceau THz avec le LCQ. En connaissant le temps d'arrivée de l'impulsion transmise à travers le LCQ (estimé grâce à l'indice du matériau), il suffit de maximiser, en ajustant la position du cryostat, l'amplitude du signal. Ainsi, un couplage suffisant pour les mesures est réalisé en maximisant l'amplitude de la trace temporelle transmise.

Un exemple de trace temporelle illustrant le couplage est présenté figure 4.4. Le signal autour de $t = 0 \text{ ps}$ correspond au passage de l'impulsion dans l'air, plus précisément à travers la zone comprise entre le ruban laser et le trou d'alignement. Le signal indiqué à $t = 24 \text{ ps}$ environ correspond au passage de cette impulsion à travers un LCQ d'une longueur d'environ 3 mm , dans cet exemple. Usuellement,

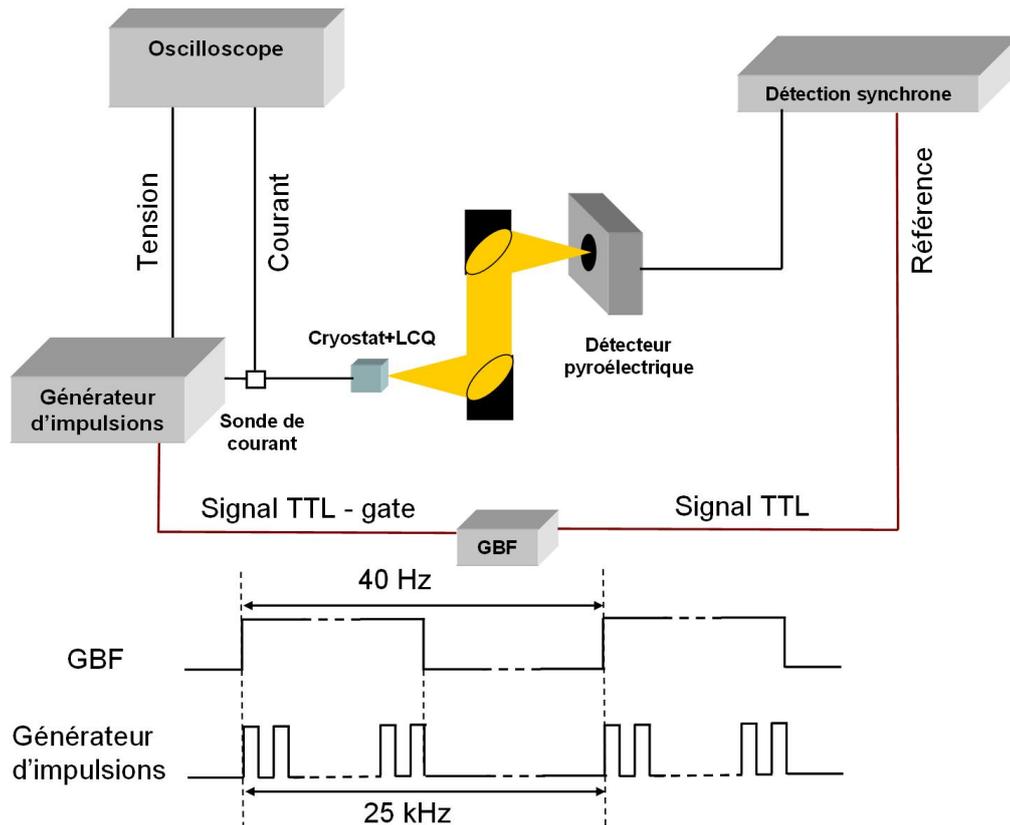


FIGURE 4.2 – Montage expérimental pour la mesure des caractéristiques Luminescence-Courant-Tension d'un LCQ. Le LCQ est placé dans un cryostat (cube bleu). La puissance émise par le LCQ est mesurée par un détecteur pyroélectrique relié à un détection synchrone. Le système électrique permettant d'alimenter et de synchroniser les différents éléments est constitué d'un générateur d'impulsions et d'un GBF synchronisés (voir schéma des impulsions électriques en bas). La tension et le courant (par une sonde) sont mesuré via un oscilloscope numérique.

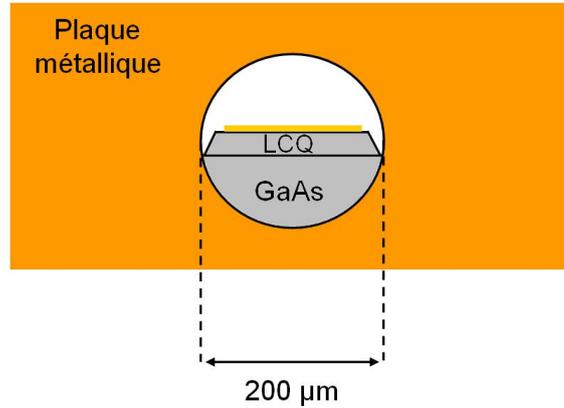


FIGURE 4.3 – Schéma du montage permettant d'optimiser le couplage des impulsions THz dans la zone active d'un LCQ.

avec cette technique, environ 5 % du signal provenant de l'antenne photoconductrice est couplée dans la zone active.

4.2.2 Mesure et calcul du gain

La méthode choisie pour l'acquisition de données permettant d'accéder au gain et aux pertes dans un LCQ repose sur la mesure d'un signal différentiel correspondant à la différence entre le signal d'une impulsion transmise lorsque le LCQ est éteint et lorsque celui-ci est allumé [Jukam 2008a]. Cette méthode porte aussi le nom de " $f-2f$ ", f faisant référence ici à la fréquence de modulation des impulsions électriques alimentant le LCQ. En effet, pour obtenir ce signal différentiel, l'antenne photoconductrice est modulée à 50 kHz ($2f$) avec un rapport cyclique de 50 %. Ce signal est utilisé pour synchroniser le LCQ modulé à fréquence de 25 kHz (f) avec un rapport cyclique de 25 %. Cette fréquence sert de référence pour la détection synchrone. Cette méthode permet de détecter le rayonnement THz transmis et uniquement modulé par la fréquence à laquelle est polarisé le LCQ, éliminant ainsi la partie du rayonnement qui n'est pas affecté par le passage dans la structure. La figure 4.5 présente le principe de la mesure. Pour évaluer le gain spectral, il est également nécessaire de réaliser une mesure dite de référence correspondant à la trace temporelle d'une impulsion transmise par l'antenne modulé à la fréquence du LCQ (25 kHz et 25 % de rapport cyclique), LCQ éteint.

De manière générale, le champ électrique transmis à la sortie du LCQ, qui contient l'information sur les pertes et le gain, s'écrit :

$$E_{LCQ}(\omega) = t_1 t_2 e^{-\alpha \frac{L}{2}} e^{\gamma \frac{L}{2}} E_{in}(\omega) \quad (4.1)$$

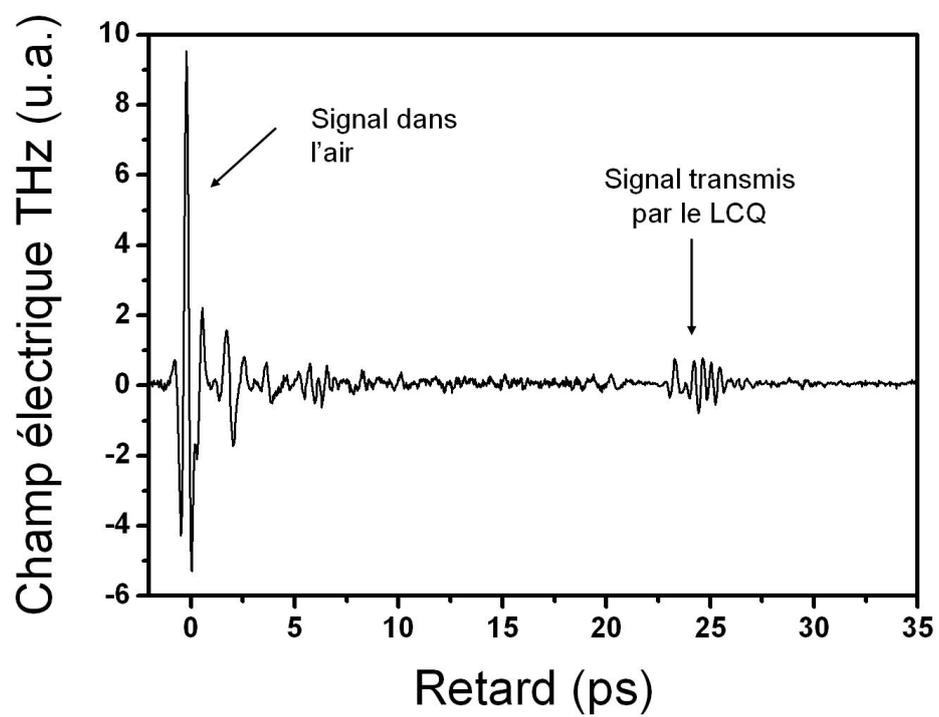


FIGURE 4.4 – Trace temporelle illustrant le couplage dans un LCQ d'une longueur de 3 mm.

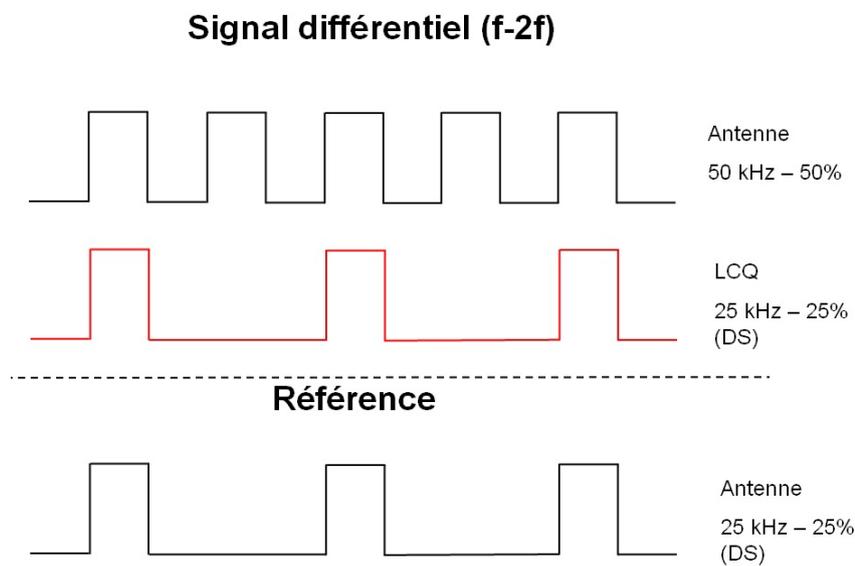


FIGURE 4.5 – Schéma représentant les impulsions électriques utilisées pour polariser l'antenne (en noir) et le LCQ en rouge dans le but d'effectuer la mesure d'un signal différentiel. Le signal de référence (LCQ éteint) est obtenu, par la suite, en polarisant l'antenne avec les mêmes impulsions électriques que le LCQ lors des mesures du signal différentiel

où t_1, t_2 sont les coefficients de transmission des facettes d'entrée et de sortie pour l'impulsion THz, L est la longueur du guide d'onde, α les pertes et γ le gain. De façon équivalente, le champ électrique en sortie lorsque le LCQ est éteint (référence), contenant l'information sur les pertes, s'écrit :

$$E_{ref}(\omega) = t_1 t_2 e^{-\alpha \frac{L}{2}} E_{in}(\omega) \quad (4.2)$$

Le gain pourrait ainsi s'exprimer facilement en divisant l'expression (4.1) par (4.2), ce qui, par ailleurs, permet de s'affranchir de connaître les valeurs des coefficients de transmission. En effet, la méthode la plus simple serait de mesurer le spectre du signal transmis avec le LCQ allumé pour obtenir (4.1) et le LCQ éteint pour (4.2). Cependant, la fréquence d'émission des LCQ est généralement loin du maximum du spectre d'émission de l'antenne photoconductrice. De ce fait, le gain du LCQ ne représente qu'une raie étroite recouvrant une très faible portion du spectre de l'antenne. Alors, le changement induit sur le spectre de l'impulsion THz est donc très faible et se superpose à un fond très large. Dans le domaine temporel, $E_{LCQ}(t) \simeq E_{ref}(t)$. A la place, il est préférable de mesurer directement la différence $E_{LCQ}(t) - E_{ref}(t)$ de la façon présentée en figure 4.5. Le signal mesuré peut s'écrire :

$$E_{diff}(t) = \pm(E_{ref}(t) - E_{LCQ}(t)) \quad (4.3)$$

A priori, il n'est pas possible de savoir si l'amplitude mesurée correspond à $E_{LCQ}(t) - E_{ref}(t)$ ou $E_{ref}(t) - E_{LCQ}(t)$. Pour lever cette ambiguïté, le gain doit être calculé dans les deux cas et le résultat non physique est rejeté. A partir de cela, le signal $E_{LCQ}(t)$ peut être reconstruit avec $E_{diff}(t)$ et $E_{ref}(t)$. Le gain complexe peut s'écrire :

$$e^{\gamma \frac{L}{2}} = \frac{E_{LCQ}(\omega)}{E_{ref}(\omega)} = \frac{TF [E_{ref}(t) \pm E_{diff}(t)]}{E_{ref}(\omega)} \quad (4.4)$$

Alors la partie réelle du gain s'écrit :

$$\gamma = \frac{2}{L} \ln \left(\frac{|E_{LCQ}(\omega)|}{|E_{ref}(\omega)|} \right) \quad (4.5)$$

Nous avons employé cette méthode pour calculer le gain des LCQ présentés dans la suite. La figure 4.6 présente un exemple typique des champs THz mesurés par spectroscopie THz. Le champ THz dans le domaine temporel issu de l'antenne photoconductrice est représenté à gauche en rouge ainsi que son spectre en fréquences obtenu par transformée de Fourier. Ce champ correspond à celui focalisé sur la facette d'entrée du LCQ. A droite (en bleu) sont représentés le signal différentiel transmis à travers le LCQ lorsque celui est polarisé au dessus du seuil et le spectre associé. Le spectre permet de mettre en évidence l'amplification et l'absorption de certaines composantes fréquentielles directement liées au gain et pertes dans la structure. Il faut rappeler ici que la technique de spectroscopie THz n'est pas sensible à l'émission propre du LCQ car il n'existe pas de relation de phase fixe avec les impulsions THz (i.e. les impulsions du laser Ti:Sa servant à la fois pour l'émission d'impulsions THz et pour la détection) [Oustinov 2010]. La mesure réalisée est uniquement celle de l'impulsion THz transmise issue de l'antenne dont la phase est fixe par rapport au taux de répétition du laser Ti:Sa.

4.3 Lasers homogènes

Nous présentons dans cette section les résultats obtenus pour un laser homogène, en d'autres termes, pour lequel la région active a été conçue afin d'émettre une unique longueur d'onde. Le travail présenté concerne l'étude d'un LCQ avec un mécanisme d'inversion de population reposant sur un dessin dit "bound-to-continuum" émettant à 1.9 THz et muni d'un guide d'onde simple plasmon. Ce laser a été conçu et fabriqué par J. Freeman de l'équipe de D. A. Ritchie au Cavendish Laboratory de l'Université de Cambridge. L'étude de ce dispositif a étroitement été réalisée en collaboration avec cette équipe. Il est référencé sous la nomenclature V455. Cette étude permet de mettre en évidence les avantages de la spectroscopie THz pour la caractérisation des LCQ. Ces résultats servent à la fois à illustrer la technique de mesure et seront comparés, par la suite, avec des LCQ hétérogènes.

4.3.1 Description de l'échantillon V455

L'échantillon reprend le dessin d'une structure émettant à 2 THz réalisée par Worrall et al. [Worrall 2005]. Plus récemment, une faiblesse dans ce dessin a été décelée par Freeman et al. [Freeman 2008]. Il apparaissait, en effet, que l'état bas de la transition laser était faiblement connectée à la minibande d'extraction des porteurs. Une optimisation de cette structure reposant sur un algorithme automatisé permettant d'obtenir le dessin d'une structure en imposant des états électroniques spécifiques a été proposée par l'équipe de Cambridge. Le LCQ réalisé à partir de ce dessin a permis la réalisation d'un dispositif présentant la meilleure "efficacité à la prise" (*wall plug efficiency* en anglais), 1.2 % par facette, pour un dispositif

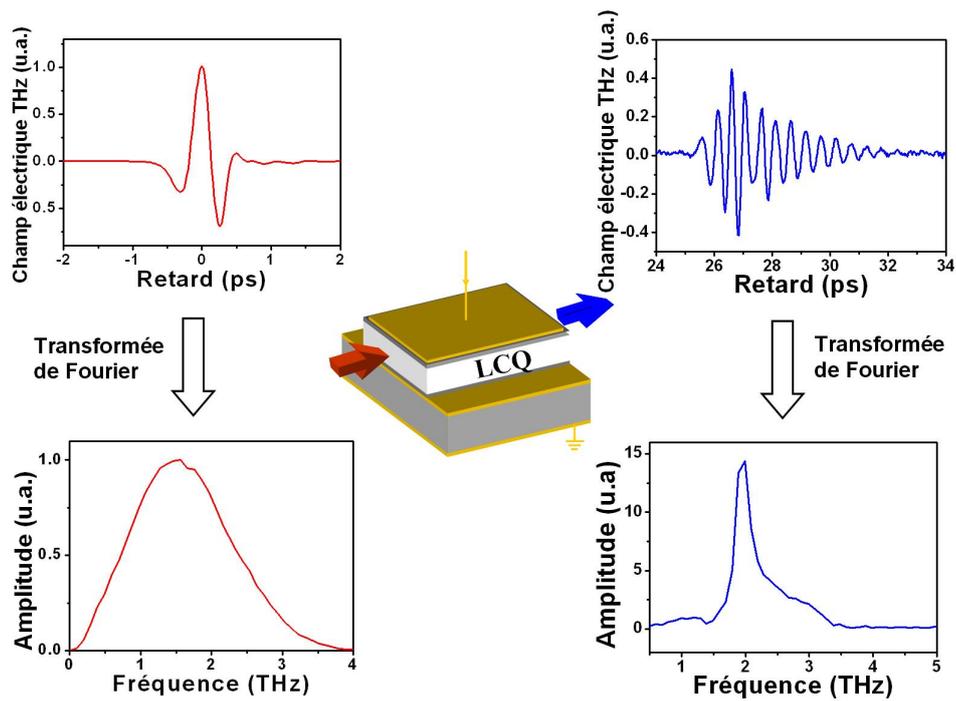


FIGURE 4.6 – Schéma présentant le principe de la mesure de gain. L'impulsion THz issue d'une antenne photoconductrice (à gauche en bleu) est focalisé sur la facette d'entrée d'un LCQ. Le signal différentiel (transmis) en sortie contient uniquement l'information des changements induits sur l'impulsion THz lors de son passage à travers la structure. Les différentes courbes sont issues d'un LCQ BTC émettant à 2.1 THz.

émettant en dessous de 2 THz dans un guide simple plasmon.

La figure 4.7 montre la structure de bande avec (en noir) les puits de potentiel et en couleurs le module au carré des fonctions d'ondes électroniques. Ces états sont déterminés par résolution de l'équation de Schrödinger. La croissance de l'échantillon a été réalisée par épitaxie par jets moléculaires dans une chambre de croissance "Veeco ModGen II" sur un substrat de GaAs semi-isolant. La région active de l'échantillon est constituée de barrières et de puits en $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$. Ces couches sont situées entre un contact supérieur dopé n de 70 nm à une concentration de $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et une couche de contact inférieure de 600 nm dopée à une concentration de $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. La croissance de cette dernière a été réalisée sur une couche d'arrêt de 300 nm non dopée de $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$. L'échantillon possède un ruban laser à guidage simple plasmon d'une largeur de 250 μm obtenu par gravure chimique jusqu'à la couche de contact inférieure dopée n. Des contacts ohmiques Pd/Ge (25/75 nm) en haut et AuGeNi (120 nm) en bas ont été déposés par évaporation thermique suivie d'un recuit rapide. Enfin, le substrat est mécaniquement affiné jusqu'à 200 μm et une couche métallique de Ti/Au (20/150 nm) est déposée sur les contacts haut et bas ainsi qu'au dos du substrat. L'échantillon testé possède une longueur de cavité de 2 mm.

4.3.2 Résultats

La figure 4.8 présente les différentes mesures réalisées sur cet échantillon. En (a), la caractéristique L-I-V montre le fonctionnement du laser en fonction du courant injecté dans la structure. Le seuil du laser est obtenu pour un courant de 520 mA ou une densité de courant de 104 A/cm^2 . La puissance optique est maximum pour 620 mA (124 A/cm^2). L'action laser stoppe à 627 mA (126 A/cm^2). Ce LCQ lase sur une plage de 106 mA ce qui est relativement faible comparée aux LCQ reposant sur ce type de dessin dans un guide simple plasmon [Barbieri 2004] [Worral 2005]. Effectivement, la puissance optique chute brutalement. Cela correspond au changement de pente dans la caractéristique I-V (en noir) signe du désalignement de la structure. Cela peut être imputé à la qualité de l'injection et peut tenir éventuellement au fait que l'injecteur ne soit pas assez dopé.

La figure (b) présente les traces temporelles différentielles en dessous du seuil laser (en noir), pendant l'action laser (en rouge) et après action laser (en bleu). Cette figure illustre bien le fait qu'au-delà du seuil laser, l'amplification en particulier d'une composante de fréquence se distingue par le fait que l'oscillation s'étend sur une durée plus longue. Cette amplification se remarque à la fois du point de vue de l'amplitude de l'onde (plus élevée) que de la durée du paquet d'onde (plus long, signe d'une raie et d'un gain spectralement plus fins).

La figure (d) présente le gain spectral calculé à l'aide l'expression (4.5) correspondant aux traces temporelles de la figure (c). En dessous du seuil (482 mA), l'allure

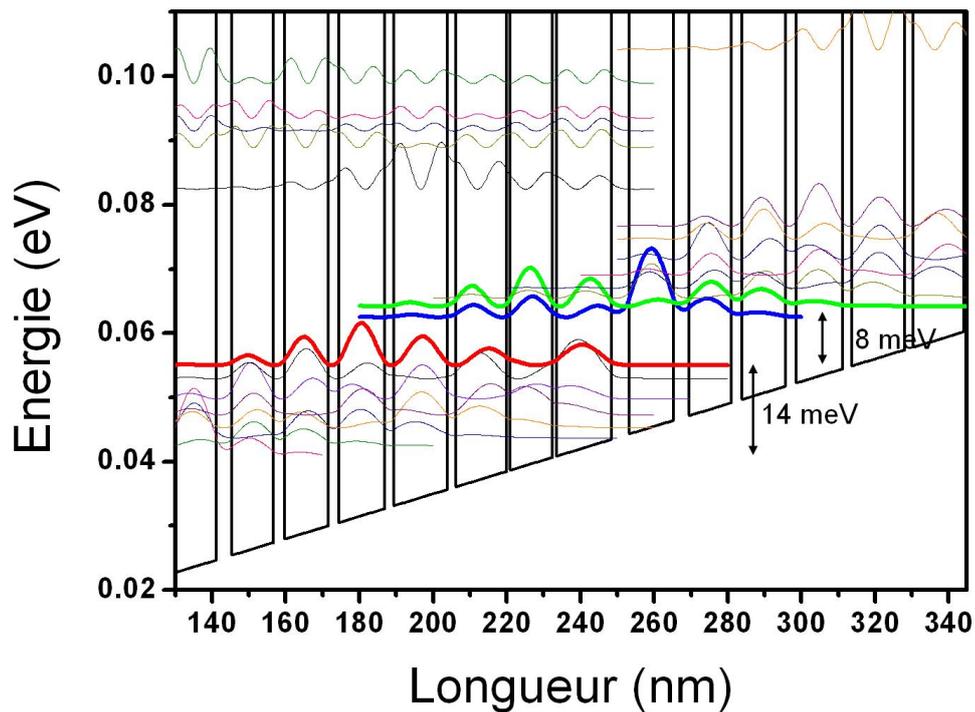


FIGURE 4.7 – Structure de bande de l'échantillon V455 pour un champ appliqué de 1.75 kV/cm. Les niveaux en gras représentent l'état haut de la transition laser (en vert), l'état d'injection (en bleu) et l'état bas de la transition laser (en rouge). L'épaisseur des couches (en nm) pour cette structure sont à partir de la barrière d'injection : **4.8**/11.97/**4.2**/11.4/**3**/11.78/**2.9**/12.54/**2.5**/14.53/**2.3**/13.82/**0.99**/11.54/**1**/15.03. Cette période est répétée 110 fois. Les barrières en $Al_{0.1}Ga_{0.9}As$ sont indiquées en gras. Les puits soulignés sont dopés à $1.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

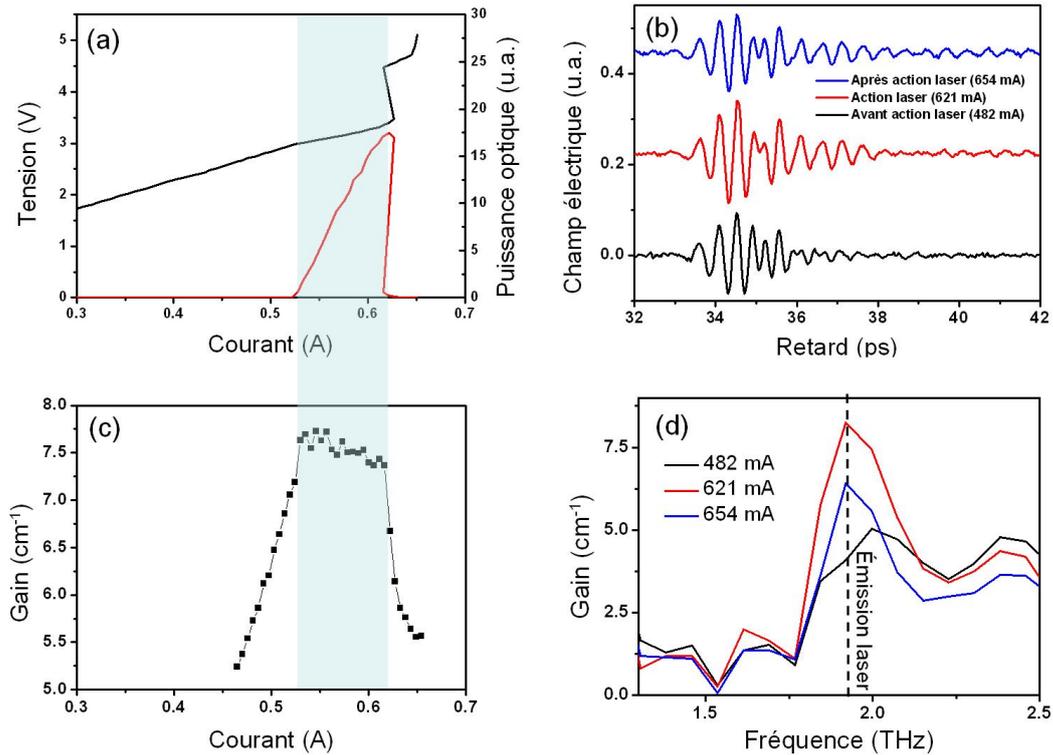


FIGURE 4.8 – Mesures pour l'échantillon V455. **(a)** Caractéristique L-I-V obtenue en modulant la polarisation du LCQ à 25 kHz avec un rapport cyclique de 25 %. La caractéristique I-V est représentée en noir. La caractéristique L-I est représentée en rouge. **(b)** Signaux temporels différentiels dans le cas où le LCQ est polarisé en dessous du seuil laser (en bleu) et au dessus du seuil (en rouge). **(c)** Gain mesuré à la fréquence de 1.9 THz en fonction du courant injecté dans le LCQ. **(d)** Gain spectral en dessous du seuil (en bleu) et au-dessus du seuil (en rouge).

du gain spectral ne montre qu'une faible amplification autour de 2 THz. Au-delà du seuil, une nette amplification autour de la fréquence d'émission est observée. La largeur à mi hauteur du gain est d'environ 300 GHz, comparable avec d'autres LCQ THz [Jukam 2008a] [Jukam 2008b].

En 4.8 (c) est présenté le gain mesuré en fonction du courant à la fréquence d'émission de 1.9 THz dans le LCQ par la méthode décrite dans la section précédente. Le gain augmente progressivement de 5 cm^{-1} à 7.7 cm^{-1} entre 450 mA (60 A/cm^2) et le seuil. Puis, au-delà du seuil laser, le gain clampé, le système entre dans le régime laser, i.e. le gain s'égalise aux pertes totales (du guide et des facettes) dans la structure. Le clamping du gain est en parfait accord avec la courbe de puissance optique en fonction du courant de la figure (a). L'émission laser et le clamping du gain commencent pour le même courant. Dès que l'émission laser stoppe, le gain diminue, signe que la structure se désaligne, rompant ainsi le mécanisme d'inversion de population nécessaire au régime laser.

4.3.3 Comparaison du gain avec les pertes calculées

Le gain pendant l'action laser s'égalise aux pertes totales dans la cavité. Une estimation numérique des pertes totales permet ainsi d'évaluer le gain modal au dessus du seuil et de s'assurer de la pertinence des résultats obtenu par spectroscopie THz. Les pertes totales de la cavité sont, d'une part, les pertes liées aux facettes de la cavité et, d'autre part les pertes liées aux porteurs libres.

4.3.3.1 Pertes par les facettes

Les pertes par les facettes sont reliées au coefficient de réflexion R et à la longueur de la cavité L par la relation :

$$\alpha_m = \frac{1}{L} \ln \left(\frac{1}{R} \right) \quad (4.6)$$

La réflectivité des facettes vaut 0.32 pour des fréquences comprises entre 2 et 3 THz [Kohen 2005]. Dans le cas de l'échantillon V455 avec une longueur de ruban laser de 2 mm, les pertes par les facettes sont évaluées à 5.7 cm^{-1} .

4.3.3.2 Pertes du guide d'onde

Pour évaluer la valeur des pertes liées au guide, un programme développé par A. de Rossi à Thalès est utilisé. A l'aide des informations sur les diverses couches de l'échantillon (matériau, épaisseur des puits et barrières, dopage,...), il est possible d'estimer la constante diélectrique de la région active du LCQ. Ce paramètre permet de déduire l'indice optique complexe du milieu et d'accéder, en prenant sa partie imaginaire, à l'absorption. Ce programme s'appuie sur un modèle de Drude pour

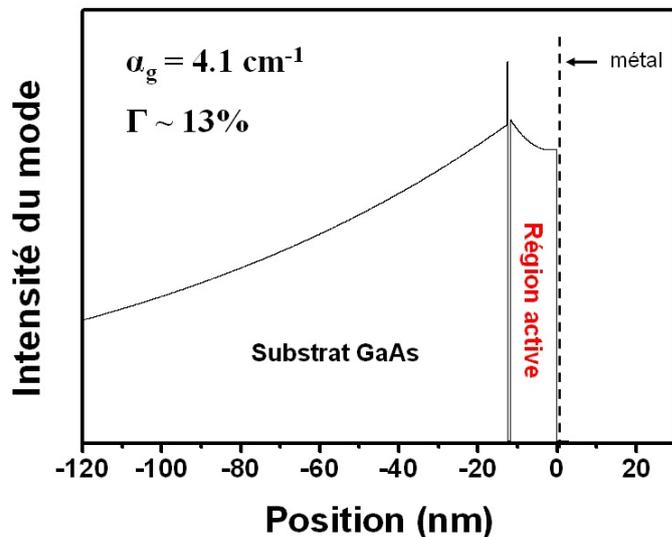


FIGURE 4.9 – Courbe représentant le profil du mode se propageant dans la cavité de l'échantillon V455.

calculer l'indice complexe pour en déduire les pertes par porteurs libres et sur la méthode des matrices de transfert pour le mode optique [Bengloan]. Ce programme permet également de calculer le profil du mode plasmon se propageant dans le guide et son recouvrement avec la région active. La figure 4.9 présente le résultat de ce calcul avec les données issues de la feuille de croissance de l'échantillon étudié. Comme dans tout guide simple plasmon, le mode s'étale avec une décroissance exponentielle dans le substrat, ce qui conduit à un faible facteur de confinement $\Gamma = 13\%$. Par ce calcul, les pertes sont estimées à $\alpha_g = 4.1 \text{ cm}^{-1}$.

Ces calculs permettent d'évaluer les pertes totales de la structure, soit : $\alpha_{tot} = \alpha_m + \alpha_g = 5.7 \text{ cm}^{-1} + 4.1 \text{ cm}^{-1} = 9.8 \text{ cm}^{-1}$ à comparer avec la valeur du gain mesuré à la fréquence d'émission du LCQ de 7.7 cm^{-1} . Ces résultats sont en bon accord mais le gain mesuré est plus faible. Cela peut s'expliquer par le fait que les impulsions THz issues de l'antenne se couplent dans des modes différents du mode laser, sous-estimant ainsi la valeur du gain [Jukam 2008a].

4.3.4 Absorptions à hautes fréquences dans la structure

Grâce à l'optimisation des antennes interdigitées (voir section 3.3) et aux modifications réalisées sur le montage de spectroscopie THz permettant d'élargir le spectre des impulsions issues de l'antenne photoconductrice (voir section 3.4), le gain spectral peut être mesuré au-delà de 3 THz. La mesure du gain ou de pertes d'un LCQ THz au-delà de ces fréquences n'a pas été étudiée jusqu'à présent.

De plus, en combinant les résultats des mesures par spectroscopie THz à des simulations de structure de bande, il est possible d'identifier les transitions et les mécanismes impliqués dans le gain et l'absorption. Ce type de travail permet d'identifier les causes de mauvaises performances, ou bien simplement d'améliorer notre connaissance de ces dispositifs.

Dans cette section, afin d'être en mesure de comparer les données expérimentales aux simulations, plutôt que de raisonner en termes de courant ou densité de courant, il est plus pratique d'utiliser le champ appliqué au LCQ. Pour évaluer, le champ appliqué au LCQ expérimentalement, les caractéristiques L-I-V sont converties en champ électrique en associant le courant correspondant au maximum de puissance optique au champ optimal d'alignement dans les simulations (voir annexe **A**). La figure 4.10 présente le gain spectral mesuré pour différents régimes de champ appliqué (de 0.4 à 2.8 kV/cm). A mesure que le champ augmente, des pics d'absorption sont observés autour de 3 THz et 3.7 THz.

Pour déterminer quels états sont impliqués dans l'absorption (ou l'émission), nous avons calculé la force d'oscillateur des différentes transitions. Pour deux niveaux i et j , son expression est donnée par :

$$f_{ij} = \frac{2m}{\hbar^2} E_{ij} |\langle i|z|j \rangle|^2 \quad (4.7)$$

où E_{ij} est l'énergie de la transition ij et $\langle i|z|j \rangle$ est l'élément de matrice dipolaire. Cette grandeur est adaptée pour identifier les transitions les plus susceptibles d'émettre ou d'absorber.

La figure 4.11 présente un agrandissement de la structure de bande de cet échantillon pour un champ appliqué de 1.75 kV/cm (champ d'alignement pour le régime laser). L'état haut de la transition laser est nommé **a**, l'état bas de la minibande supérieure **b** et l'état d'injection **c**. Dans le régime laser, la force d'oscillateur de la transition laser vaut 12.49 et la force d'oscillateur de la transition **ab** vaut 20.12 (La transition **cb** peut également avoir une contribution non négligeable ($f_{cb} = 7.2$)). Cela indique que le couplage entre ces niveaux est fort et explique l'origine de l'absorption à la fréquence de 3.7 THz. De plus, cette transition est verticale, cela est confirmé par le fait que l'énergie de l'absorption varie très peu avec le champ appliqué.

En ce qui concerne, l'absorption à plus basse énergie, autour de 3 THz, aucune transition n'est clairement identifiée. En effet, l'absorption à cette fréquence reste relativement fixe et s'élargit, laissant penser que plusieurs états très proches en énergie contribuent. A partir de 1.36 kV/cm, trois pics se distinguent à 2.68 THz (11.1 meV), 2.91 THz (12 meV) et 3.14 THz (13 meV). Cela laisse penser que les transitions impliquées dans ces absorptions pourraient être des transitions au sein d'une minibande.

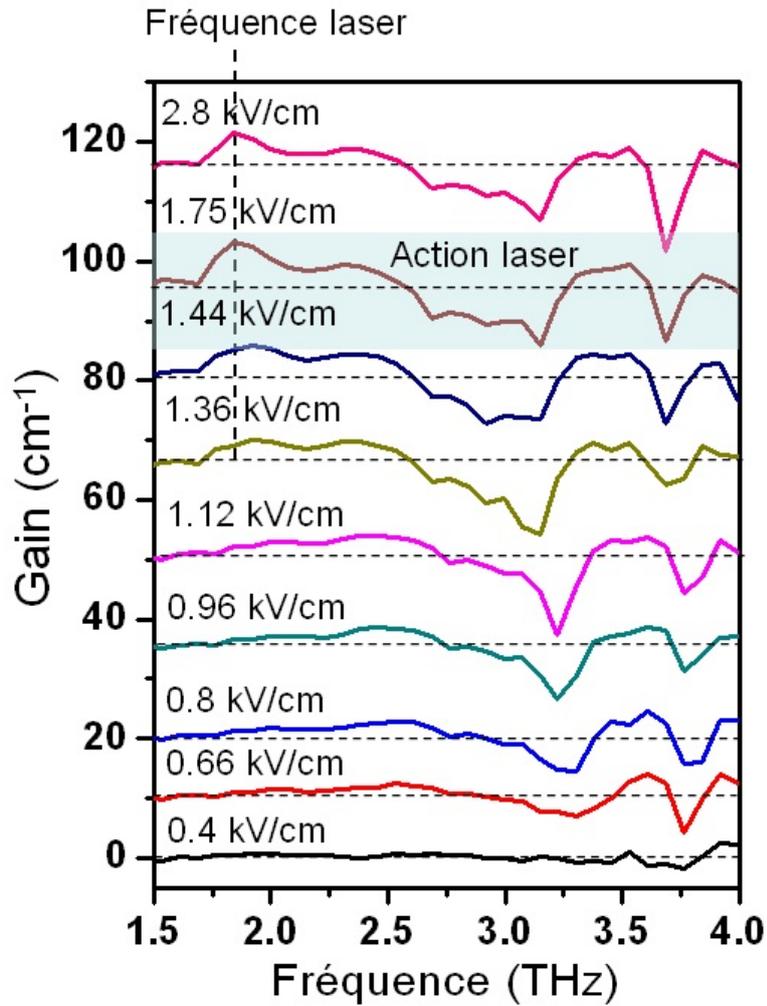


FIGURE 4.10 – Gain spectral entre 1.5 THz et 4 THz pour différentes valeurs de champ appliqué dans la structure (de 0.4 kV/cm à 2.8 kV/cm). Pour plus de clarté, les courbes sont décalées verticalement. Les lignes pointillées donne la position du gain nul sur chaque courbe.

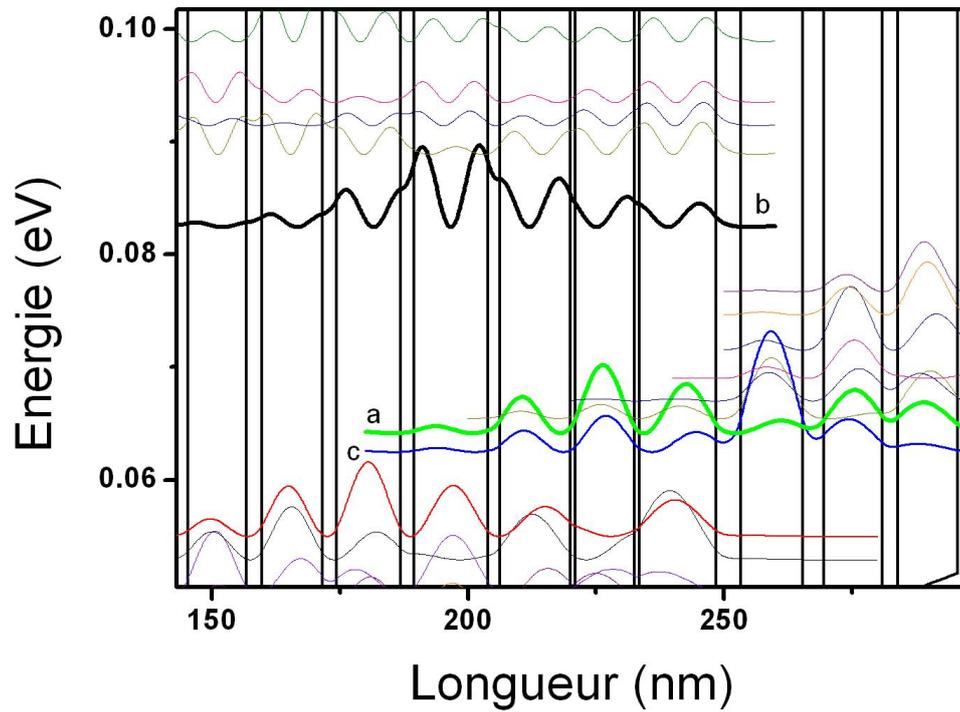


FIGURE 4.11 – Agrandissement de la structure de bande pour l'échantillon V455 pour un champ appliqué de 1.75 kV/cm correspondant à l'alignement optimal pour le régime laser. En gras sont représentés le module au carré des fonctions d'ondes de l'état haut de la transition laser **a** (en vert) et l'état bas de la minibande supérieure **b** (en noir).

Ces résultats permettent de donner un aperçu sur le fonctionnement d'un LCQ homogène. La technique de spectroscopie THz dans le domaine temporel s'avère être un outil puissant pour mesurer les caractéristiques importantes d'un LCQ. Par ailleurs, cette technique couplée à des simulations de structures de bandes et de forces d'oscillateur permet d'identifier, en général, les niveaux d'énergie impliqués dans les phénomènes de gain ou d'absorption optique. Cela peut donc s'avérer utile pour étudier les performances et les défauts limitant ces dispositifs. Dans notre cas, la présence d'absorptions à hautes fréquences peut présenter une limitation pour réaliser des LCQ hétérogènes (voir section suivante), constitués de plusieurs régions actives. Les performances de ces dispositifs peuvent se dégrader si, par exemple, une région absorbe les photons émis par une autre région active. De manière générale, lorsque qu'un défaut est révélé par cette technique, un nouvel échantillon de meilleure qualité peut être produit en réalisant un nouveau dessin de structure de bande. Cette manière de procéder est très bien illustrée dans la section suivante.

4.4 Lasers hétérogènes

Les LCQ sont des dispositifs très flexibles dans le sens où ceux-ci peuvent être réalisés avec divers matériaux et couvrir une large gamme de fréquences (3-250 μm) [Devenson 2007] [Scalari 2007]. Cependant, dans tous les travaux réalisés, les LCQ THz présentent en général un gain spectral étroit et donc une seule fréquence d'émission. Or, en s'appuyant sur le principe même de l'ingénierie de structure de bande des LCQ, il est possible d'imaginer des structures pouvant émettre plus qu'une fréquence. Dans ce cadre, des LCQ hétérogènes ont été étudiés et réalisés dans la gamme spectrale du moyen infrarouge permettant d'obtenir une source large bande [Gmachl 2002]. Par exemple, des LCQ hétérogènes MIR présentant un gain large ont pu être intégrés dans une cavité externe pour former un dispositif très accordable [Hugi 2009]. Il y a un intérêt important à transférer ce principe vers la gamme THz pour laquelle des sources accordables trouveraient des applications dans l'identification de substances chimiques, par exemple. En effet, de nombreux composés présentent des signatures spectroscopiques uniques à ces fréquences [Shen 2005]. En outre, l'intégration de LCQ THz dans une cavité externe a déjà été démontrée avec un LCQ monofréquence [Xu 2007], mais avec une accordabilité limitée. De ce fait, l'utilisation de LCQ THz hétérogènes permettraient de disposer de sources THz compactes et accordables.

Dans cette thèse, les LCQ THz hétérogènes que nous avons étudiés consistent en une succession de régions actives qui ont été dessinées pour émettre à différentes fréquences et placées au sein d'un même guide d'onde permettant ainsi d'obtenir un gain pour plusieurs longueurs d'onde. Dans cette section, nous présentons les études réalisées sur deux échantillons destinés à émettre simultanément à deux fréquences dans le but d'obtenir un LCQ possédant un gain large. Le premier échantillon étudié

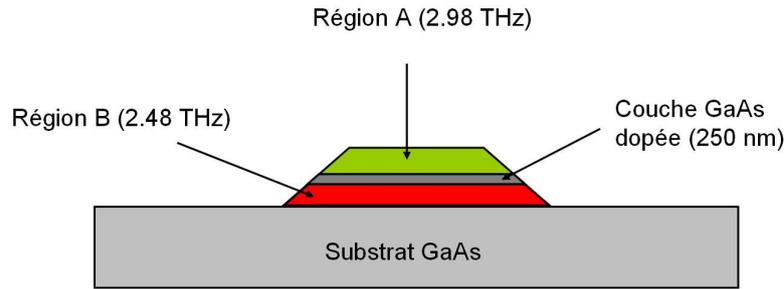


FIGURE 4.12 – Schéma représentant la disposition des couches dans le LCQ V464 hétérogène. Les régions A et B sont séparées par une couche de GaAs légèrement dopée pour permettre leur indépendance vis-à-vis du champ appliqué.

est un LCQ "bound-to-continuum" à guide simple plasmon conçu pour émettre à 2.5 et 2.9 THz. Le second en est une amélioration tenant compte de l'étude réalisé sur le premier qui présentait un défaut important limitant ses performances. Ce travail a été réalisé en collaboration avec J. Freeman du Cavendish Laboratory de l'Université de Cambridge [Freeman 2010].

4.4.1 Laser BTC SP 2.5 et 2.9 THz - V464

4.4.1.1 Description de l'échantillon

Le premier échantillon hétérogène utilisé dans cette étude repose sur un dessin "bound-to-continuum" constitué de 9 paires puits-barrières inspiré du dessin conçu par Barbieri et al. [Barbieri 2004]. Deux dessins ont été produits qui, assemblés, forment la structure hétérogène. Le premier appelé "A" est conçu pour émettre à une fréquence de 2.9 THz et le second "B" à 2.5 THz. Les structures sont conçues pour que l'action laser ait lieu pour des champs appliquées de 1.9 kV/cm et 1.6 kV/cm pour les dessins "A" et "B", respectivement. La croissance de la région active de cet échantillon consiste en 45 périodes du dessin "A", suivi d'une couche de 250 nm de GaAs légèrement dopées à $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ puis de 45 périodes du dessin "B". Cette couche de GaAs permet de donner une indépendance des régions A et B vis-à-vis du champ appliqué. L'association des deux régions actives peut alors se comprendre comme deux sources en série. La figure 4.12 présente schématiquement la disposition des différentes couches dans le dispositif hétérogène.

La figure 4.13 présente une simulation de la structure de bande correspondant au dessin "A" émettant à 2.9 THz. Le champ appliqué choisi est celui pour lequel l'action laser est optimale soit 1.9 kV/cm. En gras, sur cette figure, sont représentés l'état bas de la transition laser (en marron), l'état d'injection (en rose) et l'état haut de la transition laser (en vert). La profondeur de la minibande est de 12.5 meV et la transition optique est de 12.2 meV. La figure 4.14 présente la structure de bande

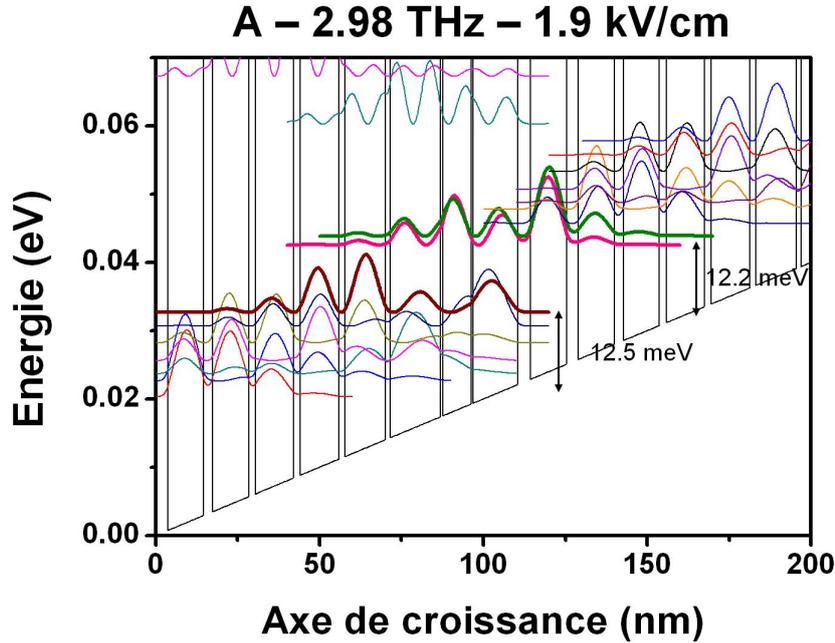


FIGURE 4.13 – Structure de bande de la partie "A" pour l'échantillon V464. Les états en gras sont : l'état bas de la transition laser (marron), l'état haut de la transition laser (vert) et l'état d'injection (rose). L'épaisseur des couches (en nm) est, à partir de la barrière d'injection : **3.9**/13.6/**0.61**/8.7/ **0.61**/15.3/**1.5**/12.4/**1.8**/11.8/ **2.1**/11.6/ **2.1** /11.0/ **2.8**/10.9/**3.6**/11.1. Les puits sont en GaAs et les barrières en $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$. Les couches dopées à hauteur de $1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ sont soulignées.

pour le dessin "B" émettant à 2.5 THz pour un champ électrique appliqué de 1.6 kV/cm. Dans cette structure, la profondeur de la minibande est de 10.5 meV et la transition optique est de 10.1 meV. Les états haut et bas de la transition laser ainsi que l'état d'injection sont représentés de la même façon qu'en figure 4.13.

4.4.1.2 Caractéristiques des structures A et B homogènes

Chacune de ces régions actives, placées une structure homogène, a été préalablement testée. Elles ont été réalisées de manière à présenter un même courant seuil pour le déclenchement de l'action laser en ajustant la taille des barrières, afin que l'émission des deux fréquences soit simultanée dans la structure hétérogène.

La figure 4.15 montre les caractéristiques L-I-V pour deux LCQ homogènes composés du dessin A (en bleu) et B (en rouge). Les deux LCQ présentent un seuil en courant similaire à environ 1.2 A ($\sim 150 \text{ A/cm}^2$) et également une émission dont la puissance optique est maximale pour le même courant ($\sim 250 \text{ A/cm}^2$).

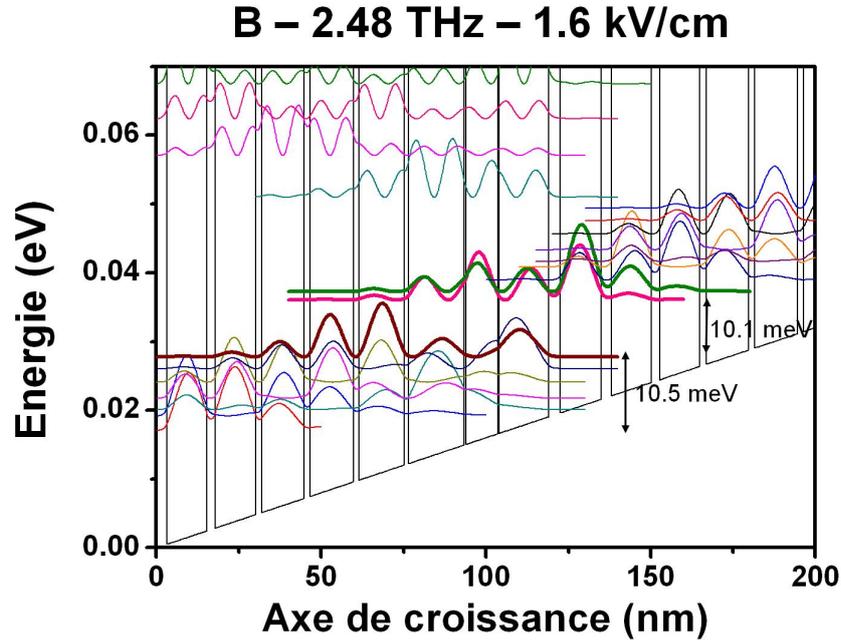


FIGURE 4.14 – Structure de bande de la partie "B" pour l'échantillon V464. Les états en gras sont : l'état bas de la transition laser (marron), l'état haut de la transition laser (vert) et l'état d'injection (rose). L'épaisseur des couches est (en nm) : **3.5**/15.0/**0.55**/9.6/ **0.55**/16.9/1.4 /13.7/ **1.7**/13.1/ **1.9**/12.8/ **1.9** /12.2/**2.5**/12.1/**3.2**/12.4. Les puits sont en GaAs et les barrières en $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$. Les couches dopées à hauteur de $1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ sont soulignées.

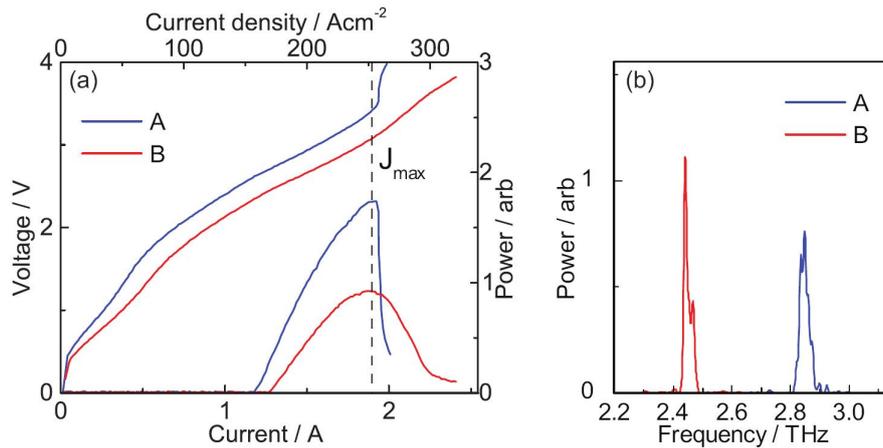


FIGURE 4.15 – (a) Caractéristiques L-I-V pour les dessins A (en bleu) et B (en rouge) dans des LCQ homogènes. (b) Spectres d'émission associés. Figures issues de [Freeman 2010]

4.4.1.3 Caractéristiques de la structure hétérogène

Dans cette étude, l'équipe de Cambridge a réalisé des échantillons à guide simple plasmon et à guide double métal. En figure 4.16 sont présentés les spectres d'émission pour différentes densités de courant mesurés par un spectromètre à transformée de Fourier de l'échantillon avec un guide double métal issue de [Freeman 2010]. L'action laser commence sur un mode à 2.56 THz avant de se décaler vers un mode dominant à 2.49 THz. Cette émission est associée à la partie "B" de la région active. La seconde fréquence à 2.9 THz, liée à la partie "A", opère de 250 à 280 A/cm² mais avec une puissance plus faible que la partie "B". De plus, entre le seuil laser à 117 A/cm² et le seuil à partir duquel des fréquences plus élevées apparaissent vers 250 A/cm², des modes de faible puissance qui se décalent progressivement vers les hautes fréquences sont observés. La figure 4.17 présente les caractéristiques I-V ainsi que la résistance différentielle ($\frac{dV}{dI}$) mesurée sur cet échantillon par Freeman et al. Une chute de la résistance différentielle est signe que l'injection dans le dispositif devient efficace (entrée dans le régime laser). Or, dans ces mesures deux chutes de résistance sont observées (pointées par des flèches noires). Une première chute dans la résistance à environ 130 A/cm² correspond au déclenchement de l'action laser pour la partie B (2.5 THz). La seconde chute observée, un peu au-delà de 200 A/cm² correspond au déclenchement de l'action laser pour la partie A à 2.9 THz environ.

4.4.1.4 Spectroscopie THz de l'échantillon V464

Pour tenter de comprendre l'origine de ce phénomène, un échantillon simple plasmon a été étudié par spectroscopie THz selon la méthode présentée précédemment. Bien que les résultats réalisés par l'équipe de Cambridge ont été établis avec des LCQ à guide double métal, les mesures de gain sont réalisées avec LCQ à guide simple plasmon. En effet, ici, ce qui est recherché est un défaut lié au dessin et non au type de guide. La version simple plasmon de cet échantillon ne présente d'action laser que pour la partie émettant à 2.5 THz. Les pertes liées au guide ont été estimées à $\alpha_A=5.4 \text{ cm}^{-1}$ et $\alpha_B=4.1 \text{ cm}^{-1}$ et les facteurs de confinement à $\Gamma_A = 8.7 \%$ et $\Gamma_B = 4.1 \%$. Ces pertes sont calculées à partir des structures homogènes.

4.4.1.5 Résultats

La figure 4.18 regroupe les principaux résultats obtenus pour l'échantillon V464 d'une longueur de cavité de 2 mm. En (a) sont présentées les caractéristiques L-I-V de cette structure refroidie à 4 K et alimentée de façon impulsionnelle à une fréquence de 25 kHz avec un rapport cyclique de 25 % (mêmes conditions que lors des mesures de gain par spectroscopie THz). Le seuil laser est mesuré pour un courant de 711 mA (142 A/cm²) et s'étend jusqu'à environ 1090 mA (218 A/cm²).

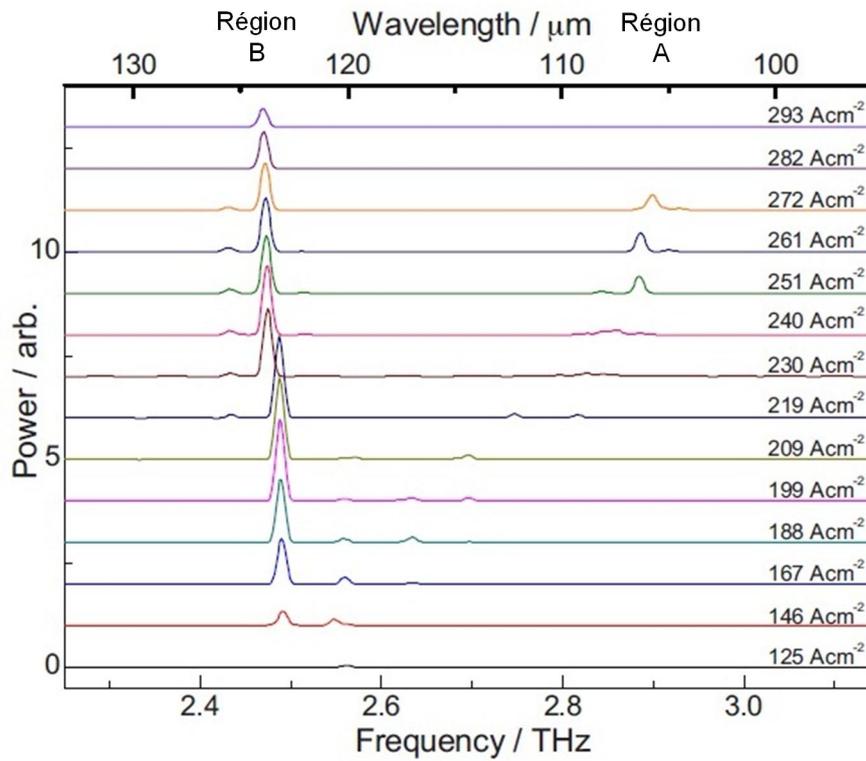


FIGURE 4.16 – Spectres de l'échantillon V464 à 4 K dans un guide double métal pour différentes densités de courant mesurés par un spectromètre à transformée de Fourier. Figure issue de [Freeman 2010]

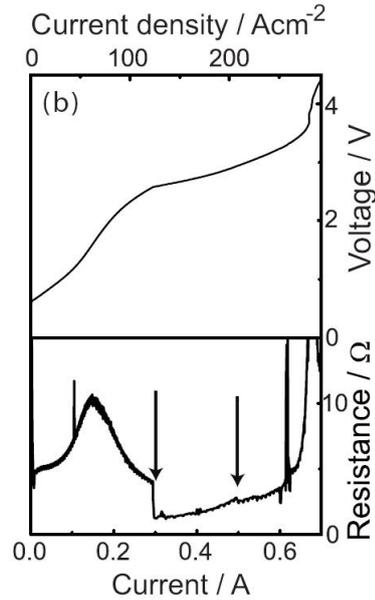


FIGURE 4.17 – Caractéristiques I-V et résistance différentielle associée pour l'échantillon V464 en guide double métal. Figure issue de [Freeman 2010]

La puissance maximale d'émission est située autour de 975 mA (195 A/cm^2). En (b) sont présentés le résultats des mesures du gain en fonction du courant. Le gain clampe pour 2.5 THz (courbe noire) car l'action laser se produit uniquement à cette fréquence. La valeur du gain clampé est d'environ 7 cm^{-1} , en accord avec les pertes totales calculées. Juste après le seuil, le gain décroît brutalement avant de clamber à une valeur plus faible. Ce comportement se retrouve dans la mesure de la puissance optique en fonction du courant en (a).

Le gain à 2.9 THz (courbe rouge) présente l'allure d'un gain clampé à partir de 400 mA mais aucune action laser n'est mesurée à cette fréquence dans ce type de guide et pour ces courants. Il faut remarquer également que le gain à 2.9 THz croît plus rapidement que celui à 2.5 THz. Les deux régions n'opèrent pas de façon simultanée. Cela suggère que la partie "A" est fortement affectée dans la configuration d'une structure hétérogène. En effet, les structures "A" et "B" étudiées séparément dans des LCQ homogènes présentent des performances similaires (voir section 4.4.1.2). Comme le changement de pente du gain à 2.9 THz intervient avant le seuil laser, il est plus probable que l'explication des faibles performances de cette région réside dans un problème électrique plutôt qu'optique. Cela laisse penser que la couche de GaAs utilisée pour séparer les deux régions actives ne permet pas au final d'obtenir des champs indépendants. Pour de faibles densités de courant, seule la partie à 2.5 THz ("B") semble s'aligner car elle possède un plus faible champ d'alignement (1.6 kV/cm contre 1.9 kV/cm). Par ailleurs, le gain de la région à 2.9

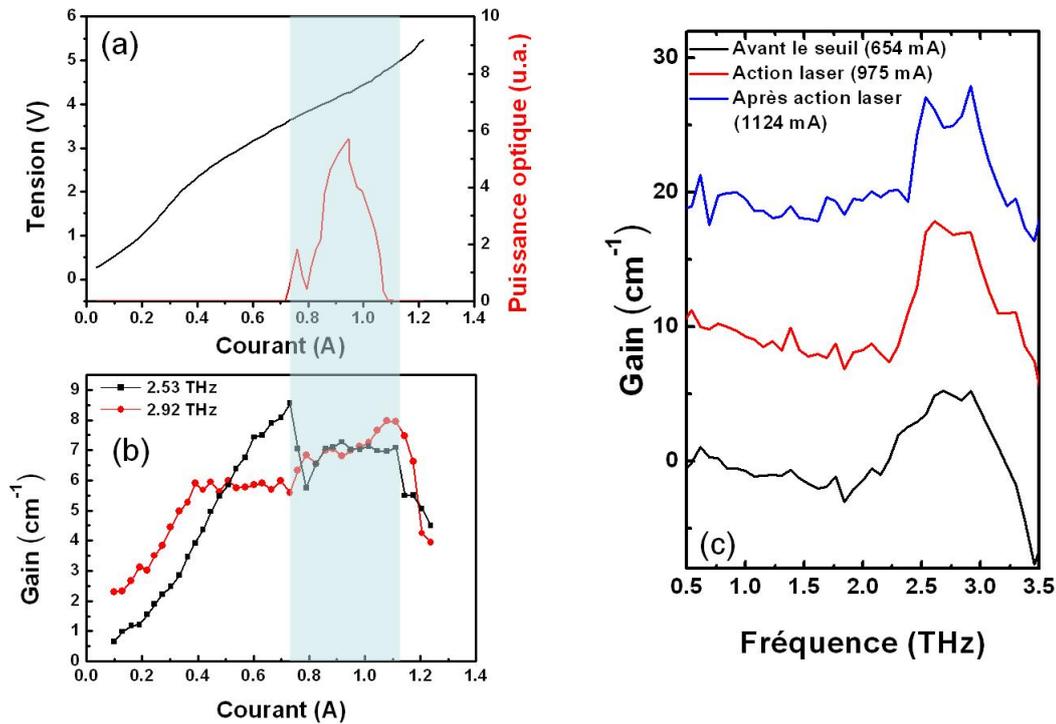


FIGURE 4.18 – Principaux résultats pour l'échantillon V464. (a) Caractéristiques L-I-V. (b) Gain en fonction du courant mesuré par spectroscopie THz pour les fréquences 2.5 THz (en noir) et 2.9 THz (en rouge). (c) Gain spectral pour différents points de fonctionnement du LCQ : en dessous du seuil laser (en noir), pendant l'action laser (en rouge) et après l'action laser (en bleu).

THz continue d'augmenter, signe que la structure n'a pas atteint encore son régime d'alignement optimal qui n'est pas accordé à celui de la région basse fréquence. C'est pourquoi l'action laser à haute fréquence se déclenche tardivement également (voir figure 4.16).

En (c) est représenté le gain spectral en dessous du seuil, pendant l'action laser et après l'action laser. Pendant l'action laser, un gain large est observé d'une largeur à mi-hauteur d'environ 500 GHz. Dans ce type de dispositif, le gain est clairement plus large que dans un LCQ homogène. En effet, la largeur du gain dans le LCQ homogène V455 présenté dans la section précédente possède gain spectral autour de 1.9 THz dont la largeur à mi-hauteur n'excède pas 300 GHz.

Ces résultats montrent que l'échantillon étudié remplit une part seulement de ses promesses. Le gain spectral mesuré est effectivement plus large que dans un LCQ homogène ce qui est adapté à la réalisation de sources accordables en fréquence. Mais, les faibles performances d'une des deux parties ne permet pas, en raison des champs

appliqués différents, une telle utilisation, puisqu'il est préférable, dans l'hypothèse d'un laser accordable d'avoir une émission dont la puissance est relativement uniforme sur l'ensemble du spectre. Pour corriger ce défaut, un nouvel échantillon a été réalisé dont les deux parties ont été dessinés afin que l'action laser se déclenche pour le même champ appliqué et que le champ ainsi que le courant soient les mêmes au maximum de puissance optique émise. L'étude de cet échantillon est détaillé dans le paragraphe suivant.

4.4.2 Laser BTC SP 2.6 et 2.8 THz - V653

4.4.2.1 Description de l'échantillon

Cet échantillon a été conçu pour que les deux régions émettant à des fréquences différentes s'alignent pour des champs identiques. Pour s'assurer que les deux dessins opèrent avec le même champ électrique mais émettent à des fréquences différentes, la profondeur de la minibande a été ajustée afin de conserver la même perte d'énergie par période (i.e. que les électrons dans chaque région perdent la même énergie par période). Cela est réalisé de telle façon que le dessin prévu pour une plus grande fréquence, i.e. une plus grande énergie entre l'état haut et bas de la transition laser, ait une plus faible différence d'énergie entre le haut et le bas de la minibande. Cela conduit à une diminution de l'énergie par période similaire à celle d'un dessin ayant une plus faible fréquence et une minibande plus profonde. Comme chaque dessin a le même nombre de paires puits/barrières (9) les états électroniques sont plus proches quand la minibande est peu profonde. Les deux dessins sont prévus pour un champ d'alignement de 1.6 kV/cm. Cela correspond à des minibandes dont l'énergie entre le niveau haut et bas est de 10.9 meV (contre 12.5 meV pour la région A pour l'échantillon V464) pour la région "A" émettant à 2.88 THz et est de 10.8 meV (contre 10.5 meV dans le V464) pour la région "B" émettant à 2.5 THz.

Les figures 4.19 et 4.20 montrent les structures de bande simulée pour les dessins "A" et "B". Les états haut et bas de la transition laser et l'état d'injection sont représentés en gras.

La région active de l'échantillon est composée de 45 périodes de chaque dessin séparé par une couche de GaAs de 250 nm dopée à $5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ dont la croissance a été réalisée sur un substrat GaAs (100). L'échantillon étudié a été réalisé avec un guide simple plasmon de 3 mm d'une largeur de 250 μm .

4.4.2.2 Caractéristiques des structures A et B homogènes - V653

La figure 4.21 présente les caractéristiques L-I-V de deux échantillons constitués des dessins A et B séparément dans des guides simple plasmon. Ces caractéristiques montrent que dans ce cas, plutôt que d'avoir le même courant seuil (V464), le maximum de puissance optique est obtenu pour les structures A et B pour la même densité de courant (J_{max}) et quasiment la même tension (V_{max}). Les spectres (sur

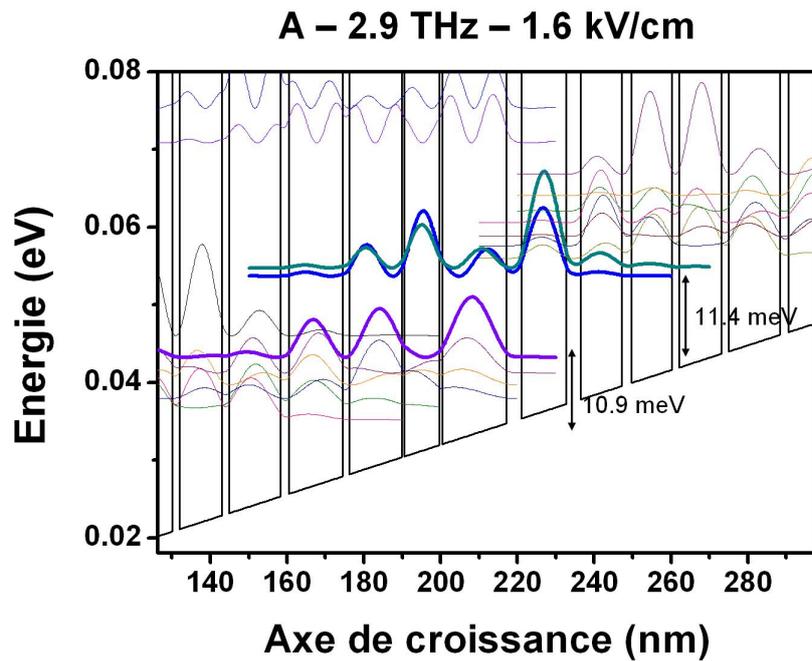


FIGURE 4.19 – Structure de bande simulée pour la partie "A" à un champ de 1.6 kV/cm. Les états électroniques en gras sont l'état bas de la transition laser (violet), haut (vert) et l'état d'injection (bleu). L'épaisseur des couches, en commençant par la barrière d'injection est : **3.8**/16.8/**0.66**/9.1/ **0.6**/13.8/**1.7**/14.0/ **2.1**/13.5/**1.8**/11.1/ **1.8**/10.6/ **2.4**/10.8/**3.2**/11.7. Les barrières sont en $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ et les couches soulignées sont dopées à $1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

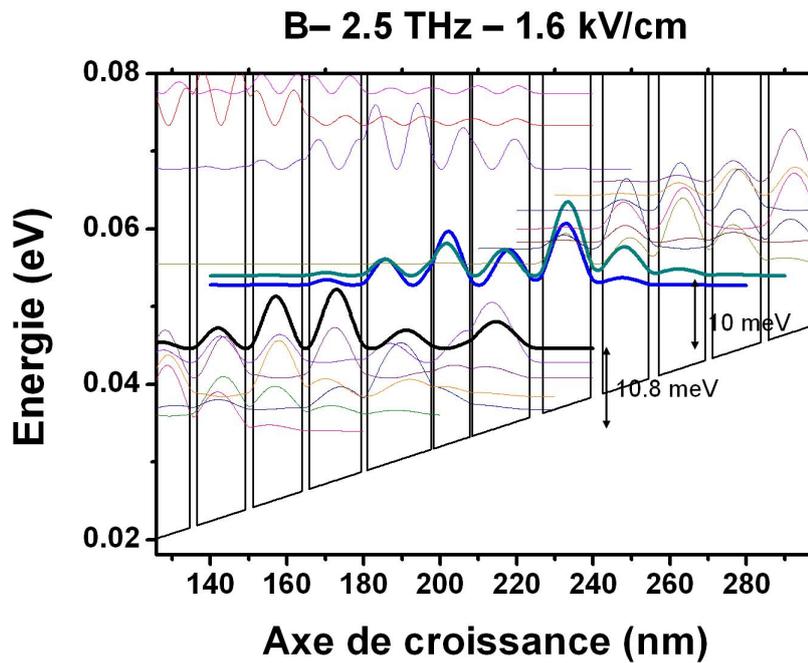


FIGURE 4.20 – Structure de bande simulée pour la partie "B" à un champ de 1.6 kV/cm. Les états électroniques en gras sont l'état bas de la transition laser (noir), haut (vert) et l'état d'injection (bleu). L'épaisseur de couches est : **3.5**/14.98/**0.55**/9.63/ **0.55**/16.91/**1.4**/13.7/ **1.7**/13.05/ **1.9**/12.84/ **1.9**/12.2/**2.5**/12.09/**3.2**/12.4. Les barrières sont en $Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ et les couches soulignées sont dopées à $1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

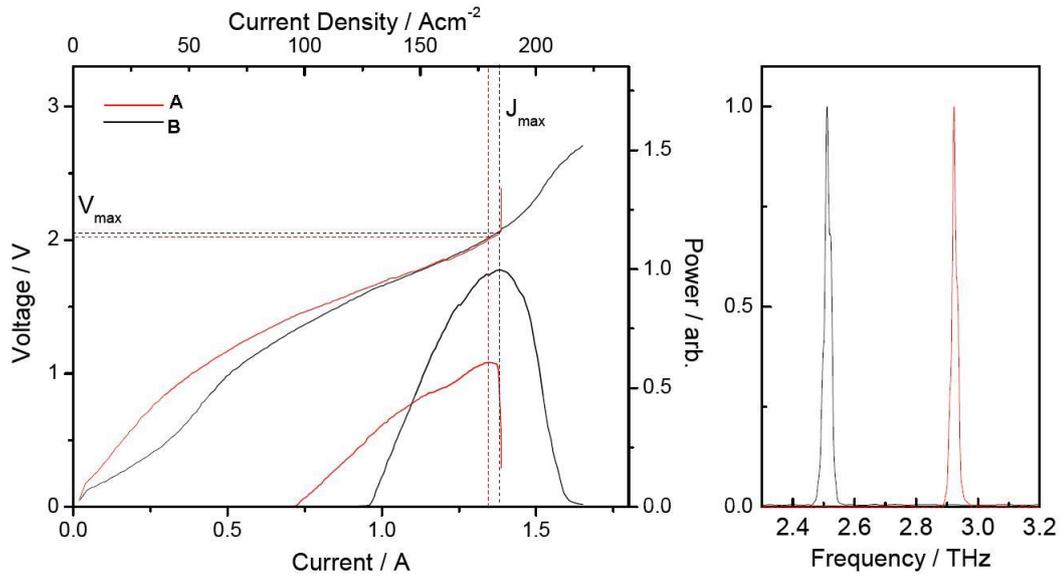


FIGURE 4.21 – **A gauche** : Caractéristiques L-I-V de deux LCQ homogènes contenant les régions actives A (en rouge) à 2.9 THz et B (en noir) à 2.5 THz dans des guides simple plasmon. **A droite** : Spectres d'émission. Figure issues de [Freeman 2011].

la courbe de droite) montrent une émission à environ 2.5 THz et 2.9 THz, ce qui est attendu.

4.4.2.3 Caractéristiques de la structure hétérogène - V653

La figure 4.22 présente le spectre d'émission de l'échantillon hétérogène étudié par la suite par spectroscopie THz. L'émission de deux fréquences simultanément est observée. La figure 4.23 présente les caractéristiques L-I-V de cet échantillon alimenté de façon impulsionnelle à 25 kHz avec un rapport cyclique de 25 % et refroidi à 4 K. Dès le seuil laser (1.25 A, 160 A/cm²), l'action laser présente deux fréquences distinctes à 2.65 THz et 2.81 THz, ce qui représente une amélioration significative comparée au précédent échantillon. L'action laser prend fin à partir de 2.6 A environ (350 A/cm²).

En augmentant le courant, l'émission à plus basse fréquence reste stable à 2.65 THz sur toute la plage de courant utile. Cette émission correspond à la région B prévue à 2.5 THz. L'écart entre la fréquence prévue et mesurée peut être attribuée à la croissance qui peut présenter une certaine erreur sur l'épaisseur des couches. L'émission à plus haute fréquence, quant à elle, se décale vers le bleu lorsque le courant injecté augmente, puis se stabilise autour de 2.9 THz après 281 A/cm².

Afin d'analyser un peu plus en détail cet échantillon, nous avons réalisé des

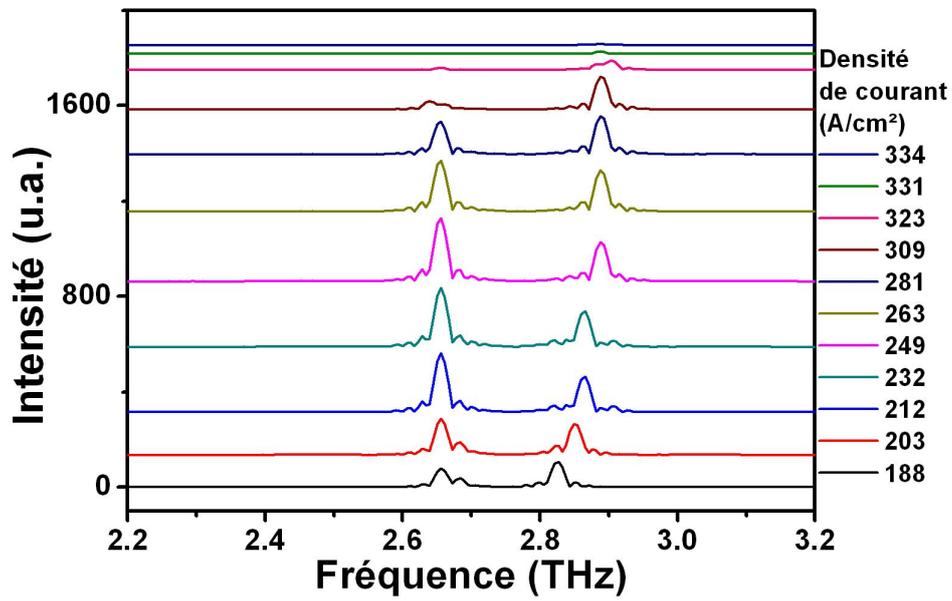


FIGURE 4.22 – Spectres mesurés par spectromètre à transformée de Fourier de l'échantillon V653 pour différentes densités de courant

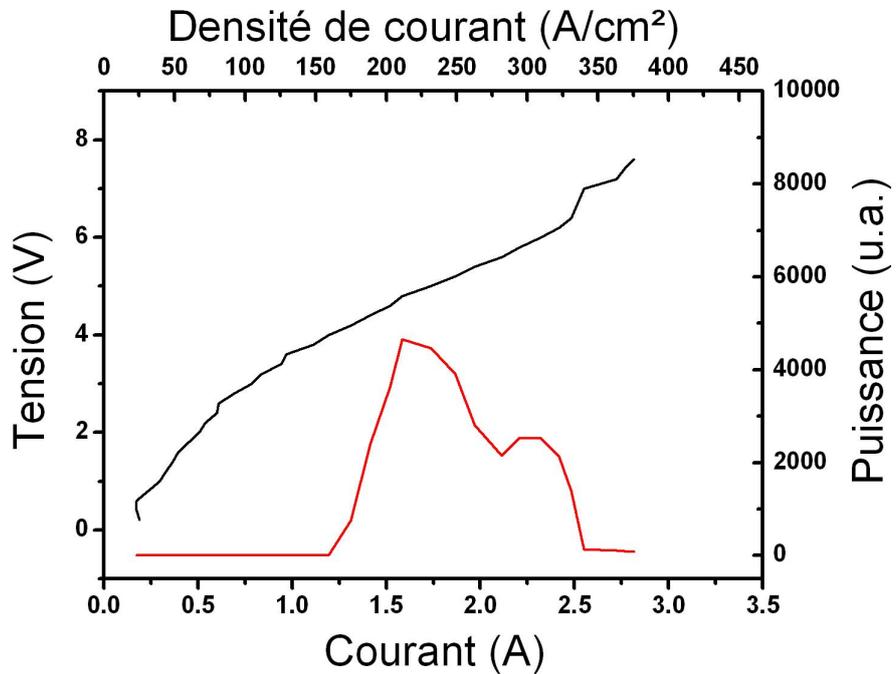


FIGURE 4.23 – Caractéristiques L-I-V de l'échantillon hétérogène V653

mesures de gain par spectroscopie THz de la même façon que dans la section précédente.

4.4.2.4 Résultats

La figure 4.24 présente les principaux résultats obtenus pour cet échantillon. En (a) est représenté la puissance optique en fonction du courant (en vert) de l'échantillon alimenté en régime impulsionnel (25 kHz, 25 %) et le gain en fonction du courant mesuré par spectroscopie THz pour les fréquences de 2.67 THz et 2.88 THz. Ces mesures permettent d'observer que le gain aux fréquences d'émission du LCQ clampe, signature de l'effet laser. Pour les deux fréquences, le gain commence à clamber à partir de 1.25 A (160 A/cm²) à une valeur de 8.5 cm⁻¹ pour l'émission à 2.88 THz et à 7.4 cm⁻¹ pour 2.67 THz. Puis, à partir de 1.86 A (249 A/cm²), le gain à 2.88 THz change pour clamber à la même valeur que le gain à 2.67 THz, qui lui reste constant sur toute la plage de courant pour laquelle il y a action laser.

Ce comportement du gain à haute fréquence est parfaitement corrélé aux spectres d'émission de l'échantillon (voir figure 4.22). En effet, pour la composante basse fréquence (région B), le spectre montre que la fréquence d'émission est fixée à 2.65 THz, ce qui est en parfait accord avec un gain clamped sur toute la plage de courant utile à cette fréquence. En ce qui concerne l'émission à haute fréquence, celle-ci se décale vers le bleu jusqu'à 2 A (280 A/cm²) environ, puis se fixe à partir de cette valeur. Ce phénomène est également observé sur la courbe de gain en (a), puisque c'est à partir de ce courant que le gain à haute fréquence se stabilise et s'égalise à celui de la région basse fréquence.

L'effet se confirme lorsque le gain à une fréquence intermédiaire (2.81 THz, fréquence d'émission mesurée juste après le seuil) est observé. Sur la figure 4.25, la courbe bleue représente le gain à 2.81 THz, soit une fréquence intermédiaire entre les deux fréquences lasers. Il est évident que le gain clampe après le seuil pour cette fréquence et jusqu'à environ 250 A/cm², après quoi il décroît, tandis que la partie à 2.88 THz se fixe définitivement, car l'action laser commence à cette fréquence. Ce phénomène est probablement dû encore à un problème d'alignement des structures avec le champ électrique. Le régime laser entre chaque section est peut-être atteint pour des champs électriques légèrement différents. Cela est conforté par les caractéristiques L-I-V des LCQ homogènes qui montrent que les tensions pour lesquelles l'alignement est optimal sont proches mais pas identiques (voir figure 4.21). Cela confirme l'interprétation de l'origine des problèmes rencontrés avec l'échantillon V464.

Un autre aspect que permet de vérifier les mesures par spectroscopie THz est la largeur du gain spectral. La figure (b) montre le gain spectral mesuré pour cet échantillon en dessous du seuil, pendant l'action laser et après l'action laser. Un comportement similaire à l'échantillon précédent est observé. Un gain assez large

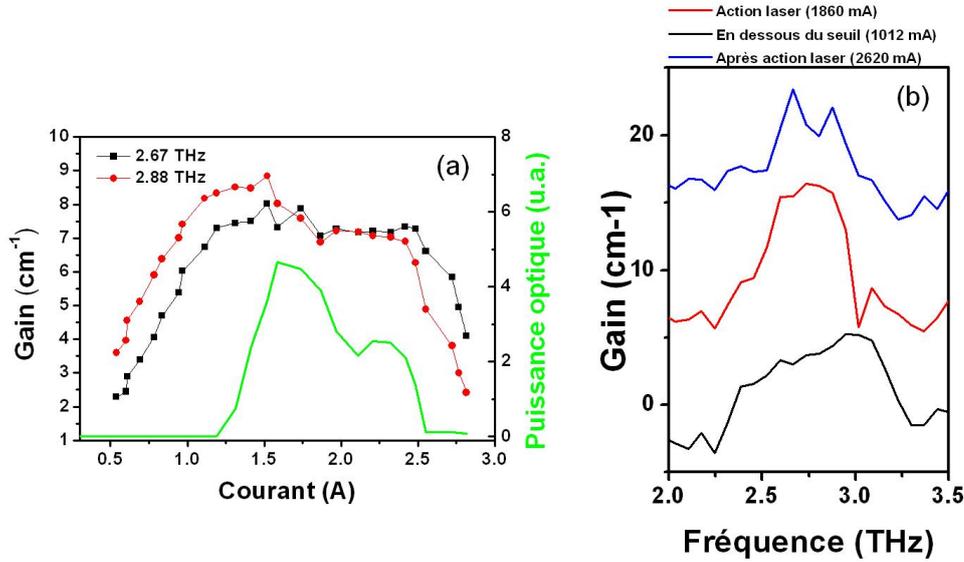


FIGURE 4.24 – Principaux résultats obtenus par spectroscopie THz pour l'échantillon V653. (a) Puissance optique (en vert) et gain en fonction du courant pour les fréquences 2.67 THz et 2.88 THz mesuré par spectroscopie THz. (b) Gain spectral en dessous du seuil (en noir), pendant l'action laser (en rouge) et après l'action laser (bleu).

d'environ 400 GHz est mesuré, plus faible que le LCQ précédent car les fréquences émises sont plus proches. Après l'action laser, le rétrécissement du gain permet d'observer la contribution distincte des deux sections. Ainsi, lorsqu'il y a action laser simultanée, la structure présente un gain large.

Les résultats montrent que le LCQ se comporte comme attendu et que l'étude réalisée sur l'échantillon précédent (section 4.4.3) a porté ses fruits et a permis d'améliorer significativement les performances de ce LCQ hétérogène. L'échantillon présente à la fois une émission à deux fréquences simultanément et un gain spectral large.

Ces résultats montrent que, grâce aux mesures de gain réalisées et à leur analyse, l'échantillon tient ses promesses, faisant de celui-ci le premier LCQ hétérogène à présenter une émission à deux fréquences simultanément dans un guide simple plasmon. L'équipe de Cambridge a réalisé dans le cadre de ce travail, une étude sur la même structure mais dans un guide double métal [Freeman 2011]. Celui-ci en raison d'un meilleur confinement des modes et un meilleur recouvrement de ceux-ci avec la région active présente une émission large bande sur environ 400 GHz. Ce type de LCQ à émission large bande est tout à fait indiqué pour être utilisé comme source accordable, en l'intégrant, par exemple, dans une cavité externe. Et plus encore,

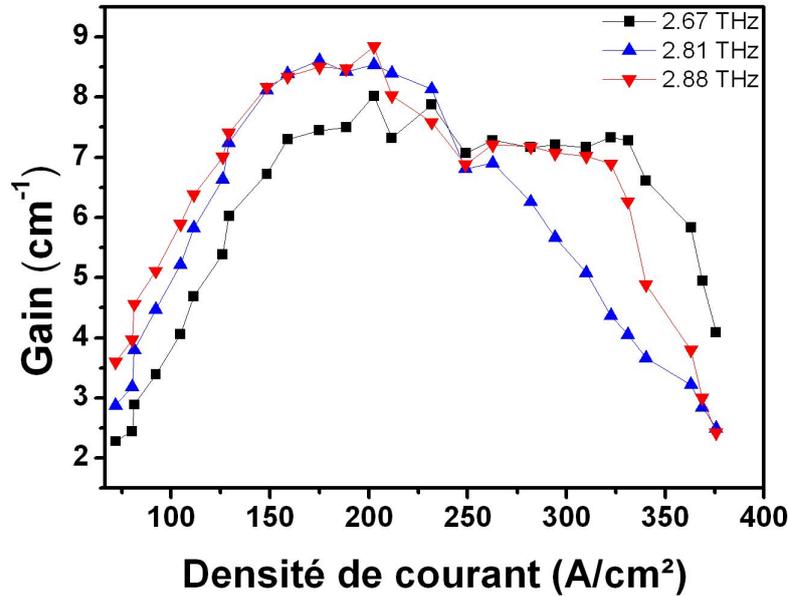


FIGURE 4.25 – Gain en fonction du courant à 2.67 THz (en noir), 2.81 THz (en bleu) et 2.88 THz (en rouge) mesuré par spectroscopie THz.

suite aux récents résultats obtenus dans l'équipe au LPA, démontrant la possibilité d'utiliser les LCQ comme amplificateur d'ondes THz [Jukam 2009a], un LCQ avec un gain large serait adapté pour des études par spectroscopie THz avec des champs intenses car cela permettrait l'amplification d'impulsions avec un spectre plus large qu'un LCQ homogène.

4.5 Conclusion

La technique expérimentale de spectroscopie THz dans le domaine temporel permet d'accéder directement au gain spectral d'un laser à cascade quantique aussi bien en dessous du seuil qu'au dessus du seuil. Cette technique nous a permis de mesurer et d'évaluer les performances de deux types de LCQ. Les LCQ homogènes, prévu pour n'émettre qu'à une unique fréquence et des LCQ hétérogènes dans lesquels différentes régions actives sont associées monolithiquement dans un même guide d'onde. Nous avons comparé Les caractéristiques des deux types de dispositifs reposant tous deux sur le même mécanisme d'inversion de population (bound-to-continuum). La principale différence, au-delà de l'émission multifréquence concerne la largeur spectrale du gain. L'association de deux régions active dans un même guide conduit à un gain optique plus large pendant l'action laser et non pas à deux composantes spectrales étroites. Nous avons étudié un premier LCQ hétérogène, mais pour celui-ci, une des régions présentait de faibles performances. Des mesures par spectroscopie THz dans le domaine temporel nous ont permis d'identifier la source du dysfonction-

nement, attribué à un problème d'alignement de l'une des régions actives, l'empêchant ainsi de laser. Un second échantillon qui tient compte des observations issues des premiers résultats a été réalisé. Dans celui-ci, les deux régions ont été conçues de telle façon que le champ électrique d'alignement laser soit identique. Ce dernier échantillon montre de bonnes performances pour les deux fréquences avec un gain spectral large. Ce travail montre d'une part l'intérêt d'utiliser la spectroscopie THz pour évaluer le gain des LCQ et déceler d'éventuelles imperfections. D'autre part, la réalisation de LCQ hétérogènes permettant l'émission simultanée de deux fréquences est démontrée.

Les perspectives sur ce travail concernent principalement son extension à des dispositifs présentant un gain ou une émission très large en créant des LCQ constitués de plus de régions actives. La création d'un LCQ THz très large bande permettrait de disposer d'une source facilement accordable dans cette gamme. Cela en ferait également une source parfaitement adaptée à la spectroscopie de substances.

Optique non-linéaire résonante dans les LCQ

Sommaire

4.1	Mesure du gain dans un laser	75
4.1.1	Techniques classiques	75
4.1.2	Mesure de gain par spectroscopie THz	75
4.2	Protocole expérimental	76
4.2.1	Techniques et matériels pour l'étude des LCQ	76
4.2.2	Mesure et calcul du gain	80
4.3	Lasers homogènes	84
4.3.1	Description de l'échantillon V455	84
4.3.2	Résultats	86
4.3.3	Comparaison du gain avec les pertes calculées	89
4.3.4	Absorptions à hautes fréquences dans la structure	90
4.4	Lasers hétérogènes	94
4.4.1	Laser BTC SP 2.5 et 2.9 THz - V464	95
4.4.2	Laser BTC SP 2.6 et 2.8 THz - V653	102
4.5	Conclusion	109

L'émergence des lasers dans les années 60, dont les densités de puissance sont très élevées, ont permis l'essor de l'optique non-linéaire [Franken 1961]. Depuis, ce domaine de l'optique est devenu très vaste et les propriétés non-linéaires de nombreux matériaux massifs ont été étudiées pour réaliser, par exemple, du mélange d'ondes ou de la génération d'harmoniques [Boyd 2008]. Par la suite, les systèmes à base de semiconducteurs possédant des puits quantiques ont attiré l'attention, en raison de leur grande flexibilité (ajustement des niveaux d'énergies) mais également parce qu'ils peuvent être le siège de fortes susceptibilités non-linéaires. La susceptibilité non-linéaire caractérise la force de l'interaction, et peut, de plus être fortement exaltée si les ondes impliquées dans le processus sont en résonance avec des transitions dans le milieu. En effet, la susceptibilité non-linéaire dépend des dipôles des transitions. Ceux-ci sont qualifiés de géants pour des transitions intersousbandes et peuvent contribuer également fortement pour des transitions interbandes en raison du fort recouvrement des fonctions d'ondes [Garmire 1999]. Les non-linéarités obtenues dans ces matériaux sont plusieurs ordres de grandeurs plus élevées que dans les matériaux massifs, en tirant justement partie des effets de résonances. A

titre d'exemple, dans le GaAs massif, la susceptibilité non linéaire d'ordre deux (impliquée dans les processus de mélange à trois ondes et de génération de seconde harmonique) est environ de 100 pm/V et peut atteindre des valeurs de l'ordre de 10^4 - 10^6 pm/V en s'appuyant sur des effets résonants avec des transitions intersous-bandes dans des puits quantiques AlGaAs/GaAs [Sirtori 1991]. En ce qui concerne les ordres de grandeurs des susceptibilités non-linéaire d'ordre deux dans le cas de résonances avec des transitions interbandes dans des puits quantiques, les résultats présentent une assez grande disparité, des valeurs proches de la non-linéarité du massif ont été montrées, par exemple, par Fiore et al. [Fiore 2007], mais également beaucoup plus élevée (10^4 pm/V) par Atanasov et al. [Atanasov 1994].

Les LCQ THz les plus répandus à ce jour sont conçus à partir de GaAs, dont la bande interdite (ou gap) se situe aux alentours de 1.42 eV (1.52 eV à 4 K). Cette énergie est dans la gamme du proche-IR dont les sources et détecteurs aujourd'hui reposent sur des technologies matures. Il est alors tout à fait envisageable d'imaginer, en s'appuyant sur les études réalisées précédemment, utiliser une non-linéarité résonante dans les puits quantiques du LCQ afin de réaliser un mélange d'onde efficace entre une pompe optique proche-IR (accordée avec les transitions interbandes de la région active) et l'onde THz générée par le LCQ lui-même. Deux cas de figures peuvent être principalement examinés, le cas d'une non-linéarité purement interbande (simplement résonante) et le cas d'une non-linéarité faisant intervenir un effet de résonance interbande et intersousbande. La figure 5.1 présente de façon schématique cette idée dans le cas d'un mélange d'ondes impliquant trois ondes permettant la génération de la différence de fréquences $\omega_1 - \omega_2$. En (a) est décrit un mélange de fréquence s'appuyant sur une résonance entre l'onde ω_1 et une transition interbande où l'onde $\omega_1 - \omega_2$ est générée via un état virtuel. En (b) est représenté un cas où l'onde ω_1 est résonante avec une transition interbande et l'onde ω_2 avec une transition intersousbande. Le phénomène serait d'autant plus important que les LCQ peuvent être utilisés comme milieux guidés afin de confiner les champs dans un petit volume.

Des études ont déjà été réalisées sur le sujet spécifique de la génération de raies à la différence ou somme des fréquences impliquant un faisceau THz et un faisceau proche-IR (voir section 5.2). Mais, généralement, bien que la possibilité d'un tel processus ait été établie, les rendements de conversion, traduisant la proportion du faisceau de pompe proche-IR décalée en longueur d'onde par la fréquence THz, sont relativement efficaces (<0.2 %), ils nécessitent des équipements massifs (lasers à électrons libres) [Carter 2003].

Il existe un fort intérêt technologique à développer ce type de dispositifs permettant de convertir une onde THz sur un faisceau proche-IR, qui soit à la fois efficace et compact. Effectivement, à l'heure actuelle la capacité des réseaux de télécom à fibre optique présente quelques défauts, notamment en ce qui concerne le multiplexage de canaux de communications optiques qui repose sur la manipulation

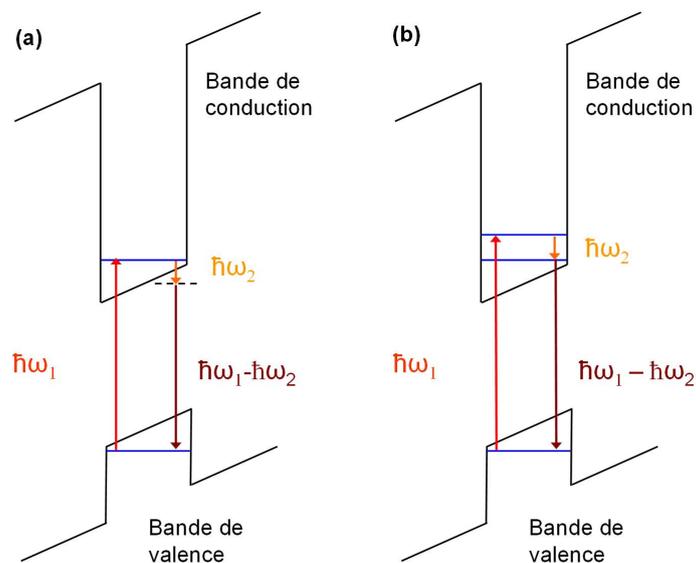


FIGURE 5.1 – Schéma illustrant le principe d’un mélange d’ondes permettant la génération de la différence de fréquences dans un puits quantique. **(a)** Cas avec une résonance interbande. **(b)** Cas avec une résonance interbande et intersousbande.

de longueurs d’onde dans l’infrarouge, utilisant encore des techniques électroniques (lentes), limitant la rapidité de ces réseaux (voir section **5.6.2**). La conversion de fréquences tout optique est donc un sujet d’étude important dans ce domaine. Sous un autre aspect technologique important, pouvoir convertir une onde THz sur une porteuse optique dans le proche-IR, permet le traitement de signaux dans la gamme THz en employant des technologies de l’infrarouge, très matures et peu coûteuses.

Dans ce chapitre, nous montrons qu’il est possible de réaliser un mélange d’ondes efficace dans un système compact (un LCQ THz). L’utilisation de LCQ permet à la fois de disposer de fortes non-linéarités, exaltée par l’effet de résonance et de tirer partie des fortes densités de puissances THz intracavités, équivalente à celle des lasers à électrons libres ($\sim 10 \text{ kW/cm}^2$). Pour cela, nous injectons via une des facettes d’un LCQ THz une pompe proche-IR accordée avec des transitions interbandes (impliquant trous de la bande valence et électrons de la bande de conduction) de la région active. Dans cette configuration, les ondes se propagent colinéairement et interagissent sur toute la longueur de la cavité. La génération de la différence des fréquences entre une pompe proche-IR (ω_p) et la fréquence THz d’un LCQ (ω_{LCQ}) étudié atteint des rendements de l’ordre de 0.12 %, comparable aux travaux s’appuyant sur un laser à électrons libres comme source THz. Nous démontrons expérimentalement que le processus non-linéaire présente des résonances qui tirent leur origine de l’interaction avec des transitions interbandes dans les puits quantiques de la région active. Nous montrons également que la génération de la différence des

fréquences se produit par l'intermédiaire d'une transition virtuelle sous le gap. Puis, ce mélange de fréquences est utilisé pour mesurer le spectre d'émission THz d'un LCQ avec résolution supérieure au FTIR en utilisant un spectromètre proche-IR classique. Enfin, nous proposons un modèle pour décrire ce mélange d'ondes reposant sur un processus d'ordre deux tenant compte des pertes par absorption de la pompe proche-IR et où l'accord de phase dans le dispositif est réalisé grâce à la dispersion de l'indice au voisinage des résonances interbandes.

Dans une première partie, nous fournissons les notions d'optique non-linéaire nécessaires à la compréhension de l'étude, en concentrant notre attention sur le mélange impliquant trois ondes, et plus spécifiquement, la génération à la différence de fréquences ($\omega = \omega_p - \omega_{LCQ}$) dans le cas d'une pompe dans un milieu avec pertes et sans pertes par absorption. Nous donnons également les expressions permettant d'évaluer l'efficacité de la conversion dans ces deux cas. Dans une seconde partie, nous dressons un état de l'art sur le mélange d'onde dans les LCQ de manière générale et présentons plus en détail, par la suite, des travaux concernant la conversion de fréquence entre une onde proche-IR et une onde THz. Dans la troisième section, nous décrivons le dispositif expérimental réalisé au cours de cette thèse qui a permis la mise en évidence de la présence d'un processus non-linéaire résonant avec une grande efficacité de conversion par rapport à l'état de l'art. Puis, nous présentons les résultats expérimentaux obtenus pour l'échantillon qui a présenté les meilleurs performances. La dernière section est dédiée au modèle que nous avons établi pour décrire le processus non-linéaire en jeu.

5.1 Optique non-linéaire

L'apparition des sources lasers dans les années 60 a permis l'émergence de l'optique non-linéaire. Dans ce cadre, la notion de réponse linéaire d'un matériau caractérisée par un indice de réfraction constant (ou une polarisation induite proportionnelle à l'amplitude du champ électrique) n'est plus valable et, ce, même pour des intensités modérées. La relation qui lie la polarisation du milieu et le champ électrique n'est plus linéaire. A la limite où l'amplitude du champ laser est faible devant celle du champ intra-atomique, l'expression de la polarisation peut s'écrire sous la forme d'un développement en puissances :

$$P_i = \varepsilon_0 \left(\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right) \quad (5.1)$$

où ε_0 est la permittivité du vide et $\chi^{(i)}$ le tenseur de susceptibilité d'ordre i . Le premier terme de ce développement correspond à la susceptibilité linéaire qui définit la constante diélectrique d'un milieu. Le second terme fait apparaître la susceptibilité d'ordre deux qui est liée à des processus tel que le mélange à trois ondes, la génération de seconde harmonique ou la rectification optique. Le troisième terme de ce développement dépend d'une susceptibilité d'ordre trois qui permet le

mélange à quatre ondes, la génération de troisième harmonique ou encore l'effet Kerr ou Raman.

5.1.1 Equation d'onde non-linéaire

En optique non-linéaire, la description de la propagation du champ électrique à travers le matériau non-linéaire doit prendre en compte le couplage entre les ondes et la polarisation qu'elles induisent. L'équation d'onde non-linéaire est déduite des équations de Maxwell, où la polarisation joue le rôle d'un terme source. L'expression reliant la polarisation au champ électrique pour chaque composante ω peut se réécrire sous la forme :

$$\mathbf{P}(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \mathbf{E}(\omega) + \mathbf{P}^{NL}(\omega) \quad (5.2)$$

où \mathbf{P}^{NL} est la polarisation non-linéaire. L'équation d'onde non-linéaire s'écrit alors [Boyd 2008] :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\omega) + n^2(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\omega) = -\frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} \mathbf{P}^{NL}(\omega) \quad (5.3)$$

où $n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}$ est l'indice de réfraction du milieu. Quand une interaction entre plusieurs ondes est considérée, la propagation des champs est décrite par un système d'équations couplées qui peut s'avérer rapidement complexe à résoudre. Cependant, dans la majorité des cas, le nombre d'équations et les termes qui les composent peuvent être simplifiés.

5.1.2 Mélange à trois ondes

Le mélange à trois ondes est caractérisé par une susceptibilité d'ordre 2 ($\chi^{(2)}$). Les trois ondes en jeu sont notées ω_1 , ω_2 et ω_3 . L'interaction décrite ici considère le mélange entre deux ondes se propageant dans un milieu non linéaire permettant la génération d'une troisième onde à la somme ou à la différence des fréquences des deux premières. Ce processus peut également être appelé conversion de fréquences dans le sens où une partie de l'onde ω_1 est décalée d'une fréquence ω_2 pour donner l'onde ω_3 . La figure 5.2 présente schématiquement la conversion de fréquences dans le cas de la génération de la différence de fréquences $\omega_c = \omega_p - \omega_s$, qui sera uniquement traité ici, le passage à la somme étant trivial.

5.1.2.1 Propagation dans un milieu sans pertes

Le modèle le plus simple consiste à décrire la propagation d'ondes planes collinéaires suivant un axe (z) dans un milieu diélectrique, supposé sans absorption linéaire, de longueur L . Dans cette configuration, le tenseur de susceptibilité d'ordre 2 se réduit à :

$$\chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2, \omega_3) = \chi^{(2)}(\omega_2, \omega_1, -\omega_3) = \chi^{(2)}(\omega_3, \omega_1, -\omega_2) = \chi^{(2)} \quad (5.4)$$

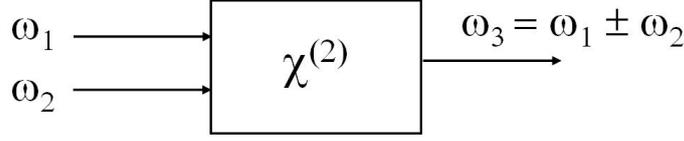


FIGURE 5.2 – Principe de la conversion de fréquences : génération d'un photon à la fréquence $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$.

Les champs considérés sont des ondes planes polarisées rectilignement qui peuvent s'écrire de manière générale sous la forme :

$$\mathbf{E}_j(z, t) = \frac{1}{2} \left(E_j(z) \mathbf{e}_j e^{-i(\omega_j t - k_j z)} + c.c. \right) \quad (5.5)$$

où j est un indice correspondant à l'un des trois champs 1, 2 ou 3 et \mathbf{e}_j le vecteur unitaire de polarisation du champ j . En pratique, il est très courant en optique non-linéaire de faire appel à l'approximation de l'enveloppe lentement variable à l'échelle de la longueur d'onde. Cela implique que $\frac{\partial^2 E_j}{\partial z^2} \ll \left| k_j \frac{\partial E_j}{\partial z} \right|$. Dans ce contexte, le système d'équation couplées décrivant l'évolution des trois champs s'écrit [Boyd 2008] [Yariv 1997] :

$$\frac{dE_1(z)}{dz} = i \frac{\omega_1}{2n_1 c} \chi^{(2)} E_3(z) E_2(z) e^{i\Delta k z} \quad (5.6a)$$

$$\frac{dE_2(z)}{dz} = i \frac{\omega_2}{2n_2 c} \chi^{(2)} E_1(z) E_3^*(z) e^{-i\Delta k z} \quad (5.6b)$$

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = i \frac{\omega_3}{2n_3 c} \chi^{(2)} E_1(z) E_2^*(z) e^{-i\Delta k z} \quad (5.6c)$$

où $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$ est le désaccord de phase. Ce paramètre est très important et conditionne l'efficacité du mélange d'ondes (voir section 5.1.2.3).

Efficacité de conversion Expérimentalement, il est possible d'évaluer la valeur de la susceptibilité non-linéaire en mesurant l'efficacité de conversion, i.e. quelle portion de l'onde ω_1 est convertie en ω_3 . De manière générale, la résolution du système d'équations couplées mène à la relation suivante pour l'efficacité de conversion η dans le cas du processus menant à $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ [Rosencher 2002] [Sutherland 2003] :

$$\eta = \frac{P_3}{P_1} = \eta_0 \frac{\sin^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2} \right)^2} \quad (5.7)$$

avec

$$\eta_0 = \frac{4\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 I_2}{\varepsilon_0 n_1 n_2 n_3 \lambda_3^2} \quad (5.8)$$

où P_j est la puissance optique associée aux champ d'indice 1, 2 et 3, L la longueur du milieu, I_2 l'intensité de l'onde à la fréquence ω_2 . Notons que l'efficacité est proportionnelle à l'intensité (ou la puissance) de l'onde ω_2 , ce point est important et sera abordé dans la section 5.4.

5.1.2.2 Propagation dans un milieu avec absorption linéaire

Dans le cas où les ondes impliquées dans le processus traversent un milieu absorbant pour chaque champ, un terme doit être ajouté dans chaque équation du système couplé et s'écrit sous la forme [Yariv 1997] :

$$\frac{dE_1(z)}{dz} = -\frac{1}{2}\alpha_1 E_1(z) + i\frac{\omega_1}{2n_1c}\chi^{(2)} E_3(z)E_2(z)e^{i\Delta kz} \quad (5.9a)$$

$$\frac{dE_2(z)}{dz} = -\frac{1}{2}\alpha_2 E_2(z) + i\frac{\omega_2}{2n_2c}\chi^{(2)} E_1(z)E_3^*(z)e^{-i\Delta kz} \quad (5.9b)$$

$$\frac{dE_3(z)}{dz} = -\frac{1}{2}\alpha_3 E_3(z) + i\frac{\omega_3}{2n_3c}\chi^{(2)} E_1(z)E_2^*(z)e^{-i\Delta kz} \quad (5.9c)$$

où α_j sont les pertes liées à la traversée du milieu aux fréquences ω_j .

Efficacité de conversion Dans ce cas, après une fastidieuse résolution des équations précédentes, l'expression de l'efficacité de conversion devient [Sutherland 2003] :

$$\eta_c = \eta_0 e^{-(\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3)\frac{L}{2}} \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) + sh^2\left[(\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3)\frac{L}{4}\right]}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2 + [(\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3)\frac{L}{4}]^2} \quad (5.10)$$

5.1.2.3 Accord de phase

Pour bénéficier de la meilleure efficacité de conversion, lorsque les ondes se propagent dans le milieu non linéaire, elles doivent respecter la condition d'accord de phase qui s'écrit :

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 = 0 \quad (5.11)$$

ou sachant que $k_j = \frac{\omega_j}{c}n_j$:

$$n_1\omega_1 = n_2\omega_2 + n_3\omega_3 \quad (5.12)$$

En effet, lorsque Δk est nul, les ondes se propagent en phase et interfèrent constructivement. Dans ce cas, l'efficacité du mélange, dans un milieu sans perte dépend du carré de la longueur du milieu de propagation. Lorsque le terme Δk n'est pas nul, les ondes impliquées se déphasent en se propageant dans le milieu, au point d'interférer destructivement. Dans ce cas, une longueur optimale d'interaction peut être définie au-delà de laquelle le mélange est fortement atténué. Cette longueur caractéristique est souvent appelée longueur de cohérence de phase, et se calcule comme :

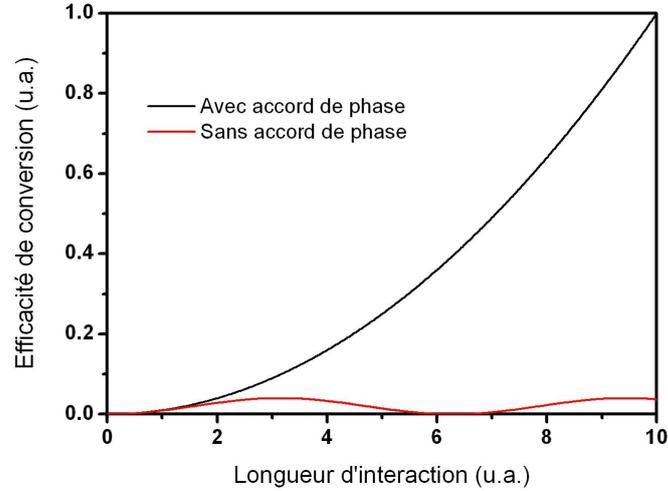


FIGURE 5.3 – Allure de l’efficacité de conversion en fonction de la longueur d’interaction dans le cas avec accord de phase (en noir) et sans accord de phase (en rouge).

$$L_C = \left| \frac{\pi}{\Delta k} \right| \quad (5.13)$$

La figure 5.3 donne l’exemple de l’allure du rendement de conversion en fonction de la longueur d’interaction dans le cas où la condition d’accord de phase est respectée (en noir) et dans le où elle n’est pas respectée (en rouge).

5.1.3 Susceptibilité non linéaire d’ordre 2

L’expression de la susceptibilité d’ordre 2 peut se calculer à l’aide du formalisme quantique de la matrice densité [Boyd 2008]. Ce formalisme est tout à fait adapté lorsqu’il faut considérer ce type d’interaction avec des atomes ou des puits quantiques, dans lesquels la population des niveaux d’énergie et les effets de résonance avec une onde électromagnétique vont considérablement influencer le $\chi^{(2)}$. L’expression générale du $\chi^{(2)}$ est assez complexe. Aussi, son expression sera restreinte aux cas de figures intéressants pour les études réalisées, à savoir le cas résonant dans un système à trois niveaux. Dans l’étude présentée par la suite, le mélange d’ondes est réalisé via une excitation proche-IR résonante interbande avec des états confinés dans les puits quantiques d’un LCQ. La figure 5.4 précise la configuration pour l’expression du $\chi^{(2)}$.

L’expression du $\chi^{(2)}$ dans cette configuration est donné par [Boyd 2008] :

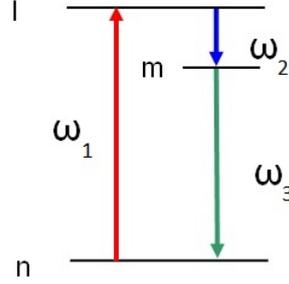


FIGURE 5.4 – Schéma de la configuration résonante. Une pompe excite de manière résonante la transition nl conjointement avec l'onde signal résonante avec la transition lm . Une onde complémentaire est alors générée correspondant à l'énergie de la transition mn .

$$\chi^{(2)}(\omega_c = \omega_p - \omega_s) = \frac{Ne^3}{\hbar^2 \epsilon_0} \sum_l \sum_m \frac{z_{nl} z_{lm} z_{mn}}{\omega_c - \omega_{nm} + i\Gamma_{nm}} \left(\frac{\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}}{\omega_p - \omega_{nl} + i\Gamma_{nl}} + \frac{\rho_{ll}^{(0)} - \rho_{mm}^{(0)}}{\omega_s - \omega_{lm} + i\Gamma_{lm}} \right) \quad (5.14)$$

où N est densité électronique, e la charge élémentaire, $z_{ij} = \langle i | \mathbf{r} | j \rangle$ l'élément de matrice dipolaire où \mathbf{r} est l'opérateur position, Γ_{ij} l'élargissement homogène et $\rho_{ii}^{(0)} - \rho_{jj}^{(0)}$ la différence de population entre le niveau i et j .

A titre d'exemple, dans le GaAs massif, réputé pour être un matériau fortement non linéaire, le $\chi^{(2)}$ est de l'ordre de 100 pm/V, alors qu'il peut atteindre, par exemple, 10^5 pm/V dans un LCQ moyen-IR lorsque le processus est résonant avec des transitions intersousbandes [Belkin 2007].

5.1.4 Processus d'ordre trois

Bien que les études dans cette thèse considèrent une interaction non-linéaire d'ordre deux impliquant trois ondes, les études concernant les processus du troisième ordre sont également très nombreuses et de natures très variées. Tout comme le cas du deuxième ordre, il est possible de réaliser du mélange d'onde, mais impliquant quatre ondes. Les possibilités de mélange sont alors très étendues, puisque toutes les combinaisons sont a priori réalisables. L'une des plus classique consiste à la génération de troisième harmonique tel que $\omega = 3\omega_2$. De même, ces interactions sont exaltées dans des puits quantiques et lorsqu'elles sont résonantes. Par exemple, Sirtori et al. ont utilisé ce processus introduit de manière résonante avec des transitions intersousbandes dans des puits quantiques couplés dans la gamme du moyen-IR [Sirtori 1992]. Autre exemple, la mise en évidence de l'absorption à deux photons dans les semiconducteurs, caractéristiques d'un processus d'ordre a été dé-

montré par Bechtel et al. [Bechtel 1976]. Plus récemment, au LPA, Diederichs et al. ont démontré la possibilité d'obtenir un régime d'oscillation paramétrique optique en microcavité, s'appuyant sur un mélange à quatre ondes [Diederichs 2006].

5.2 Etat de l'art

L'étude des propriétés non-linéaires dans les semiconducteurs et plus particulièrement dans les hétérostructures est devenue rapidement d'un grand intérêt depuis la mise en évidence de susceptibilités d'ordre deux 10 à 100 fois supérieures aux semiconducteurs massifs par Gurnick et DeTemple en 1983 [Gurnick 1983]. Notre étude porte sur la génération de la différence et de la somme de fréquences entre un faisceau proche-IR et un faisceau THz dans un LCQ. Aussi, l'état de l'art se focalise sur les travaux réalisés dans ce cadre, i.e. une interaction associant transitions interbandes et éventuellement intersousbandes. Cependant, il sera également fait mention des travaux réalisés combinant optique non-linéaire et LCQ.

Un point important doit être souligné ici. Si les non-linéarités issues de transitions intersousbandes uniquement ont fait l'objet de nombreux sujets d'étude et sont généralement bien établies théoriquement, les non-linéarités résonantes interbandes dans les puits quantiques sont beaucoup plus délicates à comprendre et plus complexes à modéliser. Ce point a été d'abord soulevé par Khurgin en 1987 [Khurgin 1987], et synthétisé par la suite dans la référence [Garmire 1999]. L'un des principaux problèmes soulevés par Khurgin pour ce type de non-linéarité, est qu'il n'est a priori pas possible d'identifier clairement un état fondamental pour ce type de transition, et que toutes les contributions virtuelles bande à bande doivent être incluses dans le calcul de la susceptibilité non-linéaire. En s'intéressant à la littérature sur le sujet, il ressort une assez grande disparité dans les estimations, expérimentales ou théoriques, pour ce type de non-linéarités.

Au-delà de cette complexité physique, l'intérêt de tels travaux repose sur l'utilisation conjointe de transitions interbandes et intrabandes qui possèdent une grande susceptibilité non-linéaire en raison des dipôles importants, et de plus l'effet de résonance permet l'exaltation du processus non-linéaire. Cela permet a priori de réaliser de la conversion de fréquence optiques avec une grande efficacité.

L'état de l'art qui suit présente principalement quatre articles, qui illustrent quelques exemples de mélange d'ondes impliquant un faisceau proche-IR et THz. Une distinction est faite entre l'utilisation d'une source THz externe et les premiers travaux avec une source THz (ou moyen-IR) contenue dans le milieu non-linéaire, le LCQ.

5.2.1 Conversion de fréquences avec source THz externe

5.2.1.1 Génération par magnéto-excitons confinés

Une technique pour réaliser ce type de conversion de fréquences a été montrée pour la première fois par Kono et al. en 1997 [Kono 1997]. Dans cette étude, un faisceau proche infrarouge issu d'un laser Ti:Sa est injecté dans un matériau constitué d'une série de puits quantiques GaAs/AlGaAs refroidis à 4K et accordé de manière résonante avec les transitions excitoniques du matériau. La source THz employée est un laser à électron libre capable de délivrer des puissances crêtes de l'ordre de 20 kW. Les deux faisceaux sont injectés de manière colinéaire. Les auteurs observent l'apparition de raies dans le proche-IR aux fréquences $\omega_{NIR} \pm 2n\omega_{THz}$ ($n=1, 2, 3, \dots$). Ils démontrent que cette génération séparée par l'énergie de deux photons THz (de 3.4 THz) est liée à un processus non-linéaire du troisième ordre ($\chi^{(3)}$) impliquant un photon proche-IR (780 nm) et deux photons THz. (En effet, une génération à $\omega_{NIR} \pm n\omega_{THz}$ est plutôt liée à un processus d'ordre deux). Les auteurs montrent qu'en appliquant un champ magnétique dans la direction de l'axe de croissance et parallèlement aux faisceaux, et en faisant varier son intensité, il est possible d'étudier l'évolution des niveaux excitoniques dans la structure. La figure 5.5 présentent des résultats issus de l'article de cette équipe pour un champ magnétique de 10 T et une fréquence de 3.4 THz (115 cm^{-1}). Les auteurs observent la génération de la somme (*Up conversion*) et de la différence (*Down conversion*).

La figure 5.6 présente plus en détail l'origine des résonances observées dans ce travail. A gauche est représenté l'évolution de la raie générée à $+2\omega_{THz}$ en fonction du champ magnétique appliqué. Dans ce cas, trois résonances sont mesurées, notées (a), (b) et (c). Ces résonances sont corrélées à des transitions magnéto-excitoniques liées à l'apparition de résonances cyclotrons sous l'effet du champ magnétique.

Les auteurs montrent que l'efficacité la plus importante est obtenue pour la génération de la différence et est de l'ordre de 0.05 % du fondamental.

Depuis cette étude, différentes équipes se sont intéressés à développer des dispositifs pour permettre ce type de mélange d'ondes. De nombreux travaux se sont intéressés aux résonances liées à des niveaux excitoniques dans les puits quantiques [Phillips 1999] [Maslov 2000]. Ces derniers montrent en l'occurrence la présence de raie du premier ordre, i.e. séparées par l'énergie d'un photon THz impliquant un processus d'ordre deux, permis par des puits quantiques asymétriques ou sous un champ électrique. D'un point de vue plus théorique, la génération de telles raies a également été présentée dans les microcavités de semiconducteurs [Citrin 1999] ou les amplificateurs optiques [Citrin 2001].

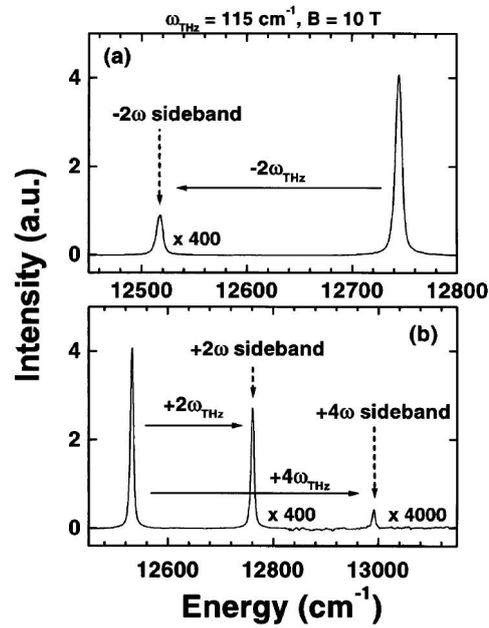


FIGURE 5.5 – Spectres des raies typiques générées à $B = 10 \text{ T}$ et 115 cm^{-1} . (a) : Génération de la différence. (b) : Génération de la somme. Figures issues de [Kono 1997].

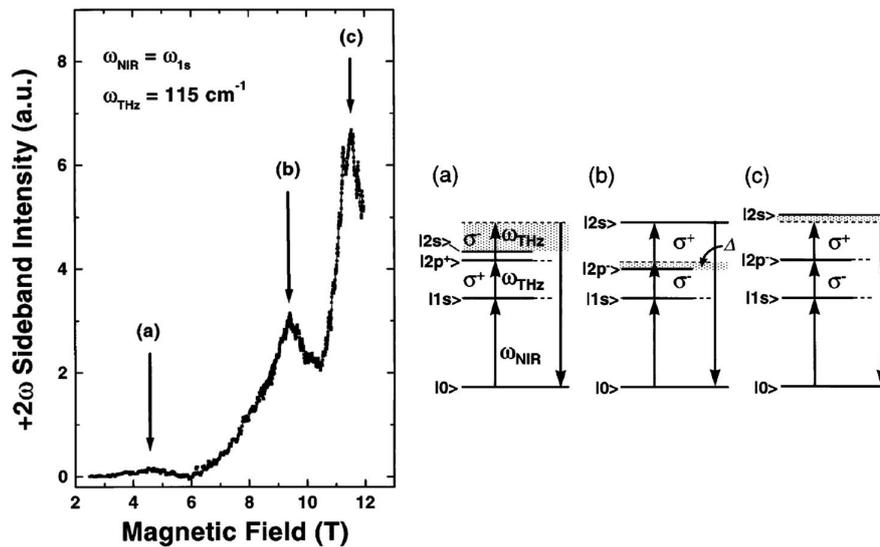


FIGURE 5.6 – **A gauche** : Evolution de l'intensité de la raie générée à $+2\omega_{THz}$ en fonction du champ magnétique appliqué. **A droite** : Diagramme représentant la configuration des résonances observées.

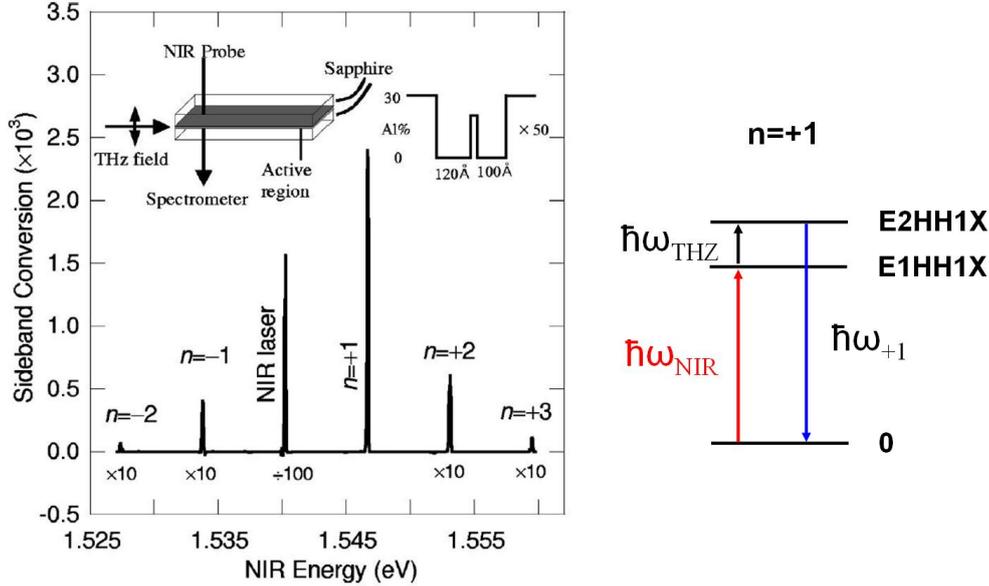


FIGURE 5.7 – Spectres en transmission des raies générées à 20 K avec un laser à électrons libres à 1.5 THz. Sont présentées également la géométrie de l'expérience et la structure de bande utilisée pour l'échantillon et la configuration de la résonance liée à la raie notée $n=+1$. Figure issue de [Carter 2003].

5.2.1.2 Conversion à température ambiante

Plus récemment, Carter et al. ont montré la génération de fréquences à $\omega_{NIR} \pm n\omega_{THz}$ dans une configuration proche du travail précédent [Carter 2003]. L'échantillon étudié consiste en une succession de puits quantiques asymétriques couplés en GaAs/AlGaAs. L'utilisation de puits asymétriques permet de briser la symétrie d'inversion et permet une interaction du second ordre et ainsi la génération de raies avec n impair (contrairement au travail précédent). Le faisceau proche-IR (810 nm) issu d'un laser continu Ti:Sa est en incidence parallèle à l'axe de croissance. Le faisceau THz provient d'un laser à électrons libres et est injecté parallèlement aux couches avec une polarisation rectiligne orientée selon l'axe de croissance. Les deux faisceaux sont accordés de façon à être en résonance avec des transitions excitoniques dans la structure permettant une forte interaction non-linéaire. La figure 5.7 présente la disposition expérimentale et les spectres obtenus par les auteurs. Des raies liées à la génération de la différence de fréquences jusqu'à $n=-2$ et de la somme jusqu'à $n=+3$ sont observées. Un diagramme schématise la résonance correspondant à la raie $n=+1$ qui implique une résonance de le faisceau proche-IR avec l'état noté E1HHX (niveaux excitoniques associant un électron dans l'état le plus bas des puits avec un trou lourd) et du faisceau THz avec une transition E1HH1X-E2HH1X.

Les auteurs observent également la conversion jusqu'à température ambiante

(avec une très faible efficacité). L'efficacité de conversion la plus élevée est pour la génération de la somme $n=+1$ à basse température (4 K), où elle vaut 0.2 %. Plus récemment, cette équipe a poussé plus cette étude en montrant l'effet du dopage n des puits sur la génération de cette somme et différence de fréquences. Sans dopage, les résonances sont attribuées à des états excitoniques tandis qu'avec dopage, les résonances sont observées avec les sousbandes de la bande de conduction [Carter 2005].

Les précédents travaux présentent un important inconvénient technologique à savoir l'utilisation d'un laser à électrons libres comme source THz. Cela rend inenvisageable en tant que tel une application directe. Pour palier à ce problème, des travaux se sont tournés vers l'utilisation de LCQ à la fois comme milieu non-linéaire pour la conversion et source THz.

5.2.2 Conversion de fréquences avec un LCQ

Depuis l'émergence des LCQ en 1994, les propriétés non linéaires de ceux-ci ont été étudiées, notamment la possibilité de réaliser des dispositifs capables d'émettre à des longueurs d'onde difficile d'accès. Les premiers travaux dans ce domaine ont été réalisés dans des LCQ moyen-IR optimisés pour avoir des non-linéarités intersousbandes permettant la génération de seconde harmonique ou la génération de la somme de deux fréquences pour générer des ondes quasi proche-IR [Owschimikow 2003]. Plus récemment, le processus réciproque a été utilisé afin de générer une onde dans la gamme THz toujours par le biais d'un LCQ moyen-IR [Belkin 2007]. Ces études (parmi d'autres) montrent l'intérêt d'utiliser un LCQ pour l'optique non-linéaire. Cependant, ces travaux ne concernent que le mélange d'ondes moyen-IR et implique uniquement des transitions intersousbandes. Peu de travaux considèrent une interaction non-linéaire entre la fréquence d'émission du LCQ et une onde proche-IR, alors que ce dispositif est compact et peut permettre d'obtenir des susceptibilités élevées. Dans la suite nous présentons les seuls travaux associant un LCQ pour obtenir un mélange d'onde entre un faisceau proche-IR et la fréquence d'émission du LCQ.

5.2.2.1 Interaction interbande résonante avec un LCQ moyen infrarouge

Dans cet article, un LCQ émettant dans le moyen-IR ($\lambda \sim 9 \mu\text{m}$) est utilisé pour la première fois pour réaliser un mélange d'onde entre une pompe proche-IR et l'émission du LCQ s'appuyant sur une non-linéarité résonante interbande [Zervos 2006], et plus particulièrement la génération de la somme des fréquences. Pour parvenir à effectuer ce mélange, un LCQ dont le contact supérieur métallique est gravé est utilisé pour le couplage du faisceau proche-IR. Celui-ci est accordé avec la bande interdite de la structure illumine la partie gravée du ruban laser sous un certain angle. La génération de la somme entre la fréquence du faisceau proche-IR et la fréquence du LCQ moyen-IR est collectée en sortie de la partie gravé en réflexion. Pour optimiser le système, la croissance du LCQ a été réalisée au dessus

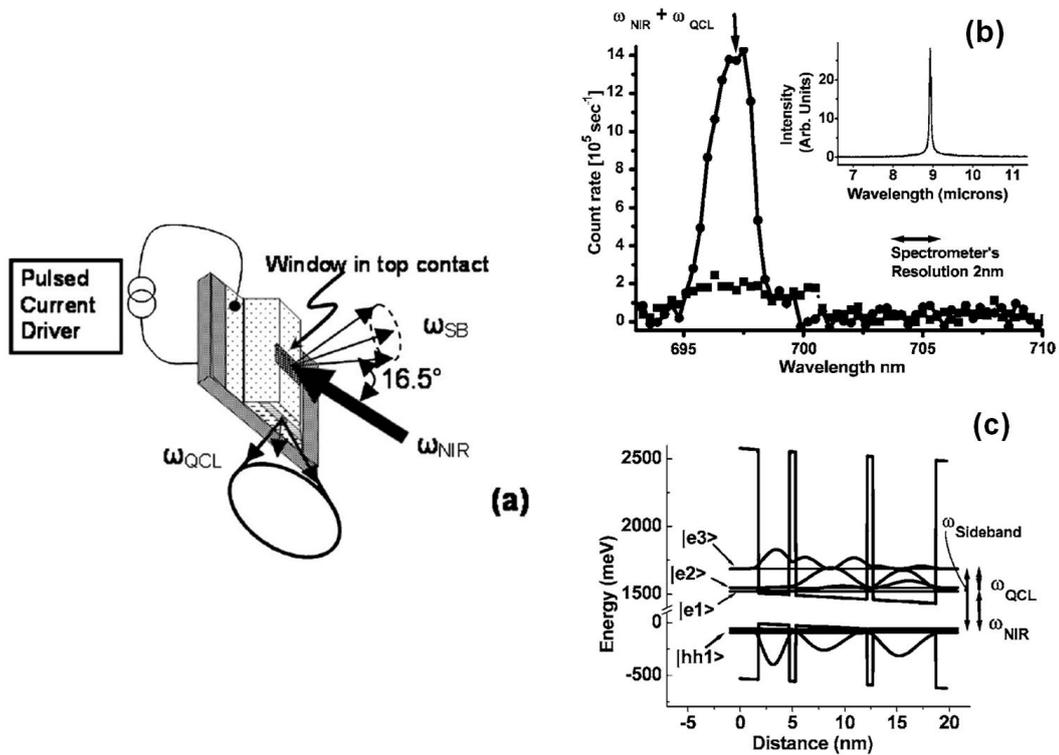


FIGURE 5.8 – (a) Schéma du dispositif de mélange de fréquences : un LCQ, dont la croissance est réalisée sur un réseau de Bragg, a son contact supérieur gravé pour permettre le couplage du faisceau proche-IR. L'onde générée est collectée en réflexion (b) Spectres avec LCQ allumé et éteint. c Diagramme représentant la configuration du mélange d'onde avec les états dans la structure et les résonances impliquées. Figures issues de [Zervos 2006].

d'un réflecteur de Bragg distribué permettant de réfléchir efficacement le rayonnement proche-IR. La figure 5.8 présente la géométrie de l'expérience, le dispositif expérimental, le spectre mesuré et la configuration liée à la résonance observée. L'effet de résonance, dans ce cas, implique une résonance de la pompe proche-IR avec la transition $|HH1\rangle \rightarrow |E1\rangle$ et une génération de la somme résonante avec la transition $|HH1\rangle \rightarrow |E3\rangle$, l'onde générée par le LCQ étant elle-même résonante avec la transition intersousbande $|E2\rangle \rightarrow |E3\rangle$.

Dans ce travail, seule la génération de la somme est observée et est très absorbée, car générée au-delà du gap. L'efficacité de conversion est estimée par les auteurs à environ 10^{-4} - 10^{-3} %.

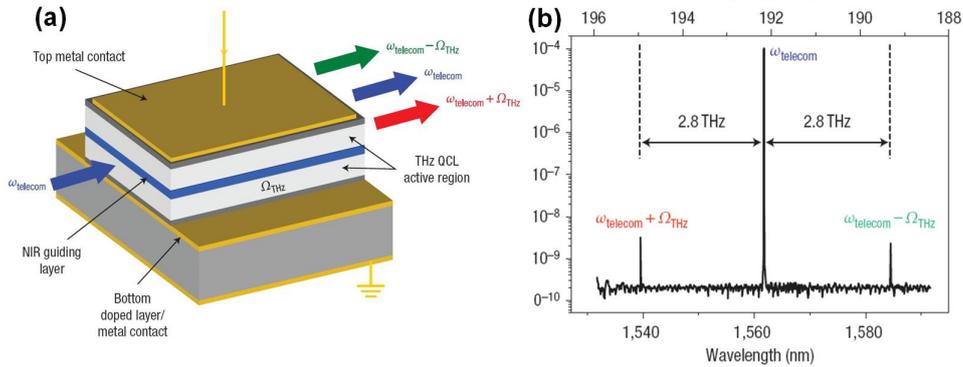


FIGURE 5.9 – (a) Un faisceau proche-IR à la fréquence $\omega_{telecom}$ est couplé dans un LCQ THz émettant à Ω_{THz} . L'interaction de ces ondes avec le milieu génère des raies à $\omega_{raies} = \omega_{telecom} \pm \Omega_{THz}$. (b) Spectre pour la génération à $1.56 \mu\text{m}$ montrant la génération des raies séparées du fondamental par la fréquence du LCQ. Figures issues de [Dhillon 2007].

5.2.2.2 Conversion de fréquences aux longueurs d'onde télécoms avec un LCQ THz

L'autre étude qui concerne le mélange d'onde entre une pompe proche-IR et l'émission propre d'un LCQ, est sur le principe, différente des études précédentes, car elle fait intervenir une non-linéarité du GaAs massif. Cette étude ne se place donc pas dans le cadre d'une non-linéarité résonante, mais présente un intérêt en ce qui concerne la géométrie utilisée pour l'interaction non-linéaire. Puis, pour la première fois, dans ce type d'étude, les questions d'accord de phase sont abordées.

Cette étude a été réalisée par Dhillon et al. en 2007 [Dhillon 2007]. Un LCQ THz est utilisé comme source de rayonnement. Le mélange réalisé est la génération de la différence et de la somme des fréquences entre une faisceau télécom ($\lambda=1.3 - 1.6 \mu\text{m}$) et la fréquence d'émission du LCQ THz. Un point important à souligner dans cet article est que l'interaction est accordée en phase pour ces fréquences grâce à la dispersion de l'indice induite par les phonons optiques dans le matériau. Le faisceau télécom est injecté par l'une des facettes du LCQ dans une géométrie colinéaire pour la propagation. Pour guider l'onde proche-IR dans cette géométrie, une couche de GaAs peu dopée est insérée lors de la croissance au sein de la région active. Cette couche constitue également le milieu non-linéaire. La figure 5.9 présente la géométrie de cette expérience et un spectre mettant en évidence la génération de la somme et de la différence de fréquences entre la pompe proche-IR et la fréquence d'émission du LCQ.

Dans cet article, les auteurs mesurent une efficacité de conversion de l'ordre de $10^{-3} \%$ ce qui semble faible, mais reste important compte tenu que l'interaction

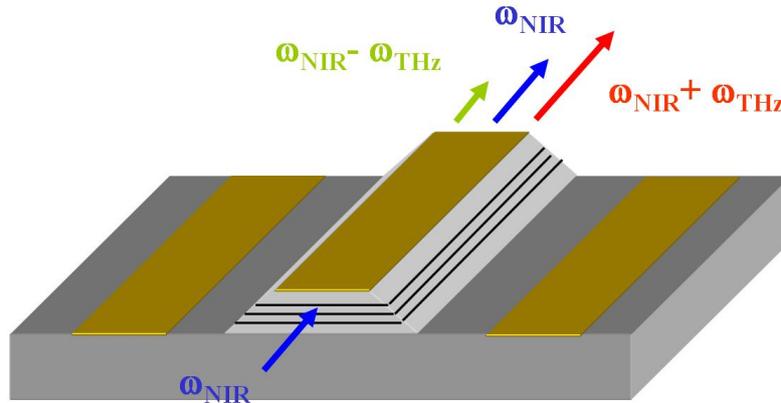


FIGURE 5.10 – Schéma du principe du mélange d'ondes avec un LCQ dans une géométrie colinéaire.

non-linéaire est liée au GaAs massif ($\chi^{(2)} \sim 100 \text{ pm/V}$), donc plus faible qu'une interaction résonante dans des puits quantique par exemple (en général de l'ordre de 10^4 - 10^5 pm/V).

5.2.3 Objectifs de ce travail

Au vu des travaux réalisés précédemment, le LCQ apparaît comme un dispositif intéressant pour réaliser un mélange d'onde entre un faisceau proche-IR et sa fréquence d'émission propre. Les LCQ présentent toutes les caractéristiques adéquates pour la manipulation de longueur d'onde. En effet, les densités de puissances intracavités de ces sources approchent celles utilisées avec un laser à électron libre lors des études mentionnées dans les paragraphes précédents ($> 10 \text{ kW/cm}^2$). Un faisceau externe peut alors être converti en une autre longueur d'onde décalée de la fréquence d'émission du LCQ tout en étant le siège d'une forte interaction non-linéaire tirant partie d'effets résonants.

L'objectif de notre travail est la mise en évidence expérimentale du procédé en couplant dans la cavité d'un LCQ THz un faisceau dont la longueur d'onde est résonante avec des transitions interbandes de la structure. L'expérience présente une géométrie colinéaire. Les ondes impliquées se propagent selon le même axe (parallèle au plan des couches). L'idée est d'obtenir un mélange efficace, en s'appuyant sur l'effet de résonance avec les transitions interbandes mais également parce que dans la cas de la génération de la différence des fréquences, l'onde générée, est de plus faible énergie et peu absorbée. La figure 5.10 présente la géométrie (colinéaire) de l'expérience. Un faisceau accordé avec la bande interdite du matériau est injecté via une des facettes. Le signal en sortie de l'autre facette peut contenir a priori la génération de la somme et de la différence des fréquences.

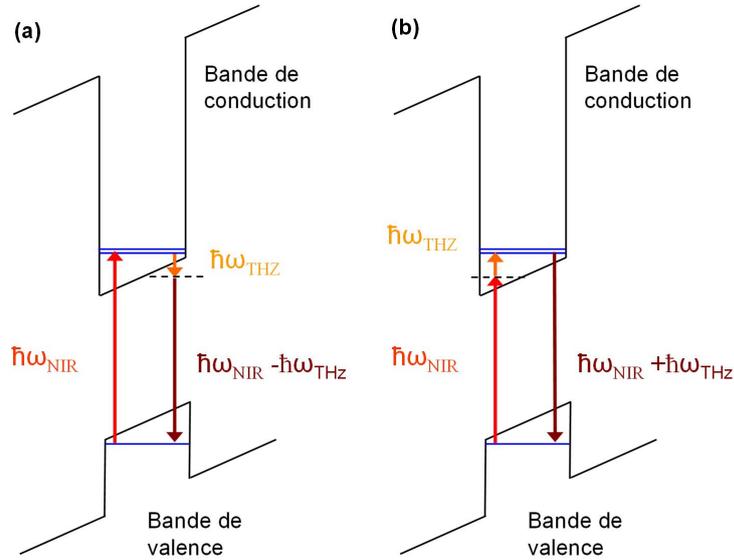


FIGURE 5.11 – (a) Principe de la génération de la différence de fréquences $\omega_{NIR} - \omega_{THz}$. (b) Principe de la génération de la somme de fréquences $\omega_{NIR} + \omega_{THz}$.

La figure 5.11 présente schématiquement le processus physique attendu. Dans le cas (a), une onde d'énergie $\hbar\omega_{NIR}$ excite une transition interbande dans un puits quantique pour générer une onde à la différence d'énergie $\hbar\omega_{NIR} - \hbar\omega_{THz}$ via un état virtuel (ligne pointillée). La pompe est alors absorbée alors que le signal généré ne l'est pas. Dans le cas (b), la pompe est d'énergie plus faible que la transition interbande. C'est alors la somme des fréquences $\hbar\omega_{NIR} + \hbar\omega_{THz}$ qui est générée. Dans ce cas, la pompe n'est pas absorbée alors que la raie générée l'est. Nous nous sommes essentiellement intéressés au cas (a) où la raie générée n'est pas absorbée ce qui conduit à une meilleure efficacité de conversion.

5.3 Montage expérimental

Cette partie décrit le montage expérimental permettant la mesure du spectre en sortie du LCQ. Nous avons réalisé deux types de montages pour cette expérience dépendant du type et des caractéristiques de l'échantillon utilisé. Les résultats présentés dans la section suivante concernent un LCQ "bound-to-continuum" (voir **chapitre 2**) à guide simple plasmon. Ce LCQ a pu être utilisé en régime continu grâce à un courant seuil faible rendant possible son refroidissement à basse température dans ce régime. Pour certains échantillons (brièvement présentés dans la suite) comme ceux reposant sur des mécanismes impliquant des phonons optiques, les puissances électriques en jeu ne permettent pas un refroidissement suffisant. L'expérience a donc été modifiée pour fonctionner en régime impulsionnel. Nous décrivons

les deux types de montages dans la suite.

5.3.1 Montage en alimentation continue

La figure 5.12 décrit le montage expérimental permettant la mesure du spectre dans la gamme proche-IR en sortie du LCQ. La pompe optique utilisée est issue d'un laser Ti:Sa continu accordable entre 750 et 950 nm de marque "Coherent". Le faisceau est couplé dans la cavité du LCQ grâce à une lentille asphérique de focale $f=11$ mm. Typiquement, la puissance utilisée est de $200 \mu\text{W}$. En revanche, il est assez difficile d'estimer la puissance effectivement couplée dans la cavité du LCQ.

Le faisceau en sortie du LCQ est collecté par un objectif de microscope et collimaté. Une fente de sélection spatiale est utilisée en sortie afin de s'affranchir de toute lumière parasite tel que des réflexions ou bien une partie éventuelle du faisceau non couplée dans la cavité. Une lentille focalise le faisceau sur la fente ajustable d'entrée d'un spectromètre. Le spectromètre est de marque "Princeton Instruments". Le spectromètre a une longueur focale de 750 mm. Trois types de réseaux sont utilisés permettant d'accéder à différentes résolutions : un réseau constitué de 300 l/mm blazé à 500 nm, un réseau de 1200 l/mm blazé à 750 nm et un réseau de 1800 l/mm blazé à 500 nm. Le détecteur utilisé est une caméra CCD refroidie thermoélectriquement fabriquée par D. Darson au LPA. La résolution maximale en longueur d'onde atteignable avec ce dispositif est de l'ordre de 3 pm soit environ $6 \mu\text{eV}$ en employant le réseau de 1800 l/mm. La technique d'acquisition avec la caméra CCD est détaillée dans le paragraphe suivant.

Le LCQ est placé sur le doigt froid d'un cryostat à flux d'hélium continu de marque "Janis Research" et est refroidi jusqu'à 10 K environ. Il est alimenté électriquement par un générateur de tension continu.

5.3.2 Montage en alimentation impulsionnelle

L'utilisation de LCQ ne fonctionnant pas en régime continu (ou demandant un trop forte puissance électrique empêchant une bonne dissipation thermique) nécessite de basculer vers une alimentation électrique en régime impulsionnel. Or, comme le mélange d'ondes n'existe que lorsque le LCQ est polarisé de façon à opérer en régime laser, la CCD (détecteur lent) va faire l'acquisition de la superposition du signal contenant la pompe et la raie générée (LCQ allumé) et de la pompe seule (LCQ éteint). Pour remédier à ce problème, le faisceau optique est modulé à l'aide d'un modulateur acousto-optique. La fréquence de modulation optique est alors synchronisée aux impulsions électriques de sorte que le faisceau proche-IR ne soit injecté dans la cavité du LCQ que pendant la durée où celui-ci est polarisé en régime laser. Ainsi, par exemple, pour une impulsion électrique modulée à 10 kHz avec un rapport cyclique de 50 %, le modulateur acousto-optique est modulé à la même fréquence et synchronisé. En moyenne, la caméra CCD reçoit un signal 50 % du temps donc

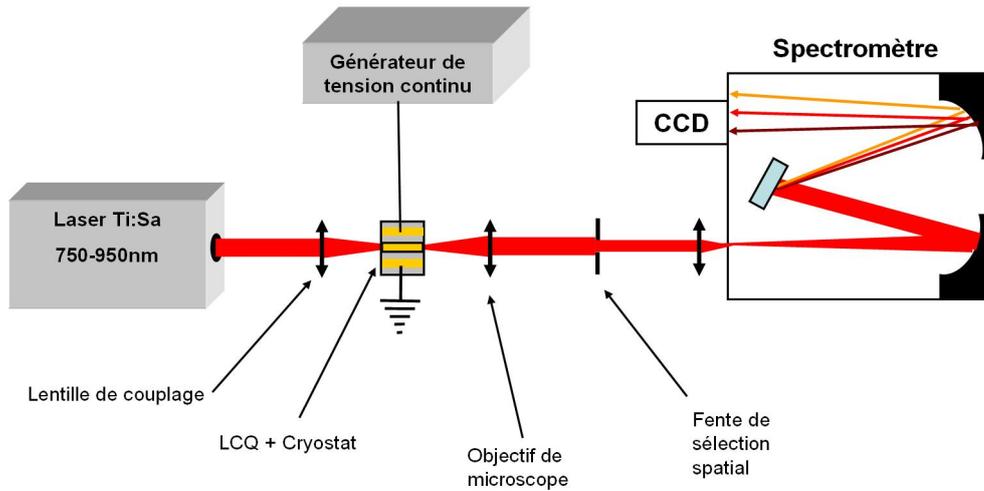


FIGURE 5.12 – Schéma de l'expérience pour le mélange de fréquence avec un LCQ alimenté en continu.

pour obtenir le même niveau d'intensité détecté, le temps de pose doit être doublé.

5.3.3 Technique d'acquisition des spectres

L'acquisition des spectres est effectuée au moyen d'une caméra CCD. Cette caméra est composée d'une puce CCD de marque SONY, plus précisément, le type de puce est appelé "Microlens Array Interline CCD". Ce type de puce repose sur une technologie à base de silicium. Elle est constituée d'une matrice de 1400x1000 pixels actifs d'une taille de 6 μm . L'efficacité quantique est de l'ordre de 55 % pour des longueurs d'onde autour de 800 nm et est optimisée grâce à un réseau de microlentilles disposé au dessus des pixels actifs permettant une meilleure collection de la lumière. La capacité des pixels est d'environ 16000 électrons avec un bruit RMS d'environ 7 électrons. Le dispositif est sous vide et refroidi par un module à effet Peltier à 2 étages permettant d'atteindre des températures de l'ordre de -40 °C. Cette caméra peut être utilisée de deux façon, dans un mode où l'image est d'une résolution faible et est rafraîchie avec un taux d'environ 5 images/s. Cela permet de procéder à l'alignement du montage en observant l'évolution en temps réel du spectre. L'autre mode permet l'acquisition d'un spectre avec une haute résolution (1400x1000) avec un temps de pose quelconque. Typiquement, pour les spectres présentés dans la suite de ce travail, le temps de pose est de l'ordre de 1.5 s. Cependant, toutes ces acquisitions conduisent à une image 2D dont l'axe horizontal correspond à l'énergie et l'axe vertical à une composante spatiale. L'axe des énergies a été calibré à l'aide d'une lampe spectrale dont les raies atomiques sont connues. La valeur de l'intensité reçue par chaque pixel est alors représentée en niveaux de gris. Pour exploiter les données, il est bien plus commode de tracer des profils d'intensité en fonction de l'énergie ou de la longueur d'onde.

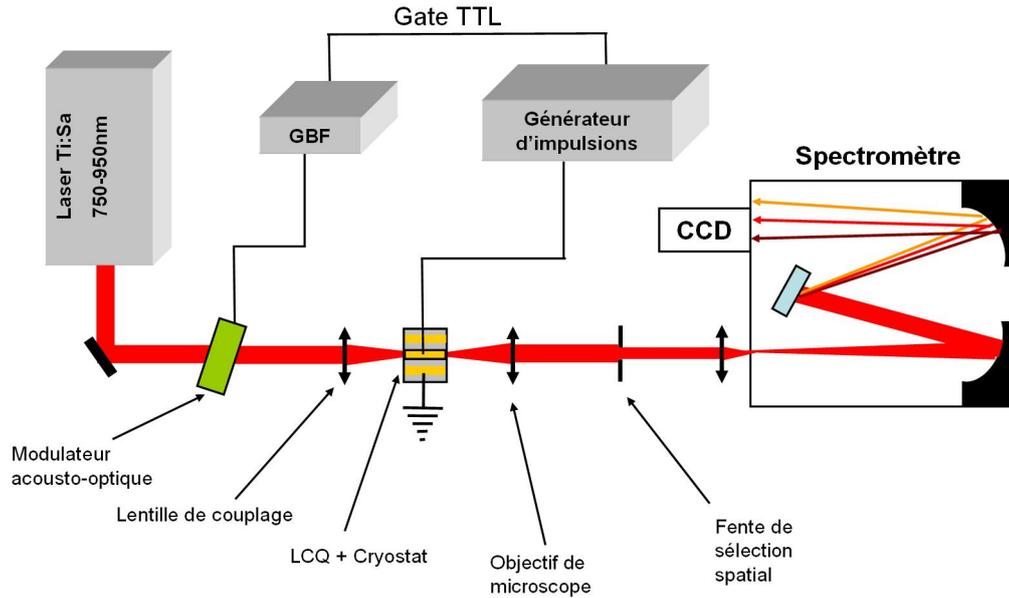


FIGURE 5.13 – Schéma de l'expérience pour le mélange de fréquence avec un LCQ alimenté en impulsions et faisceau de pompe modulé par un modulateur acousto-optique.

La figure 5.14 présente un exemple d'acquisition d'image 2D haute résolution représentant le spectre du laser de pompe utilisé dans l'expérience (a). Pour tracer le profil d'intensité en fonction de l'énergie, seul le nombre de lignes d'intérêt (ou l'intensité n'est pas nulle sur toute la ligne) est sélectionné. Un programme permet alors d'afficher le spectre. L'intensité $I(E)$ est une moyenne calculée sur le nombre de lignes i sélectionnées ($\langle I(E) \rangle = \frac{1}{i} \sum_i I_i(E)$). Le profil présenté en (c) est calculé à partir de l'image en (b) où l'intervalle dans lequel la moyenne est effectuée est séparé par deux lignes vertes.

5.3.4 Description de l'échantillon étudié

Les résultats présentés en section 5.4 sont issus du LCQ ayant présenté les meilleures performances pour le mélange d'ondes. Cet échantillon à guide simple plasmon et reposant sur un dessin "bound-to-continuum" (voir chapitre 2) a été choisi car c'est celui, parmi les LCQ disponibles au laboratoire, qui présente les meilleures performances optiques. De plus, ce type de LCQ contient de nombreux états (minibandes) pouvant faciliter une interaction non-linéaire résonante. Ce LCQ émet à environ 2.7 THz et est référencé sous la nomenclature V193. L'échantillon est celui décrit par Barbieri et al. [Barbieri 2004]. Pour cette structure, l'épaisseur des couches est (en nm) à partir de la barrière d'injection : **3.8/14.0/0.6/9.0/**

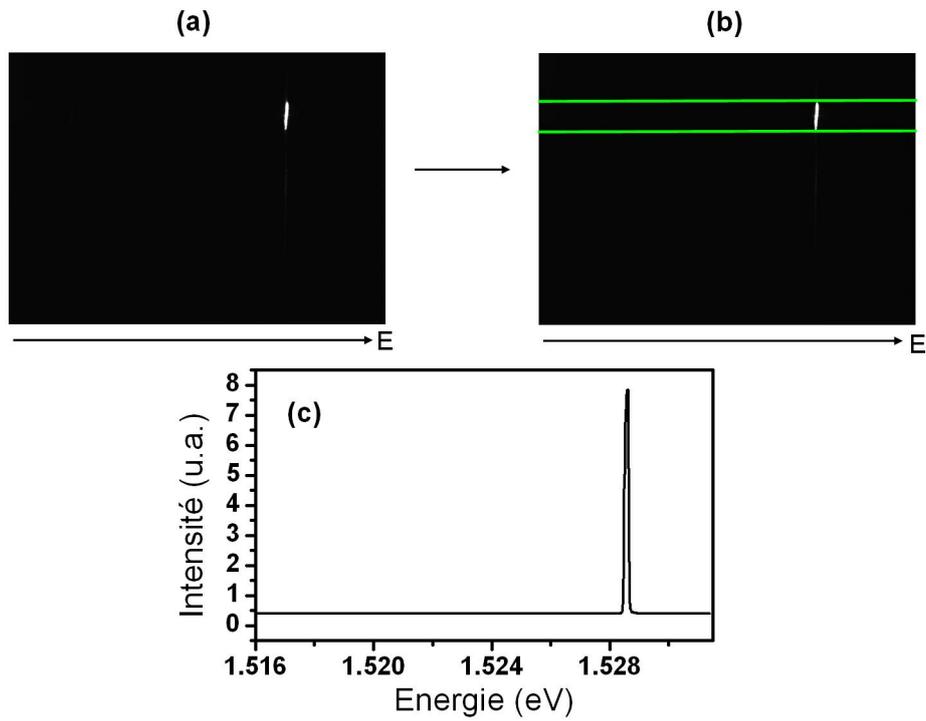


FIGURE 5.14 – (a) Acquisition 2D du spectre du faisceau de pompe. (b) Sélection sur l'image d'un intervalle (repéré par deux lignes vertes) d'intérêt pour le tracé d'un profil en intensité. (c) Spectre du faisceau de pompe obtenu en moyennant l'intensité sur le nombre de lignes sélectionnées

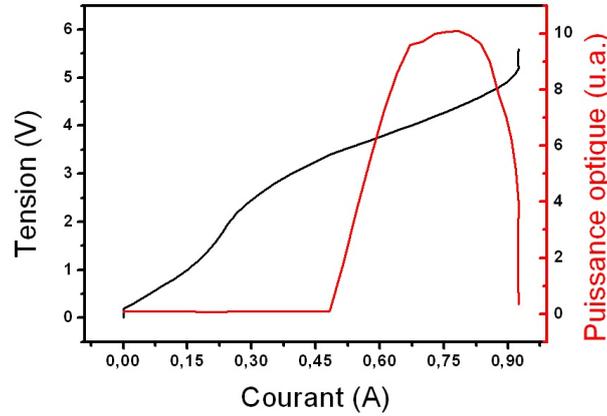


FIGURE 5.15 – Caractéristiques Lumière-Intensité-Voltage en régime continu de l'échantillon V193 pour un guide simple plasmon d'une largeur de $250 \mu\text{m}$ et d'une longueur de cavité de 1.5 mm . La courbe noire représente la tension en fonction du courant injecté dans la structure. La courbe rouge montre la puissance optique en fonction du courant.

0.6/15.8/1.5/12.8/ 1.8/12.2/ 2.0/12.0/ 2.0 /11.4/ 2.7/11.3/3.5/11.6. Les barrières en AlGaAs sont en gras et les couches soulignées sont dopées à hauteur de $1.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. La largeur du ruban laser est de $250 \mu\text{m}$ et la longueur de cavité choisie est de 1.5 mm . La figure 5.15 présente les caractéristiques L-I-V de cet échantillon en alimentation électrique continue pour une température de 10 K . Le seuil laser se situe à 480 mA (128 A/cm^2), le maximum de l'émission pour 780 mA (208 A/cm^2) et l'arrêt de l'action laser pour 925 mA (246 A/cm^2).

5.3.4.1 Guidage du mode infrarouge

Les modes guidés par la structure sont représentés en figure 5.16 pour le faisceau THz et le faisceau proche-IR polarisé TM. Cette simulation montre le profil du mode TM THz se propageant dans le guide simple plasmon. Ce mode présente une intensité qui décroît exponentiellement dans le substrat en GaAs. Le mode proche-IR est confiné entre la couche métallique supérieure et une couche en $\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ de 300 nm située entre la couche dopée inférieure et le substrat. L'utilisation de cette couche pour confiner le mode est nouveau car à l'origine, elle est utilisée pour la réalisation de LCQ à guide double métal. Cette couche possède un indice de réfraction plus faible que les matériaux qui l'entourent permettant ainsi le confinement de l'onde d'excitation ainsi que des ondes générées à la différence et somme des fréquences. Elle est nécessaire pour guider convenablement les modes proche-IR car les croissances réalisées dans le but de fabriquer des LCQ à guide simple plasmon ne contiennent pas cette couche.

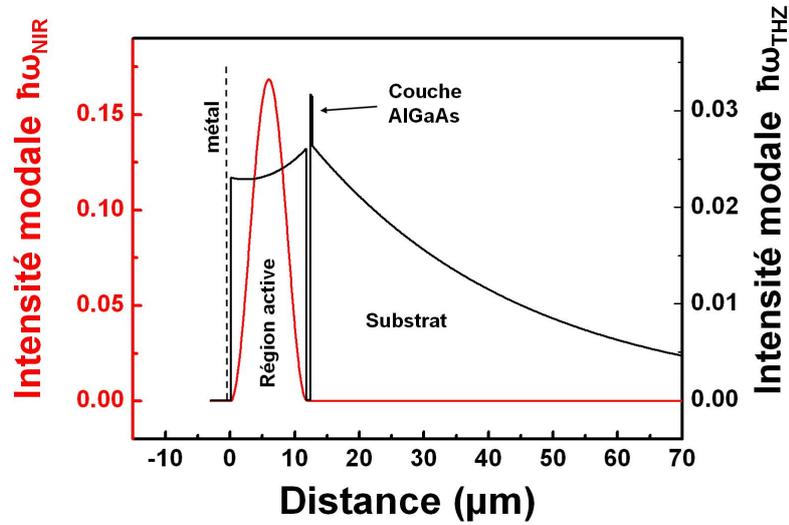


FIGURE 5.16 – Profil d'intensité des modes THz (en noir) et proche-IR (en rouge) dans l'échantillon. La couche métallique supérieure se situe en 0.

5.4 Résultats

Dans cette section, nous présentons les principaux résultats obtenus pour la conversion de fréquences avec un LCQ THz. Nous montrons expérimentalement plusieurs points :

1. La raie générée provient d'un mélange d'ondes entre la pompe proche-IR et le faisceau THz du LCQ.
2. La relation liant l'intensité de la raie générée à l'intensité de l'onde THz est linéaire (processus d'ordre deux).
3. La présence de résonances marquées.
4. L'efficacité de conversion peut atteindre 0.12 % à la résonance.
5. Le mélange d'ondes est issu de l'interaction avec les transitions interbandes dans les puits quantiques de la région active du LCQ.
6. La génération de la raie à la différence des fréquences s'effectue via un état virtuel.
7. Cette conversion de fréquences permet de mesurer le spectre d'émission d'un LCQ avec une très haute résolution.

5.4.1 Mise en évidence expérimentale

Ce paragraphe présente la première preuve expérimentale qu'un mélange d'ondes est permis uniquement lorsque le LCQ est en régime laser (émission d'une onde THz). Le dispositif expérimental utilisé est celui présenté en **5.2.4.1**.

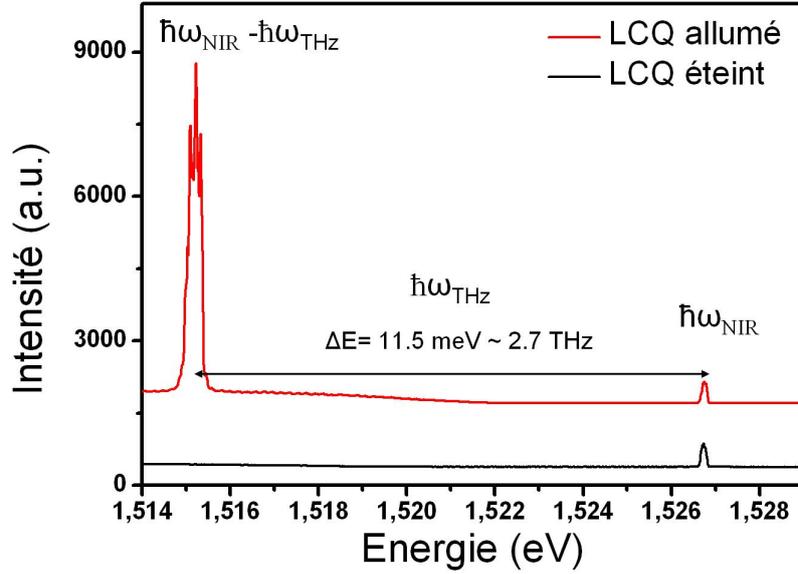


FIGURE 5.17 – Mise en évidence expérimentale de la génération de la différence de fréquences $\omega_{raie} = \omega_{pompe} - \omega_{THz}$. Le spectre mesuré avec une excitation proche-IR à 1.5267 eV transmise dans la cavité du LCQ éteint est tracé en noir. Le spectre réalisé dans les mêmes conditions avec le LCQ allumé est tracé en rouge.

La figure 5.17 montre les spectres obtenus dans le cas où la pompe est transmise à travers la cavité du LCQ lorsque celui-ci est éteint (en noir) puis lorsque celui-ci est opère en régime laser (en rouge). La pompe proche-IR polarisée TM (perpendiculairement au plan de couches), d'une puissance de 200 μW , est accordée à une énergie de 1.527 eV (812 nm), soit au-delà de la transition électrons/trous de plus basse énergie (estimé à 1.522 eV). Lorsque le LCQ est éteint seule la pompe transmise est observée. Lorsque le LCQ est polarisé, le comportement change radicalement, la pompe est toujours observée et une raie de forte intensité apparaît à une énergie de 1.5152 eV (818.4 nm), soit tel que $E_{raie} = E_{pompe} - E_{THz}$. En effet, la différence d'énergie entre le fondamental et la raie générée correspond à une fréquence de 2.7 THz, soit la fréquence d'émission du LCQ. Cela correspond bien à la génération de la différence de fréquences et à la configuration représentée en figure 5.11(a).

Il est également possible de générer la somme des fréquences tel que $E_{raie} = E_{pompe} + E_{THz}$ (voir figure 5.11 (b)). La figure 5.18 présente le cas particulier où la génération de la somme et de la différence des fréquences sont observées simultanément pour une énergie d'excitation de 1.520 eV environ qui est hors résonance. De manière générale, la somme est difficilement mesurable car pour cela l'énergie de la pompe proche-IR doit être accordée sous le gap de la structure, impliquant une faible absorption de celle-ci et donc une saturation rapide du détecteur CCD utilisé.

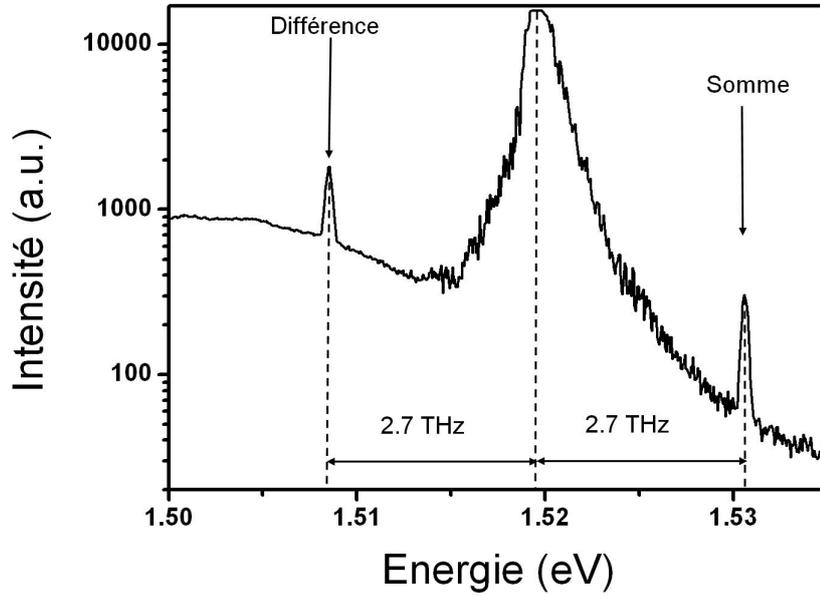


FIGURE 5.18 – Mise en évidence expérimentale simultanée de la génération de la somme et de la différence de fréquences. Le spectre mesuré avec une excitation proche-IR à 1.520eV

5.4.2 Influence du courant injecté dans le LCQ

Une preuve supplémentaire peut être établie pour montrer que les raies observées sont belles et bien issues du mélange d'ondes entre le faisceau proche-IR et les photons THz dans la cavité. Pour cela, l'évolution de l'intensité de la raie générée à la différence des fréquences est étudiée en fonction du courant injecté dans le LCQ. Faire varier le courant dans cette structure revient à faire varier la puissance du faisceau THz.

La figure 5.19 (a) montre la caractéristique L-I-V déjà présentée en figure 5.15 à laquelle est superposée l'intensité de la raie générée en fonction du courant (en vert). L'apparition de la raie générée coïncide bien avec le seuil d'action laser autour de 480 mA et la raie disparaît lorsque l'action laser prend fin (925 mA). L'allure des deux courbes est assez similaire et la relation entre l'intensité de la raie et la puissance optique du LCQ est linéaire (voir 5.19 (b)) cela conforte l'hypothèse d'un processus d'ordre deux dont l'efficacité se calcule avec la relation 5.10. Bien qu'en très bon accord, le petit décalage observé, peut être attribué à un léger déplacement de l'alignement lors de la série de mesures.

Des mesures étudiant l'évolution de la caractéristiques L-I-V montrent que pour les faibles puissances de pompe utilisées ($\sim 200 \mu\text{W}$) le fonctionnement du LCQ

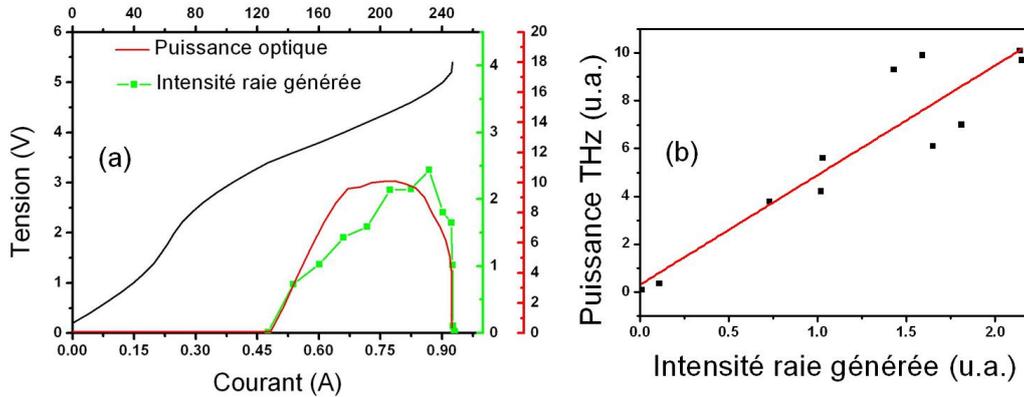


FIGURE 5.19 – (a) Caractéristiques L-I-V et intensité de la raie générée à la différence des fréquences. La courbe I-V est représentée en noir. La courbe de puissance optique THz du LCQ en rouge et l'intensité de la raie en fonction du courant en vert. (b) Intensité de la raie générée en fonction de la puissance THz du LCQ.

n'est pas altéré.

5.4.3 Influence de l'énergie d'excitation

Etudier l'évolution de la raie générée en fonction de l'énergie du faisceau de pompe permet de révéler de précieuses informations sur la nature de l'interaction. La figure 5.20 montre différents spectres mesurés pour une pompe (partie bleue du graphe) dont l'énergie est ajustée entre 1.522 eV (814.7 nm) et 1.533 eV (808.8 nm), intervalle d'énergie hors duquel aucune raie n'est observée. Pour ces mesures le LCQ est polarisé de façon à fournir la plus grande intensité de la raie générée, ce qui correspond au maximum de puissance du LCQ. Sur le graphe la pompe est normalisée à 1.

Plusieurs faits sont notables. Tout d'abord, deux résonances sont observées à environ 1.515 eV et 1.519 eV confortant l'idée d'une interaction non-linéaire exaltée par l'effet de résonance. Puis, chaque couple de raies (pompe ; raie générée) présente une différence d'énergie égale à l'émission du LCQ, soit 2.7 THz.

L'efficacité "apparente", i.e. le ratio entre l'intensité de la raie générée et de la pompe proche-IR, est très importante. Par exemple, en considérant la raie de maximale intensité à 1.515 eV. Le ratio entre le maximum de l'intensité de la pompe (normalisée) et de la raie générée est de 14. Cela est causé par la forte absorption de la pompe d'énergie plus élevée que le gap. L'efficacité "réelle" se calcule comme le ratio entre la puissance de la raie générée et la puissance du faisceau de pompe couplé dans la cavité du LCQ (voir section 5.4.4).

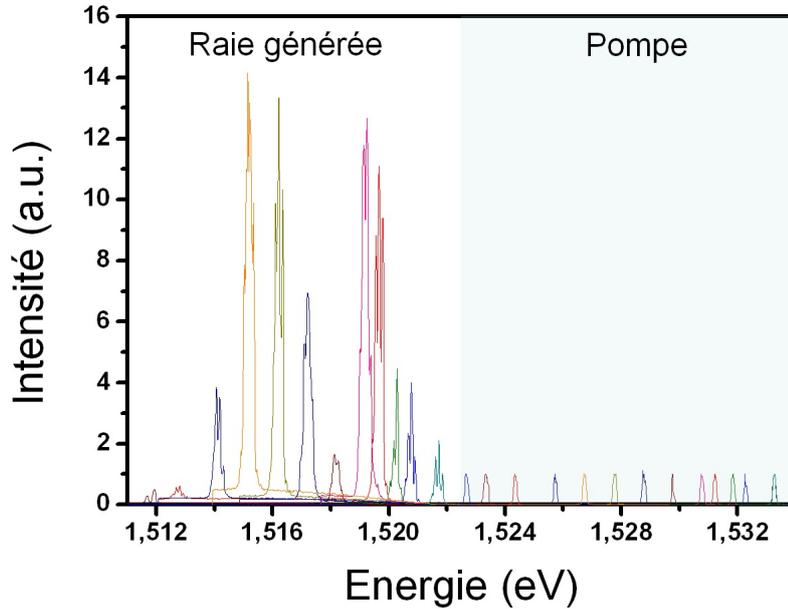


FIGURE 5.20 – Spectres pour différentes énergies de la pompe proche-IR. L’intensité de la pompe est normalisée à 1.

5.4.4 Efficacité de conversion

Pour calculer l’efficacité de conversion, il faut faire le rapport entre la puissance de l’onde générée et de l’onde de pompe couplée dans la cavité. En effet, toute la puissance incidente du faisceau de pompe n’est pas couplée dans le guide d’onde en raison de la réflexion à l’interface, mais également par ce que la section transverse du guide d’onde est petite ($10\ \mu\text{m}$ verticalement). L’efficacité est calculée en prenant le ratio de l’intensité intégrée détectée sur la caméra CCD des raies générées et de pompe. Pour déterminer la part du faisceau de pompe couplée dans le guide d’onde, le faisceau est accordée à une énergie plus faible que le gap (les pertes sont alors supposées quasi-nulles) et son intensité est mesurée sur la CCD.

La figure 5.21 présente l’efficacité calculée par cette méthode, des fits gaussiens ont été ajoutés montrant que la largeur des résonances est de l’ordre de 2 meV. L’efficacité de la conversion de fréquence est d’environ 0.12 % pour la résonance située à 1.531 eV.

5.4.5 Influence de la polarisation du faisceau de pompe

Dans toutes les mesures précédentes, la polarisation choisie est transverse magnétique (TM) tout comme celle du faisceau THz, i.e. perpendiculaire aux couches constituant la région active. Les mesures présentées ici ont été réalisées pour des polarisations du faisceau de pompe TM et TE (transverse électrique, soit parallèle

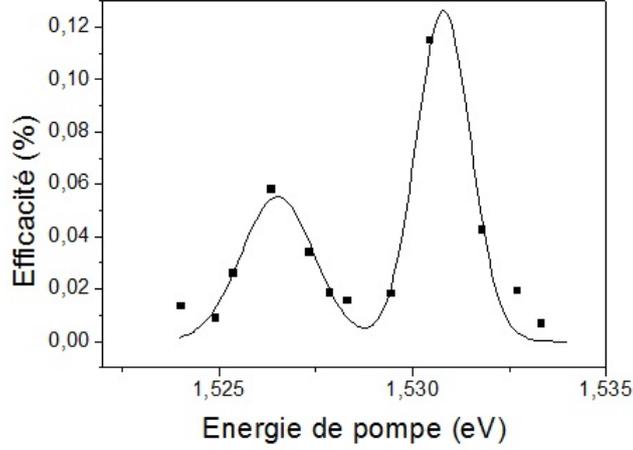


FIGURE 5.21 – Efficacité de conversion en fonction de l'énergie d'excitation calculée comme le rapport des intensités intégrées de la raie générée et l'intensité de la pompe couplée dans la cavité du LCQ. Les lignes représentent un fit gaussien des résonances.

au plan des couches). En changeant la polarisation du faisceau de pompe de TM à TE, en théorie, les règles de sélections sont différentes et des transitions interbandes différentes sont alors excitées. Cela permet de confirmer que le processus non-linéaire permettant le mélange d'ondes fait intervenir des transitions interbandes dans les puits quantiques du LCQ.

5.4.5.1 Quantification des niveaux d'énergie

Afin d'identifier le type d'excitation réalisée, il faut déterminer les règles de sélection interbandes. En effet, selon la polarisation choisie différents types de trous vont intervenir et contribuer de manière différente. Selon le modèle le plus simple, la dispersion des sousbandes pour les trous lourds (HH), les trous légers (LH) et les électrons est donnée par :

$$E_{HH_n}(\mathbf{k}_\perp) = -E_g - HH_n - \frac{\hbar^2 k_\perp^2}{2M_n} \quad (5.15a)$$

$$E_{LH_n}(\mathbf{k}_\perp) = -E_g - LH_n - \frac{\hbar^2 k_\perp^2}{2m_n} \quad (5.15b)$$

$$E_{c,n}(\mathbf{k}_\perp) = E_n + \frac{\hbar^2 k_\perp^2}{2m_c} \quad (5.15c)$$

où E_g est l'énergie de la bande interdite, M_n et m_n et m_c les masses effectives. La figure 5.22 présente un diagramme d'énergie simplifié mettant en évidence la façon dont les différentes sousbandes sont disposées dans le plan des couches sous l'effet du confinement par rapport au gap du GaAs massif.

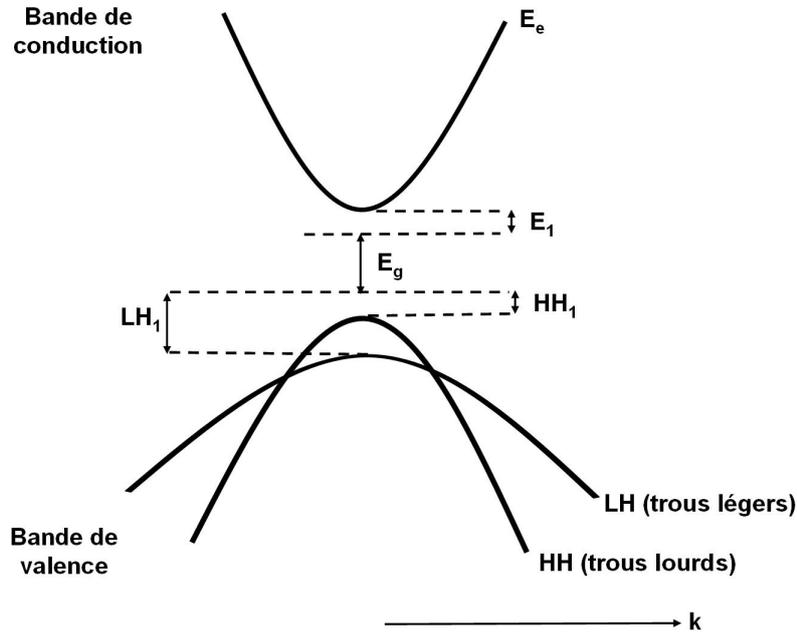


FIGURE 5.22 – Allure des sousbandes de la bande de conduction et de la bande de valence dans le GaAs perpendiculairement à l'axe de croissance

5.4.5.2 Règles de sélection interbandes

Les règles de sélection en polarisation sont déterminées en examinant la partie périodique des fonctions de Bloch [Bastard 1988] dans l'approximation de la fonction enveloppe. Pour la polarisation TM, c'est-à-dire selon l'axe de croissance z , les transitions $HH_n \rightarrow E_m$ sont interdites, seule les transitions $LH_n \rightarrow E_m$ impliquant les trous légers ont une contribution. Dans la polarisation TE, parallèle au plan des couches, les trous lourds et les trous légers contribuent avec une plus forte contribution des trous lourds. La tableau suivant récapitule la contribution dans le calcul du dipôle pour des transitions impliquant des trous lourds et légers en polarisation TM et TE.

	TM	TE
HH \rightarrow E	0	$\frac{1}{\sqrt{2}}$
LH \rightarrow E	$\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{3}}$	$\frac{1}{\sqrt{6}}$

Ces règles de sélection sont valables sans champ appliqué, néanmoins elles sont supposées valables en première approximation à la limite des faibles champs comme c'est le cas dans les LCQ THz étudiés dans ce travail. La figure 5.23 présente l'orientation de la polarisation du faisceau de pompe par rapport à l'axe de croissance z du LCQ.

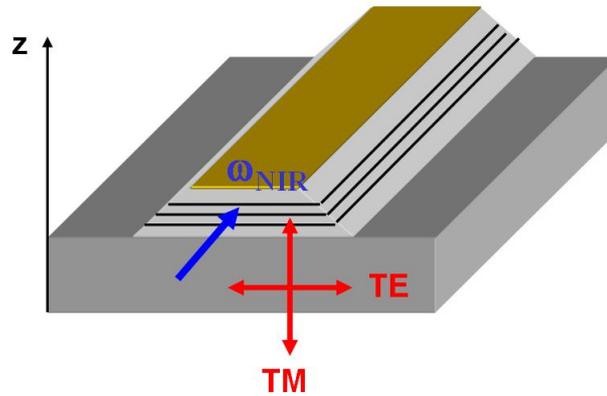


FIGURE 5.23 – Schéma présentant l'orientation des polarisations TM et TE pour la pompe proche-IR dans l'expérience de mélange d'ondes

5.4.5.3 Efficacité en polarisation TE et TM

La figure 5.24 montre l'efficacité pour deux polarisations du faisceau de pompe (TM et TE). Le graphe rouge correspond à une polarisation TE où les trous légers et les trous lourds contribuent (les trous lourds de façon majoritaire) et le graphe noir à une polarisation TM pour laquelle seuls les trous légers contribuent. En TM, comme vu précédemment, deux résonances sont observées. En TE, une résonance marquée est observée à 1.525 eV et décalée vers le rouge (la seconde résonance est peut-être atténuée par l'absorption car les transitions sont de plus faibles énergies dans cette configuration). En supposant que seuls les états de trous fondamentaux sont impliqués dans le processus, le décalage en énergie entre les deux graphes s'explique par le fait que les énergies de quantification entre trous lourds et trous légers sont différentes. Selon des simulations effectuées, l'écart en énergie entre un état HH_1 et LH_1 est d'environ 2 meV (voir structures de bande figures 5.30 et 5.31), en accord avec le décalage observé entre les deux graphes. Ces mesures confirment que le processus est lié à une interaction avec les puits quantiques de la structure, et que de plus, la conversion a lieu pour les deux types de polarisation et de manière résonante.

5.4.6 Spectres haute résolution

Afin de donner un aperçu de l'intérêt de cette technique pour, par exemple, étudier l'émission d'un LCQ, la figure 5.25 donne l'exemple d'un spectre haute résolution (acquisition avec le réseau 1800 l/mm) de l'émission multimode du LCQ V193. La génération de la différence de fréquences contient toute l'information des photons THz et en l'occurrence la présence de modes Fabry-Pérot. La séparation en énergie entre les modes principaux est de $120 \mu\text{eV}$ soit environ 29 GHz, cela est accord avec la fréquence liée à un aller-retour dans une cavité de longueur $L=1.5$

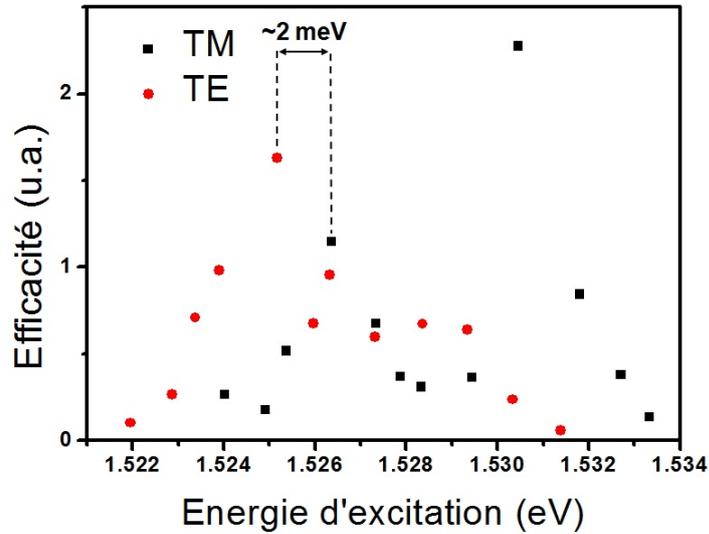


FIGURE 5.24 – Graphes représentant l'efficacité pour une polarisation du faisceau porche-IR de pompe TM (noir), contribution de transitions impliquant seulement les trous légers et TE (rouge), contribution simultanée des trous lourds (majoritairement) et légers.

mm pour une onde à la fréquence d'émission du LCQ ($\Delta\nu = \frac{2nL}{c}$). Cette technique peut tout à fait se substituer pour faire la mesure du spectre d'émission d'un LCQ au techniques faisant appel à un FTIR par exemple. A titre indicatif, les FTIR haut de gamme actuels permettent d'atteindre des résolutions d'environ 0.2 cm^{-1} (soit environ 6 GHz). Or, dans la mesure réalisée ici la résolution est de 1.2 GHz permettant ainsi d'obtenir un spectre plus détaillé. De plus, en mode haute résolution, le temps d'acquisition d'un spectre avec un FTIR peut durer plus de minutes. Avec cette méthode, un temps de pose de 1.5 s a permis d'obtenir le spectre montré en figure 5.25.

La figure 5.26 présente l'étude de l'émission du LCQ V193 par la technique de conversion de fréquences pour différentes valeur de courant injecté. Le type de spectre obtenu est tout à fait comparable à ce qu'il est possible d'obtenir avec un FTIR, à condition d'avoir un spectromètre convenablement calibré. La figure montre les spectres mesurés pour différents courant injectés dans le LCQ.

5.4.7 Comparaison de différents échantillons

5.4.7.1 LCQ à guide simple plasmon

Le but de cette étude est de tester si le mélange d'onde peut s'appliquer à différents LCQ THz, possédant des caractéristiques différentes, du point de vue de la région active. Nous avons étudié deux LCQ "bound-to-continuum" et un LCQ

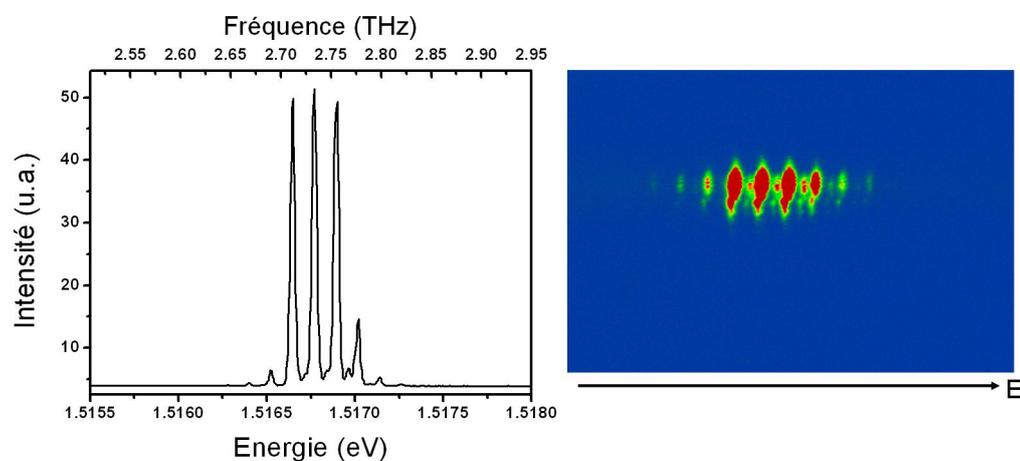


FIGURE 5.25 – **A gauche** : Profil d'intensité issue du spectre 2D haute résolution de la raie générée montrant les modes Fabry-Pérot espacés de 30 GHz. **A droite** : Image 2D du spectre en fausses couleurs.

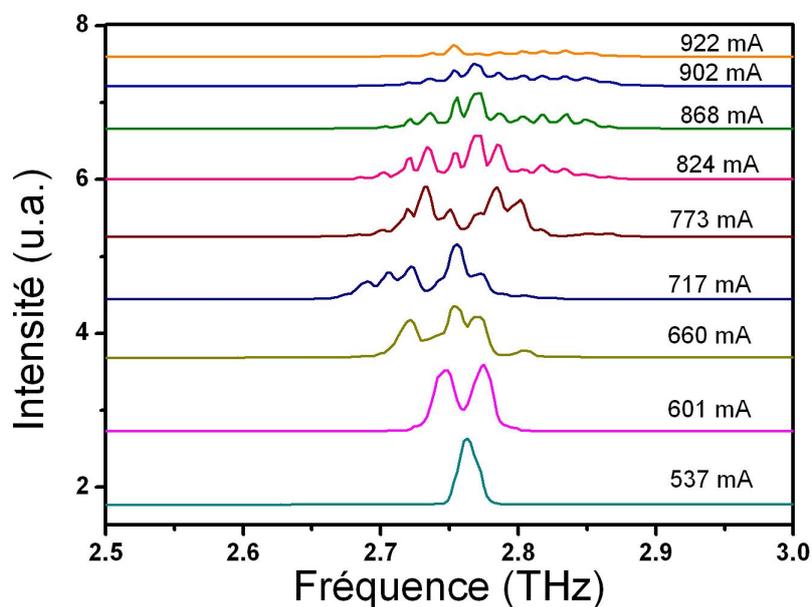


FIGURE 5.26 – Spectres de l'émission du LCQ V193 en fonction du courant injecté mesuré par la technique de conversion de fréquences.

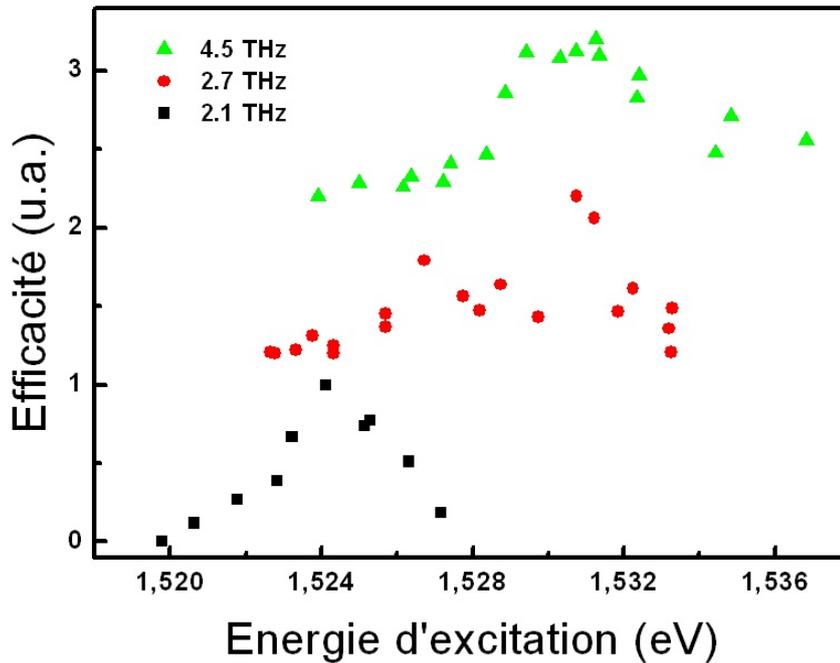


FIGURE 5.27 – Efficacité en fonction de l'énergie d'excitation pour les échantillons ART 217 (2.1 THz, en noir), V193 (2.7 THz, en rouge) et L537 (4.5 THz, en vert).

reposant sur une dépopulation par phonons LO.

Le premier est le V193 (croissance de l'Université de Cambridge) émettant autour de 2.7 THz d'une longueur de cavité de 1.5 mm reposant sur un dessin "bound-to-continuum" de Barbieri et al. [Barbieri 2004] dont les mesures ont été présentés dans les paragraphes précédents. Le second est l'ART 217 (croissance de Alcatel-Thalès III-V Labs) émettant autour de 2.1 THz reposant sur un type de dessin similaire de Worrall et al. [Worrall 2005] d'une longueur de cavité de 3 mm. Le troisième L537 (croissance de l'Université de Leeds) émet autour de 4.5 THz et repose sur un dessin avec dépopulation par phonons LO inspiré de Kumar et al. [Kumar 2009] d'une longueur de cavité de 2 mm. La figure 5.27 représente l'efficacité normalisée mesurée pour les trois échantillons en fonction de l'énergie d'excitation. Certains point sont remarquables. Tout d'abord, l'énergie d'excitation doit être plus grande pour observer un mélange lorsque la fréquence d'émission THz du LCQ est plus élevée. L'autre point est que la largeur spectrale de l'efficacité augmente également avec la fréquence d'émission du LCQ. Elle vaut 7.2 meV pour l'échantillon émettant à 2.1 THz, 10.6 meV pour celui à 2.7 THz et 13 meV pour celui à 4.5 THz. Ces résultats sont discutés en section 5.5.1.

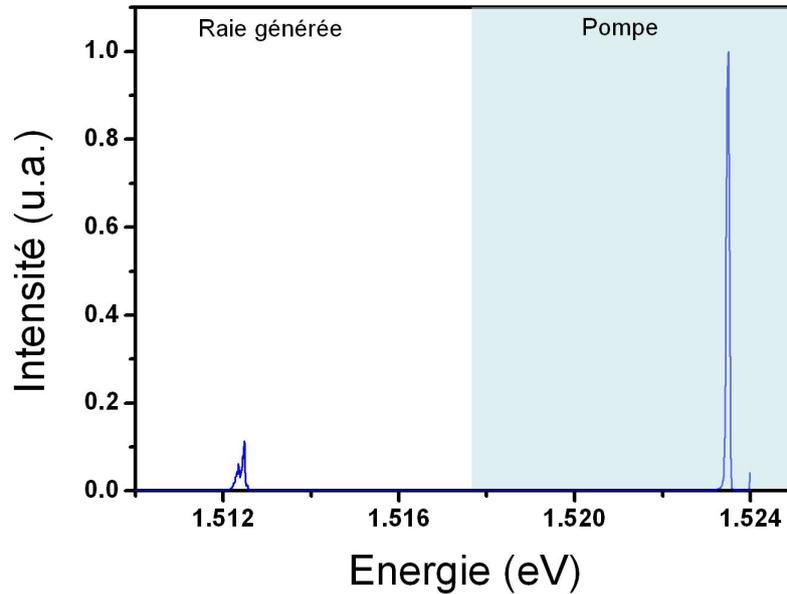


FIGURE 5.28 – Spectres pour différentes énergies de pompe de l'échantillon V193 en guide double métal présentant la génération de la différence de fréquences.

5.4.7.2 LCQ à guide double métal

Tester le mélange d'onde dans des LCQ THz possédant un guide double métal est d'intérêt en raison du très fort facteur de confinement du mode THz dans le guide (voir **chapitre 2**) permettant ainsi un bon recouvrement du mode THz et du mode proche-IR pouvant améliorer l'efficacité de conversion. L'échantillon que nous avons étudié ici est également un V193 mais en guide double métal avec une longueur de cavité de 2 mm.

Le mélange a été également observé, mais les données sont peu exploitables pour une analyse et une interprétation convenable. En effet, plusieurs difficultés ont été rencontrées. Tout d'abord, il est délicat d'obtenir des facettes sans défauts pour ces dispositifs. Or, la qualité du couplage de faisceau proche-IR est fortement dépendante de la qualité des facettes (pour l'émission THz cela n'est pas critique pour les LCQ avec ce type de guide). Un autre problème concerne la largeur des rubans lasers ($50\ \mu\text{m}$ en moyenne contre $250\ \mu\text{m}$ pour un guide simple plasmon) ce qui rend le couplage (lorsque celui-ci est acceptable) peu stable (en raison des dérives mécaniques du support du cryostat) qui nuit fortement à la reproductibilité des mesures.

La figure 5.28 montre que le mélange d'onde a tout de même été réalisé dans cet échantillon mais avec une efficacité moindre comparée au guide simple plasmon.

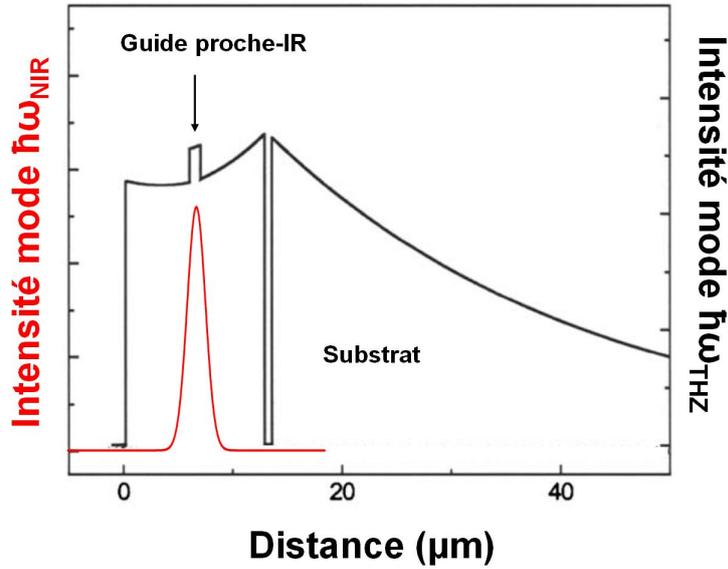


FIGURE 5.29 – Allure des modes THz et proche-IR pour l'échantillon possédant une couche de GaAs de $1.5 \mu\text{m}$ insérée dans la zone active et utilisée pour confiner le mode proche-IR.

5.4.7.3 LCQ avec guide proche-IR inséré dans la région active

L'origine de l'interaction non-linéaire a pu être testée par l'utilisation d'un LCQ avec un guide pour le proche-IR en GaAs d'environ $1.5 \mu\text{m}$ inséré dans la région active tel que présenté dans les travaux de Dhillon et al. [Dhillon 2007]. Dans le travail de Dhillon et al., le confinement du mode proche-IR dans une couche de GaAs a été réalisé dans le but de maximiser l'interaction non-linéaire avec le $\chi^{(2)}$ du massif du GaAs. La figure 5.29 présente l'allure des profils d'intensité des modes THz et proche-IR dans cet échantillon. Contrairement aux échantillons dont le guide pour le proche-IR est formé du contact métallique supérieur du LCQ et de la couche AlGaAs au-dessus du substrat, ici le mode proche-IR reste confiné dans le guide en GaAs. Pour cet échantillon, nous n'avons jamais pu observer de mélange malgré de nombreuses tentatives. Cela confirme l'idée selon laquelle la conversion de fréquences provient de l'interaction avec des états confinés dans les puits quantiques. En effet, avec ce type de guide, il n'y a pas de recouvrement spatial avec la région active du LCQ.

5.4.7.4 Comparaison avec la littérature

Le tableau suivant dresse un récapitulatif des études réalisées pour la conversion de fréquences impliquant un faisceau proche-IR et un faisceau dans le moyen ou lointain IR. Comparées aux travaux effectués par d'autres équipes, les résultats que nous obtenons montrent que l'efficacité obtenue est deux ordres de grandeurs su-

périeurs aux travaux utilisant des LCQ comme source de rayonnement. L'efficacité que nous obtenons est comparable aux travaux utilisant un laser à électrons libres comme source de rayonnement THz. Cela est permis par l'utilisation d'un LCQ comme milieu non-linéaire où l'interaction a pour siège les puits quantiques de la région active. Exciter optiquement un système de façon résonante permet d'exalter la susceptibilité non-linéaire. Ce qui diffère également des précédents travaux (sauf Dhillon et Kono) est la géométrie de l'interaction qui est colinéaire. En effet, l'interaction peut a priori avoir lieu sur une grande longueur de propagation (longueur de la cavité du LCQ) et tire partie également de la grande densité de puissance THz intracavité, ce qui contribue à l'obtention d'une efficacité de conversion élevée.

Auteur	Structure	Type d'interaction	η (%)	Géométrie
Kono-1997	Puits GaAs/AlGaAs	$\chi^{(3)}$ résonant	0.05	Colinéaire
Carter-2003	Puits GaAs/AlGaAs	$\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ résonant	0.2	Orthogonale
Zervos-2006	LCQ MIR	$\chi^{(2)}$ résonant	10^{-3}	Réflexion
Dhillon-2007	LCQ THz	$\chi^{(2)}$ massif GaAs	10^{-3}	Colinéaire
Ce travail	LCQ THz	$\chi^{(2)}$ résonant	0.12	Colinéaire

Une revue de la littérature sur le sujet des non-linéarités interbandes résonantes montre des points de désaccords, notamment sur l'ordre de grandeur de la susceptibilité non-linéaire qui présente une grande disparité, autant expérimentale que théorique. Ce problème a été soulevé et synthétiser par Khurgin dans la référence [Garmire 1999].

5.4.8 Origine des résonances

Dans ce paragraphe, nous cherchons à identifier quelles transitions sont impliquées dans les résonances observées sur les courbes d'efficacité par des mesure de photoluminescence (PL) en réflexion. La photoluminescence nous permet de mesurer l'émission des états de plus basses énergies dans le système. Dans notre cas, les états impliqués dans le spectre de PL sont alors des états électroniques et des états de trous lourds (les plus proches en énergie de la bande de conduction (voire section 5.4.5)). Ces mesures montrent, tout d'abord, que la génération de la raie à la différence des fréquences s'effectue via un état virtuel. Puis, en comparant le spectre de PL au calcul du recouvrement des fonctions d'ondes de trous lourds et électroniques, nous pouvons identifier l'origine des résonances observées dans la courbe d'efficacité pour une pompe proche-IR polarisée TE (le cas TM ne nous est pas accessible car cela implique une contribution des trous légers qui ne sont pas mesurable par PL dans ce cas). Les figures 5.30 et 5.31 montrent la structure de bande incluant les trous légers et les trous lourds.

La figure 5.32 présente la comparaison entre le spectre de PL et l'efficacité obtenue pour une polarisation TE de la pompe proche-IR. En vert est représentée l'efficacité en fonction de l'énergie des raies générées et en noir en fonction de l'énergie d'excitation. Tout d'abord, aux énergies de la raie générée, le spectre de PL

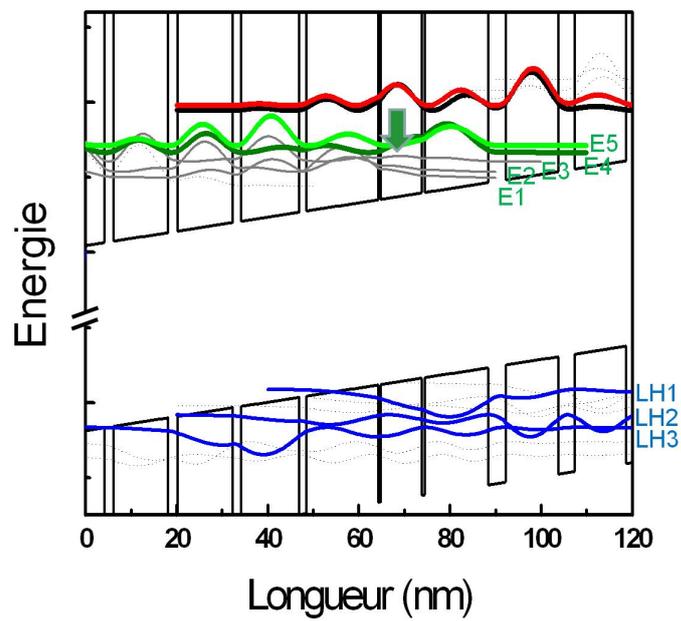


FIGURE 5.30 – Structure de bande de l'échantillon V193 sous un champ appliqué de 2kV/cm avec trous légers.

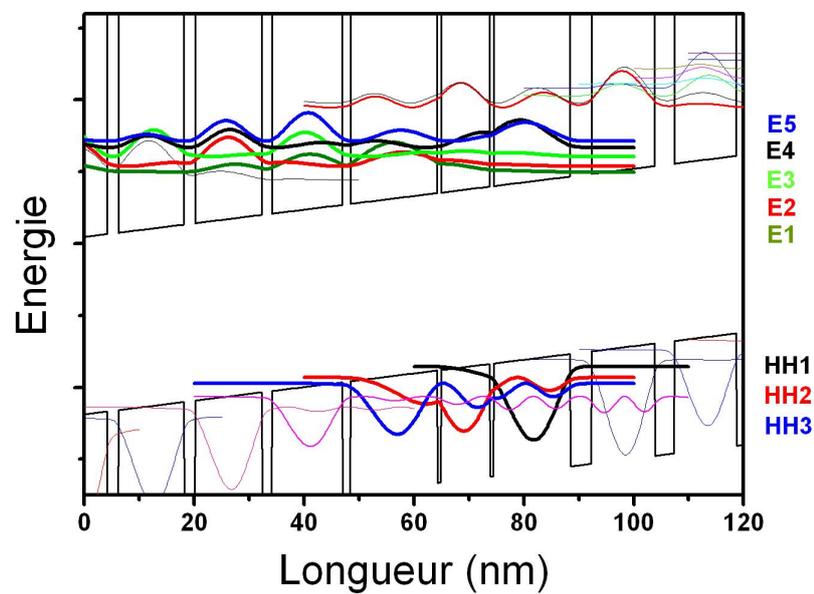


FIGURE 5.31 – Structure de bande de l'échantillon V193 sous un champ appliqué de 2kV/cm avec les trous lourds.

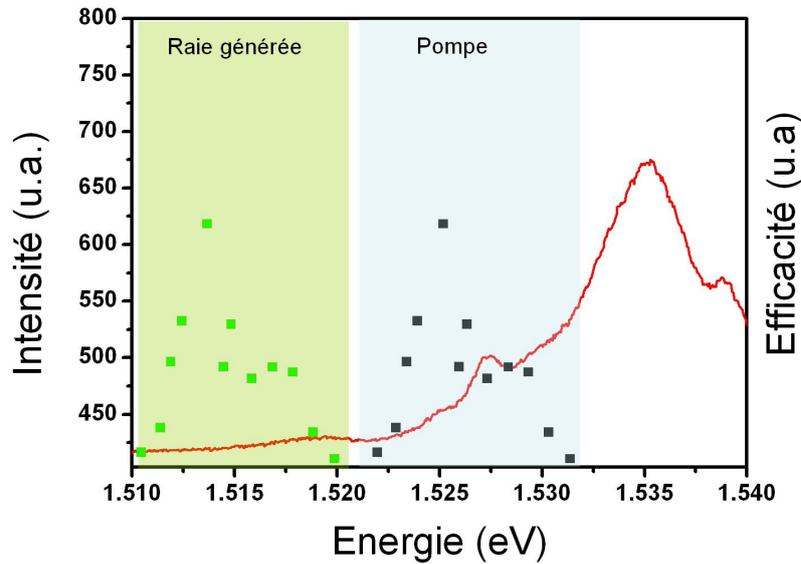


FIGURE 5.32 – Comparaison entre le spectre de PL avec le LCQ en régime laser et l’efficacité de conversion en polarisation TE en fonction de l’énergie des raies générées (points verts) et de l’énergie de la pompe (points noirs).

ne montre la contribution d’aucun état. Cela confirme l’hypothèse selon laquelle la génération de la raie se produit via un état virtuel. La résonance observée est donc liée à la pompe d’excitation. Sur le graphe noir, la raie de plus grande intensité correspond au pic situé à 1.525 eV sur le spectre de PL. La raie de plus haute énergie sur la courbe d’efficacité correspond à la raie de plus forte intensité à 1.527 eV. La pompe est donc bien en résonance avec des transitions interbandes de la structure.

La figure 5.33 présente la comparaison entre le spectre de photoluminescence et le recouvrement des fonctions d’ondes pour les transitions incluant les trous lourds (points) lorsque le LCQ est dans le régime laser qui correspond au champ appliqué pour lequel le mélange de fréquences est observé. Pour le pic dans le spectre de PL de plus basse énergie (1.525 eV), qui correspond à la raie principal de résonance dans l’efficacité, plusieurs transitions peuvent contribuer mais deux transitions contribuent principalement : $|HH_3\rangle \rightarrow |E_1\rangle$ et $|HH_2\rangle \rightarrow |E_2\rangle$. La contribution de plusieurs états peut d’ailleurs expliquer pourquoi cette raie est plus intense. En ce qui concerne, le pic à plus haute énergie (indiqué par la ligne pointillée de droite), la transition $|HH_1\rangle \rightarrow |E_4\rangle$ présente un très fort recouvrement à cette énergie. Cela montre que la pompe est bien en résonance avec des états de la minibande. De plus, selon l’énergie de la pompe, différentes transitions sont impliquées dans le processus de mélange d’ondes.

Cela permet de schématiser le mélange d’onde comme sur la figure 5.34. La pompe proche-IR excite de manière résonante une transition impliquant trous lourds et états de la minibande. La génération de la différence des fréquences se produit

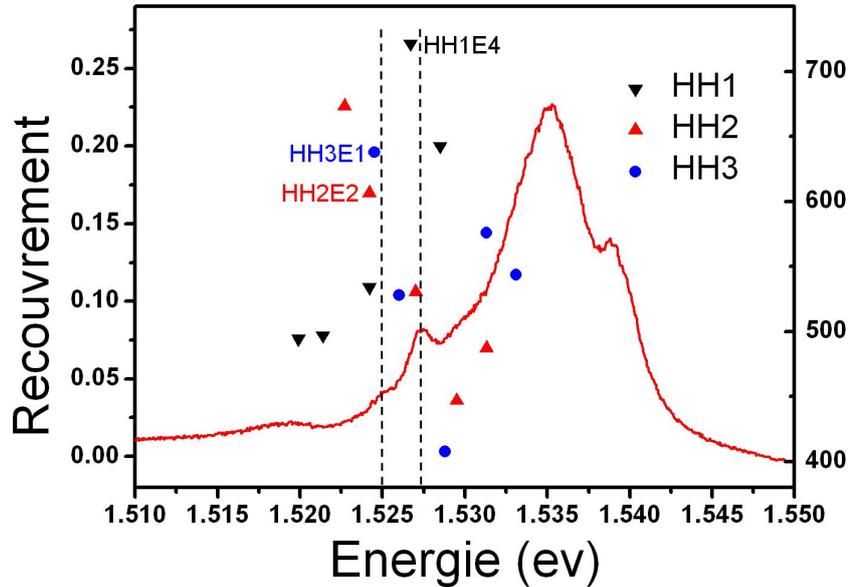


FIGURE 5.33 – Comparaison entre le spectre de photoluminescence en réflexion avec le LCQ en régime laser et le carré du recouvrement entre états de trous lourds (points rouges) et de trous légers (points bleus) et les états électroniques.

par l'intermédiaire d'un état virtuel situé sous le gap de la structure.

Ce étude doit être cependant approfondie notamment pour confirmer que les résonances observées pour une polarisation TM de la pompe sont également liées à des transitions trous légers et lourds avec des états de la minibande. Pour accéder à ce type de transitions, des mesures de la réflectivité en fonction de l'énergie, qui permettent de mesurer le spectre de l'absorption, ou bien des mesures de PLE (*Photoluminescence Excitation*) peuvent permettre d'identifier les états impliqués dans les résonances.

5.5 Modèle du processus non-linéaire d'ordre deux avec accord de phase

Dans cette section, nous proposons un modèle pour expliquer le processus qui permet d'obtenir ce mélange d'onde. Le processus non-linéaire en action tire partie d'une susceptibilité non-linéaire d'ordre deux. En effet, les mesures effectuées en fonction du courant (voir figure 5.16) montrent une dépendance linéaire de l'intensité de la raie générée avec la puissance THz, ce qui est caractéristique d'un processus impliquant un $\chi^{(2)}$ [Ciulin 2004].

Un aspect important de ce travail est la géométrie utilisée pour obtenir le mélange d'onde, qui est colinéaire. Toutes les ondes impliquées dans le mélange se propagent

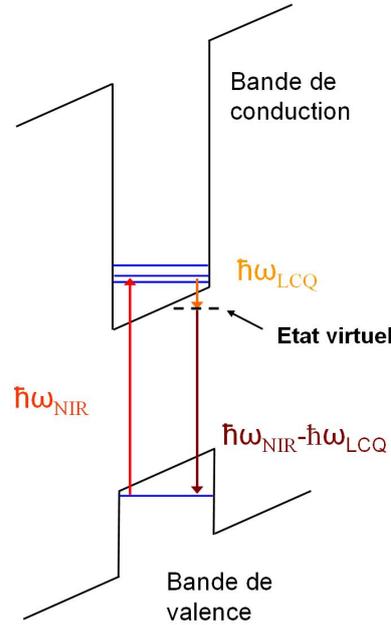


FIGURE 5.34 – Schéma présentant le processus de génération de la différence de fréquence via un état virtuel.

de façon parallèles et donc il est nécessaire dans ce cas de réfléchir aux conditions d'accord de phase. L'efficacité est grande et il est donc probable que la longueur de propagation dans le matériau y joue un rôle important. L'idée est d'expliquer en partie cette grande efficacité en supposant que l'accord de phase est réalisé grâce à la dispersion particulière autour des résonances (transitions interbandes) de l'indice de réfraction pour le proche-IR. Par simplicité, l'indice de réfraction calculé est celui du GaAs massif. Cependant, en utilisant cette approche simple, il est possible de montrer qu'un accord de phase est réalisable et en bon accord avec les résultats expérimentaux. Ce modèle permet de reproduire l'enveloppe des courbes d'efficacité avec un très bon accord.

5.5.1 Accord de phase

L'accord de phase est respecté si, dans le cas de la génération de la différence de fréquences :

$$n_{pompe}(\omega_{pompe})\omega_{pompe} - n_{THz}(\omega_{THz})\omega_{THz} - n_{diff}(\omega_{diff})\omega_{diff} = 0 \quad (5.16)$$

La difficulté réside dans la connaissance des indices n_{pompe} , n_{THz} et n_{diff} . Effectivement, comme nous l'avons montré dans la section précédente, il est encore difficile d'identifier clairement où se situe l'énergie d'excitation par rapport aux transitions interbandes, et donc de calculer précisément l'indice.

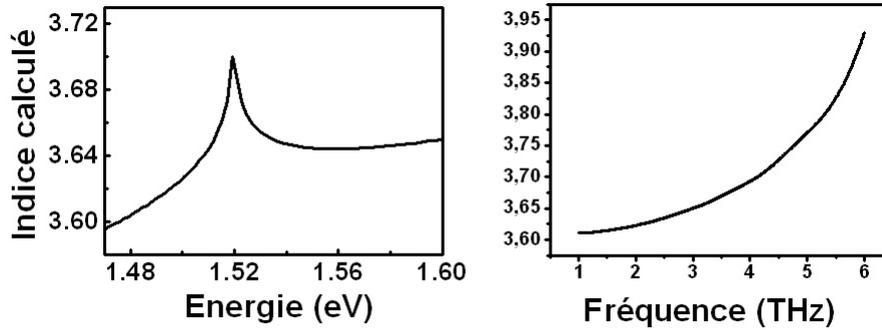


FIGURE 5.35 – **A gauche** : Dispersion de la partie réelle de l'indice pour le proche-IR dans le GaAs à 10 K calculé à partir du modèle d'Afromowitz. **A droite** : Dispersion aux fréquences THz dans le GaAs

5.5.2 Calcul des indices dans le proche-IR et le THz

L'évaluation de l'indice autour du gap d'un matériau est complexe car les propriétés optiques sont alors dominées par l'absorption. Pour le GaAs, une forte variation de l'indice est observée autour de cette énergie [Blakemore 1982]. Afin d'évaluer l'indice du GaAs pour le proche-IR, nous avons utilisé le modèle d'Afromowitz [Afromowitz 1974] (voir annexe B).

La figure 5.35 présente les courbes de l'indice calculé dans le GaAs à 10 K pour le proche-IR et l'indice aux fréquences THz issu des tables du Palik [Palik 1998]. Aux fréquences THz, la dispersion est dominée par les phonons optiques. L'indice autour du gap varie fortement donnant la possibilité pour des longueurs d'onde bien choisies de part et d'autre du maximum (situé à 1.519 eV) d'avoir des indices permettant l'accord de phase. Par exemple, $\Delta k = 0$ pour une fréquence de 2.1 THz ($n_{THz}=3.625$) et une énergie proche-IR de 1.5249 eV ($n_{pompe}=3.66$).

La figure 5.36 donne le résultat des calculs pour l'accord de phase en fonction de l'énergie de la pompe proche-IR. Cette courbe a été calculée pour trois fréquences, correspondant aux fréquences d'émission des LCQ étudiés, soit 2.1 THz, 2.7 THz et 4.5 THz (voir section 5.4.7). Tout d'abord, selon ce modèle, l'accord de phase est possible, et est directement lié à la dispersion de l'indice du GaAs dans le proche-IR, l'indice aux fréquences THz pour les fréquences étudiées varie peu. Puis, l'accord de phase est respecté pour des énergies plus grandes lorsque que la fréquence THz augmente. Enfin, un point important concerne la largeur des courbes qui augmente également avec la fréquence THz (voir insert figure 5.36).

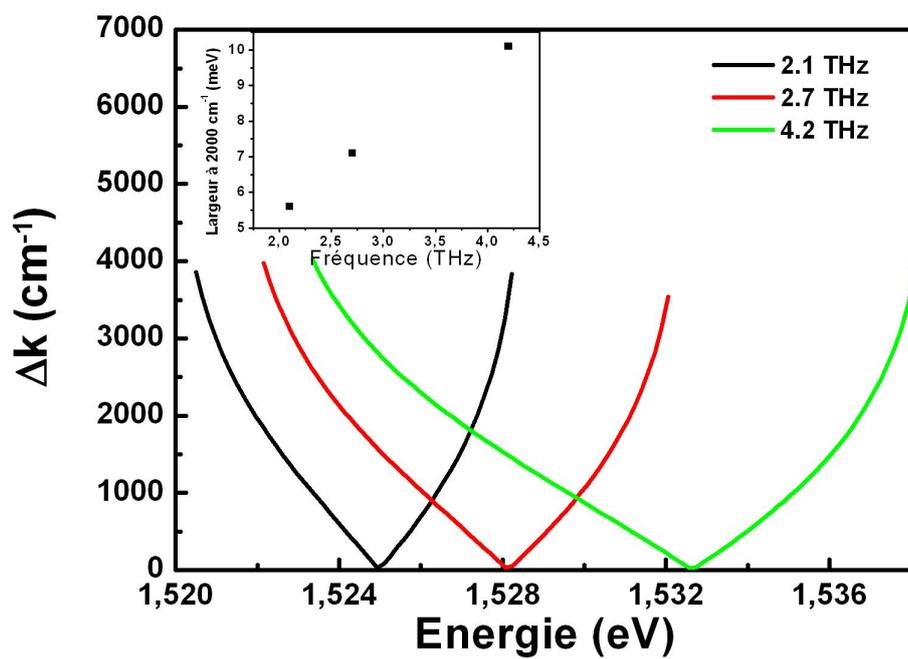


FIGURE 5.36 – Accord de phase calculé à partir des indices calculés en fonction de l'énergie de la pompe pour 2.1 THz (en noir), 2.7 THz (en rouge) et 4.5 THz (en vert). L'évolution de la largeur des courbes d'accord de phase à 2000 cm^{-1} est représenté en insert.

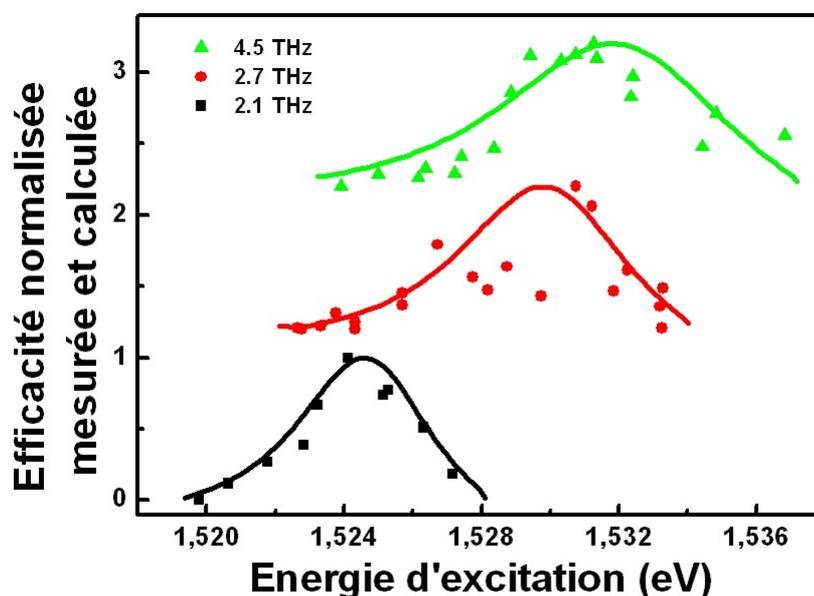


FIGURE 5.37 – Graphe représentant l'efficacité normalisée mesurée (nuage de points) et calculée (ligne) en fonction de l'énergie d'excitation proche-IR pour le LCQ émettant à 2.1 THz (noir), 2.7 THz (rouge) et 4.5 THz (vert).

5.5.2.1 Comparaison modèle/expérience

A l'aide de ce modèle, il est possible de simuler l'allure des courbes d'efficacité en utilisant l'expression 5.10. La figure 5.37 présente la comparaison entre l'efficacité normalisée mesurée et calculée pour les trois types d'échantillons. Ces simulations ont été effectuées avec des pertes pour l'onde de pompe de l'ordre de 1000 cm^{-1} [Rosencher 2002].

Ce modèle reproduit assez fidèlement l'enveloppe des courbes expérimentales. Cela concorde bien avec l'hypothèse d'un accord de phase permis par la dispersion de l'indice dans le proche-IR autour des résonances. La largeur spectrale provient de l'accord de phase et est donc directement liée aux indices relatifs à la longueur d'onde de la pompe et à l'onde générée à la différence des fréquences.

Par ailleurs, les courbes d'efficacité simulées ont été normalisées car certains paramètres nous sont difficilement accessibles comme la puissance THz intra-cavité, l'énergie des transitions ou la valeur théorique de la susceptibilité non-linéaire.

5.5.3 Estimation expérimentale de la susceptibilité non-linéaire

Pour estimer expérimentalement la valeur du $\chi^{(2)}$, la relation **5.10** est également utilisée. En effet, la pompe est absorbée par le matériau et en supposant que seule la pompe subit des pertes (car $\alpha_p \gg \alpha_{THz}, \alpha_d$) et lorsque que l'accord de phase est respecté ($\Delta k = 0$) il vient :

$$\chi^{(2)} = \eta \left(\frac{\varepsilon_0 n_p n_{THz} n_d c \lambda_p^2}{4\pi^2 L^2 I_{LCQ}} e^{\alpha_p \frac{L}{2}} \frac{[\alpha_p \frac{L}{4}]^2}{sh^2 [(\alpha_p \frac{L}{4})]} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (5.17)$$

En choisissant une efficacité $\eta = \frac{P_d}{P_p}$ de l'ordre de 0.1 %, des pertes α_p de l'ordre de 1000 cm^{-1} pour la pompe et en supposant que la puissance intracavité THz de l'échantillon étudié est de 20 mW, alors $\chi^{(2)} = 10^4 \text{ pm/V}$.

Cette valeur de la susceptibilité est élevée mais est en accord avec les estimations de susceptibilité non-linéaire d'ordre deux interbande résonante dans les puits quantiques GaAs/AlGaAs, qui montrent une grande disparité dans la littérature (de 10 à 10^4 pm/V [Atanasov 1994] [Fiore 2007] [Garmire 1999]).

Il faudrait pouvoir la comparer à un calcul théorique de la susceptibilité non-linéaire. Le calcul d'une telle susceptibilité a été proposé par Khurgin et se révèle déjà assez complexe dans le cas de puits simples asymétriques [Khurgin 1988]. Les LCQ sont des dispositifs beaucoup plus complexes contenant du dopage, un très grand nombre de puits et dans lesquels le transport électronique et les populations des niveaux sont différents d'un cas simple. L'estimation théorique d'un $\chi^{(2)}$ dans le cas interbande n'est pas aisé et demande certains approfondissements.

5.5.4 Effet des pertes sur la longueur d'interaction

Dans ce modèle, les pertes par absorption de la pompe ont une influence sur l'efficacité (comparé au rendement sans pertes par absorption). La figure 5.38 présente l'allure de l'efficacité en fonction de la longueur de propagation dans le cas où l'accord de phase est respecté. Cette figure montre, comparé au cas sans pertes (voir section **5.2**), que la longueur optimale d'interaction est d'environ $40 \mu\text{m}$ car l'efficacité sature au-delà. Effectivement, dans cette configuration, l'augmentation de l'efficacité avec la longueur d'interaction est compensée par les pertes.

5.6 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, le mélange d'ondes dans un LCQ impliquant un faisceau proche-IR et un faisceau THz est démontré avec une efficacité comparable aux travaux utilisant un laser à électron libre comme source THz et en employant pour la première fois une non-linéarité résonante dans la région active du LCQ. Le LCQ est

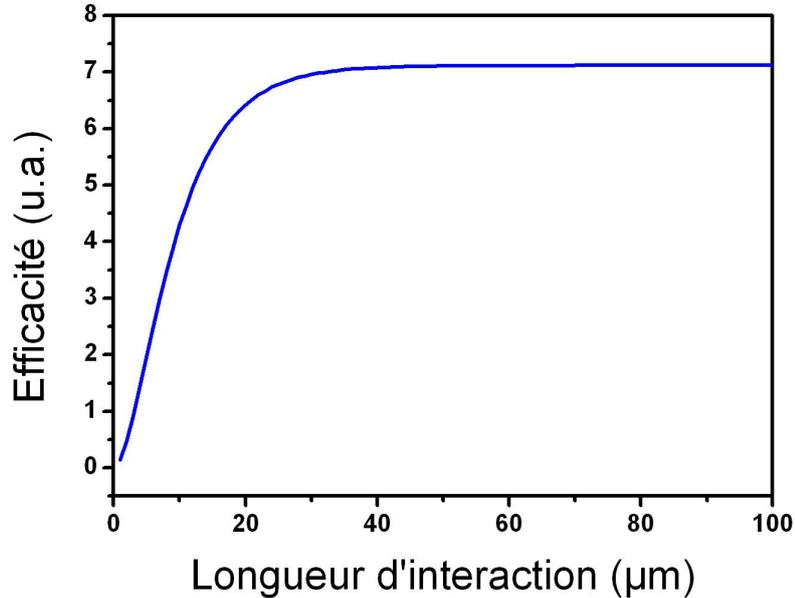


FIGURE 5.38 – Allure de l'efficacité en fonction de la longueur de propagation dans le cas où $\Delta k = 0$.

utilisé comme milieu non-linéaire et source THz permettant la conversion de fréquence dans un système très compact avec une géométrie colinéaire. Une efficacité de conversion d'environ 0.12 % a été observée pour la génération de la différence de fréquences entre la pompe proche-IR et l'émission du LCQ.

L'origine d'une non-linéarité liée aux puits quantiques du LCQ, l'effet de résonance avec des transitions interbandes est clairement démontré et le mélange fait intervenir un état virtuel sous le gap. Le modèle présenté est en bon accord avec les courbes expérimentales et résout les questions sur l'accord de phase. Certains approfondissements sont nécessaires pour identifier plus en détails les transitions impliquées dans les résonances observées, et une collaboration théorique serait utile pour modéliser la susceptibilité non-linéaire dans le cas interbande résonant dans un LCQ.

5.6.1 Perspectives de ce travail

Les perspectives liés à ce travail sont assez vastes. En utilisant la flexibilité donnée par l'ingénierie de structure de bande et le dessin des LCQ, il est possible de penser à créer un dessin spécifique à cette fonctionnalisation du LCQ, comme, par exemple, l'ajout de puits quantiques dont les niveaux sont agencés de façon à avoir un très fort recouvrement pour optimiser l'interaction non-linéaire. Par exemple, en ajoutant un puits dans chaque période permettant pour rendre l'interaction triple-

ment résonante (pompe optique en résonance avec une transition interbande et onde THz en résonance avec une transition intersousbande) tout en conservant l'inversion de population. Ou encore, des lasers hétérogènes tel que présenté au chapitre 4, peuvent être utilisés pour la conversion de plusieurs longueurs d'onde simultanément.

Le fait que le mélange soit réalisé via un état virtuel permet d'étendre ce principe aux LCQ moyen-IR qui fonctionnent à température ambiante, et qui, technologiquement présentent l'avantage de pouvoir réaliser ce mélange de fréquences aux longueurs d'onde télécoms en raison de l'utilisation d'InP pour réaliser ces structures dont le gap se situe autour de $1.5 \mu\text{m}$.

Un autre point important est que l'émission des LCQ repose sur des transitions intersousbandes dont les temps de vie sont très court (~ 10 ps). Cela permet de réaliser la conversion optique avec des modulations électriques de fréquences très élevées et donc adapté aux réseaux de télécommunications optiques. Egalement, les processus non-linéaire présentent des symétries, ainsi le processus réciproque pourrait être étudié. Cela consisterait à envoyer deux faisceaux proche-IR dans le LCQ accordées avec les résonances observées afin de générer un onde THz.

5.6.2 Liens avec des applications

Actuellement, il existe un important enjeu autour des technologies de télécommunications. Plus particulièrement, d'intenses recherches au niveau mondial se déroulent afin d'améliorer les performances des réseaux de communications reposant en grande partie sur le transport d'information sur une porteuse infrarouge dans des fibres optiques. Un point clé de ces réseaux est le multiplexage en longueur d'onde (*Wavelength Division Multiplexing* (WDM) en anglais) qui est aujourd'hui essentiellement utilisé pour augmenter la capacité des porteuses optiques. Dans ces systèmes, chaque longueur d'onde est assignée à un canal de communication particulier parmi de nombreux canaux [Mukherjee 2006]. La manipulation de longueur d'onde est déterminante pour la répartition des données et bien souvent des dispositifs optoélectroniques sont utilisés pour la conversion de longueur d'onde. Cependant, malgré les progrès réalisés dans ce domaine ces dix dernières années, la technique employée consiste à transformer la longueur d'onde d'un signal optique en un signal électronique, puis de le convertir à nouveau en signal optique de longueur d'onde différente. Ce procédé présente un important inconvénient, à savoir que la rapidité de cette conversion de fréquence est bridée par le dispositif électronique. Pour outrepasser ce problème, le système idéal serait un réseau tout-optique dans lequel des convertisseurs tout optiques seraient utilisés pour effectuer cette conversion de fréquences.

En particulier, l'attention se porte naturellement sur l'utilisation de processus non-linéaire dans les semiconducteurs qui ont le potentiel pour combler ce fossé

technologique. Plus particulièrement, le type de conversion réalisé dans cette thèse avec des LCQ est tout à fait adapté pour remplir cette fonction.

Enfin, la conversion de fréquence que nous avons réalisé permet d'étudier le rayonnement THz en utilisant des technologies de l'infrarouge, matures et bien établies. Nous avons montré qu'il est possible de mesurer le spectre d'émission d'un LCQ THz avec une résolution plus élevée qu'un FTIR, et avec des temps d'acquisition de l'ordre de la seconde. Cette technique est donc intéressante en ce qui concerne le traitement de signaux THz.

Ce travail a conduit au dépôt d'un brevet nommé "Convertisseur optique de fréquences".

Conclusion

Les lasers à cascade quantique sont des dispositifs prometteurs pour la gamme THz. Les nombreuses applications auxquelles ils peuvent être liés expliquent le grand intérêt que leurs développements et études suscitent. Les LCQ sont des structures complexes dans lesquelles de nombreux mécanismes physiques sont impliqués et doivent être compris afin d'améliorer leur performances.

Dans cette thèse deux études sur les LCQ THz ont été présentées, la première concerne l'étude du gain par la technique de spectroscopie THz dans le domaine temporel, qui a fait ses preuves, et permet d'accéder à une grandeur fondamentale de ces sources, le gain et les pertes spectrales, à la fois sous le seuil laser et pendant le régime laser. La seconde étude expose la démonstration que ces dispositifs ont des propriétés adaptées pour l'optique non-linéaire résonante et plus particulièrement la conversion de fréquence optique.

Optimisation de la technique de spectroscopie THz

Avant de procéder aux mesures de gain de LCQ THz par spectroscopie THz. Nous avons optimisé cette technique pour l'adapter aux mesure du gain de LCQ. Pour cela, certains éléments composant cette expérience ont été étudiés en détail. Le but fixé était d'étendre la gamme spectrale de cette expérience de spectroscopie vers les hautes fréquences. Dans un premier temps, nous avons montré que le spectre des sources d'impulsions THz employées (dont le signal transmis est étudié pour accéder au gain des LCQ), appelées antennes photoconductrices interdigitées, peut être décalée vers des fréquences plus élevées en réduisant la taille de l'espace inter-électrodes. Ce décalage vers les hautes fréquences a pu être attribué à un écrantage plus rapide des charges lorsque cet espace inter-électrodes diminue.

La seconde optimisation est un montage de cette antenne en réflexion. Dans le montage classique, les impulsions THz, traversent le substrat en GaAs de l'antenne avant d'être collectées. Or, en traversant le substrat, les impulsions sont étirées en raison de la dispersion de l'indice dans le GaAs. Le montage en réflexion permet de s'affranchir de la dispersion et de conserver les composantes hautes fréquences. Ces optimisations ont permis de d'étendre le spectre jusque 6 THz environ contre 5 THz auparavant.

Etude du gain de LCQ THz homogène et hétérogène

• Mesure du gain d'un LCQ homogène

La première étude présentée sur les LCQ concerne l'étude du gain d'un LCQ dit homogène, i.e. conçu pour émettre à une unique fréquence. L'échantillon étudié est un LCQ "bound-to-continuum" prévu pour émettre à 1.9 THz et dans un guide simple plasmon. L'utilisation de la technique de spectroscopie THz permet d'accéder au gain spectral du LCQ et mettre en évidence l'effet de clamping du gain pendant l'action laser signifiant l'établissement d'un régime où le gain s'égalise aux pertes. Le largeur du gain mesurée est d'environ 300 GHz, ce qui est typique pour une structure homogène.

L'extension de la gamme spectrale de l'expérience vers les hautes fréquences permet d'accéder aux pertes à hautes fréquences dans ce LCQ. Ce type de mesure n'a jamais été réalisé auparavant et montre la présence d'absorption marquées à hautes fréquences.

• Amélioration des performances d'un LCQ hétérogène

La suite de l'étude sur le gain dans les LCQ THz s'est portée sur les LCQ hétérogènes, i.e. prévus pour émettre à plusieurs fréquences simultanément en juxtaposant plusieurs régions actives dans le même guide d'onde. Un premier échantillon conçu pour émettre à deux fréquences simultanément (2.5 et 2.9 THz) montre des performances plutôt décevantes. En effet, dans un guide simple plasmon le LCQ ne lase qu'à 2.5 THz. L'origine du dysfonctionnement a pu être établie grâce aux mesures par spectroscopie THz. Les deux régions composant le dispositifs n'étaient pas prévues pour que l'action laser se déclenche avec le même champ électrique appliqué. C'est alors la région émettant à 2.5 THz qui fixait le dispositif, nuisant à la seconde région.

Ces précédents résultats ont conduit à la réalisation d'un second LCQ hétérogène, où cette fois, les deux régions actives ont été pensées pour que l'action laser se déclenche pour le même champ d'alignement. Les résultats montrent que ce LCQ fonctionne comme prévu et opère à deux fréquences simultanément sur toute la plage de courant utile. De plus, les mesures montre que le gain dans ce dispositif est large (~ 400 GHz).

Ces résultats montrent que les LCQ hétérogènes sont réalisables et que pour que ceux-ci fonctionnent les différentes régions composant le LCQ doivent avoir des champs électriques d'alignement égaux. Du point de vue des applications, ce type de sources présente un grand intérêt pour la spectroscopie de substances, et peuvent être utilisées par exemple dans une cavité externe afin de disposer d'une source accordable dans la gamme THz.

Optique non-linéaire résonante dans les LCQ THz

Les LCQ présentent des propriétés intéressantes pour l'optique non-linéaire. L'étude réalisée dans cette thèse montre la possibilité de réaliser un mélange de fréquences entre un faisceau proche-IR et la fréquence d'émission d'un LCQ THz. Le faisceau proche-IR accordée de manière résonante avec les transitions interbandes (afin d'exalter l'interaction non-linéaire) de la région active du LCQ est injecté via une des facette permettant d'obtenir en sortie la génération de la somme et de la différence des fréquences. L'onde THz est convertie sur la porteuse proche-IR. Le LCQ est ainsi utilisé comme milieu non-linéaire, source de rayonnement THz et guide d'onde pour le faisceau proche-IR. La géométrie employée pour réaliser cette conversion de fréquences, est colinéaire, i.e. tous les faisceaux se propagent perpendiculairement à l'axe de croissance du LCQ.

Les résultats expérimentaux montrent une efficacité de conversion d'environ 0.12 % dans le cas de la génération à la différence des fréquences. Ils montrent également que le mélange de fréquences n'est permis que lorsque le LCQ est en régime laser et l'interaction non-linéaire provient bien de l'interaction avec les transitions dans les puits quantiques de la région active. De plus, des mesures de photoluminescence montrent que l'interaction est résonante pour la pompe proche-IR avec des transitions interbandes faisant intervenir des états dans les minibandes et fait intervenir un état virtuel pour l'onde générée.

Certains approfondissements sont encore nécessaires pour identifier plus précisément les transitions impliquées et modéliser la susceptibilité non-linéaire. Convertir une onde THz présente effectivement de nombreux intérêts dans le domaine des réseaux de télécommunications à fibres optiques, ou encore pour le traitement de signaux THz qui peut alors être converti vers les technologies matures de l'infrarouge.

Calibration des caractéristiques L-I-V avec le champ électrique

Dans le chapitre 4, afin d'être en mesure de comparer les simulations et les résultats expérimentaux, les caractéristiques L-I-V mesurées sont converties en fonction du champ électrique appliqué au LCQ (caractéristiques L-I-E). Pour réaliser cela, il faut d'abord disposer de simulations de structure de band calculées en fonction du champ appliqué à la structure et déterminer l'alignement optimal, en général établi pendant le dessin de la région active. La figure A.1 montre la structure de band de l'échantillon V455 BTC émettant à 1.9 THz présenté au chapitre 4. L'alignement optimal pour cette structure est donnée pour un champ électrique de 1.75 kV/cm environ. Cela correspond au meilleur recouvrement de l'état d'injection avec l'état haut de la transition laser (état bleu et vert sur la figure).

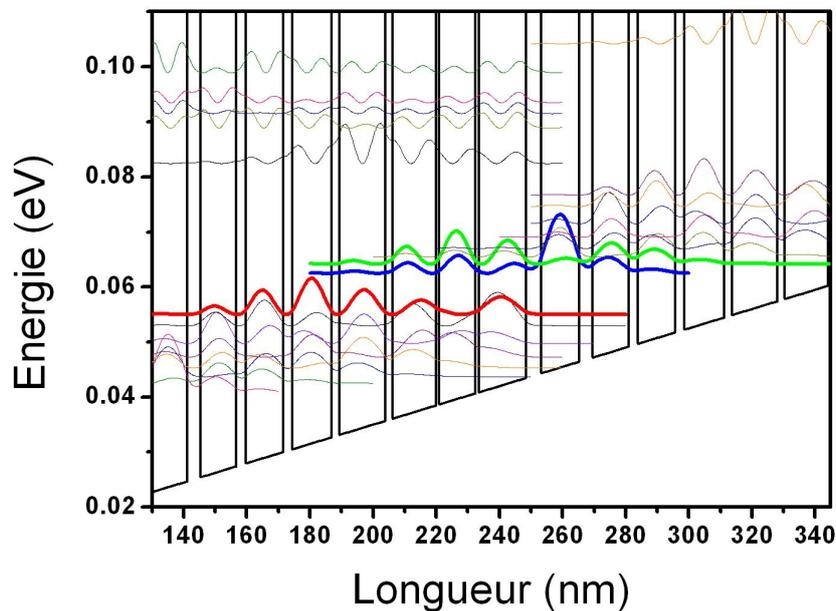


FIGURE A.1 – Structure de bande de l'échantillon V455 BTC pour un champ d'alignement de 1.75 kV/cm.

Les caractéristiques L-I-V réalisées pour cet échantillon est une mesure à deux points, ne permettant pas de connaître la résistance de contact, rendant difficile

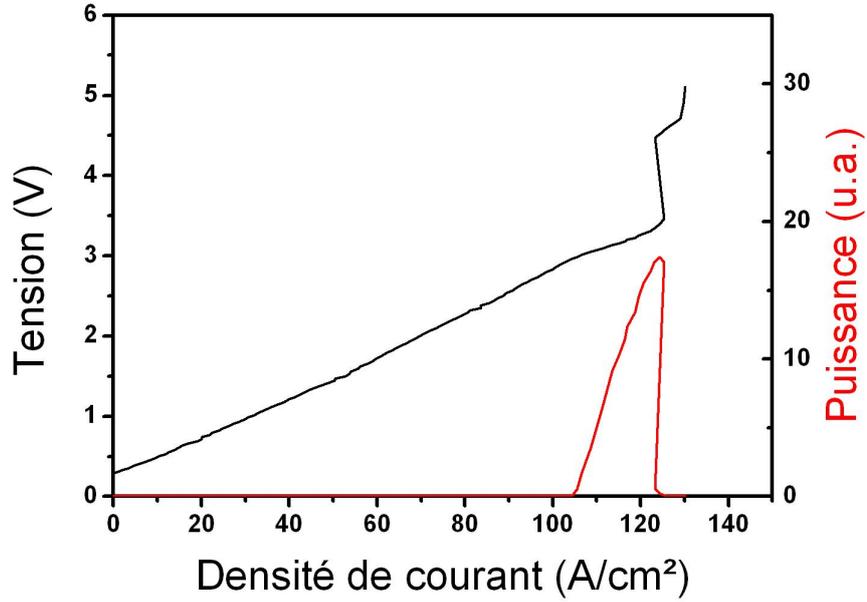


FIGURE A.2 – Caractéristique L-I-V de l'échantillon V455 BTC.

l'évaluation du champ électrique dans la région active. La figure A.2 montre les caractéristiques L-I-V de cet échantillon.

Pour réaliser la calibration il faut estimer la résistance de contact :

$$R = \frac{V_m - V_{sim}}{I} \quad (\text{A.1})$$

où V_m est la tension mesuré au maximum de puissance optique, V_{sim} est la tension estimé pour l'alignement optimal dans les simulations ($= E_{app} \times h$) avec h l'épaisseur de la région active. Cela permet ensuite d'accéder au champ dans la région active simplement en convertissant les données L-I-V par la relation :

$$E_{RA} = \frac{V - RI}{h} \quad (\text{A.2})$$

La figure A.3 montre la caractéristique L-I-E convertie par ce procédé.

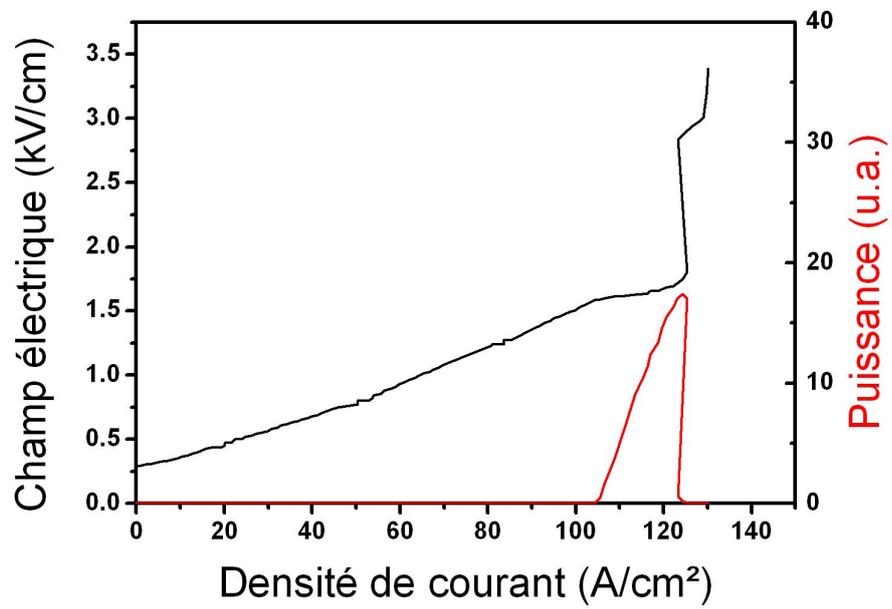


FIGURE A.3 – Caractéristique convertie L-I-E.

Calcul des indices proche-IR et THz dans le GaAs

Une approche bien connue qui tient compte de l'effet du gap est celle de l'oscillateur harmonique effectif [Wemple 1971]. Cela consiste à assimiler l'ensemble des transitions interbandes à une résonance d'un oscillateur de fréquence ν_{oe} avec une force d'oscillateur qui vaut $\frac{\pi E_d}{2}$. Le calcul de l'indice optique s'appuie sur l'équation de Sellmeier [Rosencher 2002] :

$$n^2 = 1 + \frac{E_{oe}E_d}{E_{oe}^2 - (h\nu)^2} \quad (\text{B.1})$$

Cette équation présente un bon accord en général pour les semiconducteur. Cependant, par soucis de précision, une approche plus phénoménologique est employée. Pour cela, il faut s'appuyer sur la relation de Kramers-Kronig qui lie la partie réelle à la partie imaginaire de la constante diélectrique par :

$$\varepsilon_1(E) = 1 + \frac{2}{\pi} VP \int_0^\infty \frac{E' \varepsilon_2(E')}{E'^2 - E^2} dE' \quad (\text{B.2})$$

Le modèle d'Afromowitz consiste à approximer la partie imaginaire de la constante diélectrique par :

$$\begin{cases} \eta E^4 & \text{si } E_g < E < E_f \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{B.3})$$

où $\eta = \frac{\pi}{2} \frac{E_d}{E_{oe}^3(E_{oe}^2 - E_g^2)}$ et $E_f = \sqrt{2E_{oe}^2 - E_g^2}$. Finalement, la partie réelle de la constante diélectrique s'écrit sous la forme :

$$\varepsilon(E) = 1 + M_{-1} + M_{-3}E^2 + \frac{\eta}{\pi} \ln \left[\frac{E_f^2 - E^2}{E_g^2 - E^2} \right] \quad (\text{B.4})$$

où M_i sont les moments d'ordre i . Pour le GaAs, $E_{oe} = 3.65$ eV, $E_d = 36.1$ eV, $E_f = 4.96$ eV et $E_g = 1.424$ eV à 300 K. Les expériences ont été réalisées à 10 K environ. Par simplicité, la dispersion de l'indice est décalée en énergie par la relation [Blakemore 1982] :

$$E_g = 1.519 - 5.405 \cdot 10^{-4} \frac{T^2}{T + 204} \quad (\text{B.5})$$

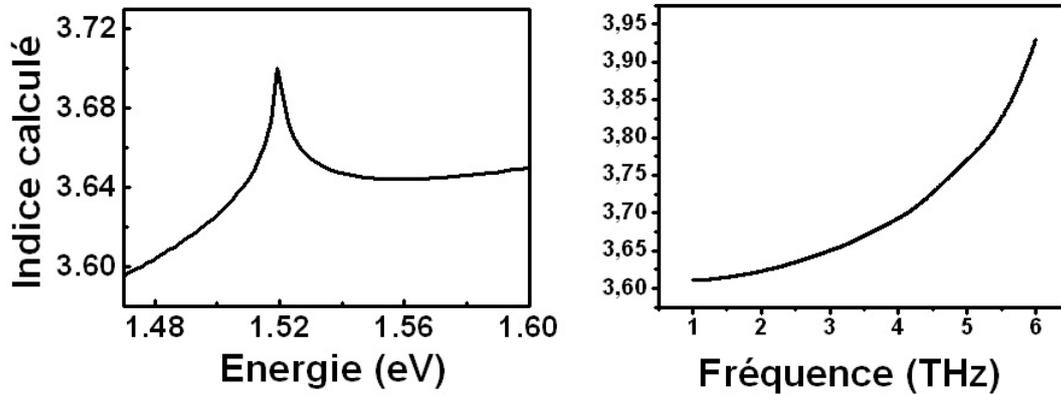


FIGURE B.1 – **A gauche** : Dispersion de la partie réelle de l'indice pour le proche-IR dans le GaAs massif à 10 K calculé à partir du modèle d'Afromowitz. **A droite** : Dispersion aux fréquences THz dans le GaAs

La figure B.1 présente les courbes de l'indice calculé dans le GaAs à 10 K pour le proche-IR et l'indice aux fréquences THz issu des tables du Palik [Palik 1998]. Aux fréquences THz, la dispersion est dominée par les phonons optiques. L'indice autour du gap varie fortement donnant la possibilité pour des longueurs d'onde bien choisies de part et d'autre du maximum (situé à 1.519 eV) d'avoir des indices permettant l'accord de phase.

Liste des publications et communications

Brevets

S. S. Dhillon, J. Madéo, C. Sirtori, "Convertisseur optique de fréquences", Brevet n°1003880- déposé le 30 septembre 2010

Publications

1. D. Oustinov, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Madéo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, S. Dhillon, "Phase seeding of a terahertz quantum cascade laser", *Nature Communications*, 1, **69** (2011)
2. 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 antireflection coatings", *Applied Physics Letters*, **98**, 101102 (2011)
3. J. Madéo, N. Jukam, D. Oustinov, M. Rosticher, R. Rungsawang, J. Tignon, S. Dhillon, "Frequency tunable terahertz interdigitated photoconductive antennas", *Electronics Letters*, **46**(9), 611 (2010) + article associé : « Tuning into terahertz », H. Dyball, *Electronics Letters*, **46**, 602, (2010)
4. 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", *Applied Physics Letters*, **96**, 1 (2010)
5. J. R. Freeman, J. Madéo, A. Brewer, 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", *Applied Physics Letters*, **96**, 5 (2010)
6. N. Jukam, 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*,

7. N. Jukam, 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", *Applied Physics Letters*, **94**, 251108 (2009)

Actes de conférence

1. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, R. Rungsawang, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Ultrafast Gain Switching of THz quantum cascade lasers", *Proc. SPIE*, 7937 (2011)
2. S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Rungsawang, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon, "Integrated pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", *Proc. SPIE*, 7945 (2011)

Autres communications

1. J. Madéo, N. Jukam, D. Oustinov, R. Rungsawang, J. Maysonnave, P. Cavalié, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon and S. S. Dhillon, "Phase seeding of a terahertz quantum cascade lasers", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2011)*, Baltimore (USA)
2. R. Rungsawang, F. Perez, D. Oustinov, J. Madéo, J. Gomez, N. Jukam, J. Maysonnave, P. Cavalié, T. Wojtowicz, S. S. Dhillon and J. Tignon, "Measuring the terahertz radiation from optically induced spins in diluted magnetic semiconductors", *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2011)*, Baltimore (USA)
3. N. Jukam, D. Oustinov, R. Rungsawang, J. Madéo, J. Maysonnave, P. Cavalié, J. Tignon, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, "Phase seeding of a THz quantum cascade lasers", *Optical Terahertz Science and Technology 2011*, Santa Barbara (USA)
4. R. Rungsawang, N. Jukam, J. Maysonnave, P. Cavalié, J. Madéo, D. Oustinov, S. S. Dhillon, P. Gellie, S. Barbieri, C. Sirtori, H. E. Beere, D. A. Ritchie and J. Tignon, "Gain Enhancement in Terahertz Quantum Cascade Lasers using

Anti-Reflection Coating", GDR-E THz 2010, Paris

5. S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Rungsawang, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet and J. Tignon, "Integrated Terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", GDR-E THz 2010, Paris
6. J. Tignon, N. Jukam, R. Rungsawang, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, "Quantum Cascade Laser based THz amplifiers", European Optical Society (EOS) Annual Meeting, 2010, Paris
7. S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Rungsawang, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet and J. Tignon, "Terahertz pulse generation and amplification within terahertz quantum cascade lasers", International Conference on Infrared and Millimeter Waves/THz Electronics (IRMMW-THz), 2010 Rome (Italy)
8. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies and J. Tignon, "Gain switching of a terahertz quantum cascade laser for THz pulse amplification", International Conference on Infrared and Millimeter Waves/THz Electronics (IRMMW-THz), 2010, Rome (Italie)
9. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Colombelli, P. Dean, M. Salih, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Gain studies of phonon-depopulation based terahertz quantum cascade lasers using terahertz time domain spectroscopy", International Conference on Infrared and Millimeter Waves/THz Electronics (IRMMW-THz), 2010, Rome (Italie)
10. N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, R. Rungsawang, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies and J. Tignon, "Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser", International Quantum Cascade Lasers School and Workshop (IQCLW), 2010, Florence (Italie)
11. N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, R. Rakchanok, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, S. S. Dhillon, J. Tignon, "Amplification d'ondes térahertz dans un laser à cascade quantique en régime non stationnaire", 12eme journées de la matière condensée (JMC12), 2010, Troyes

-
12. R. Rungsawang, S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Rungsawang, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet and J. Tignon, "Integrated Terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS), 2010, Seoul (Corée du sud)
 13. N. Jukam, R. Rungsawang, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies and J. Tignon, "Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser", International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS), 2010, Seoul (Corée du sud)
 14. R. Rungsawang, S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Colombelli, P. Dean, M. Salih, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Terahertz time domain spectroscopy of phonon-depopulation based quantum cascade lasers", International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS), 2010, Seoul (Corée du sud)
 15. S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Rungsawang, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet and J. Tignon, "Integrated Terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), 2010, San José (USA)
 16. N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies and J. Tignon, "Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), 2010, San José (USA)
 17. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Colombelli, P. Dean, M. Salih, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Terahertz time domain spectroscopy of phonon-depopulation based quantum cascade lasers", Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO), 2010, San José (USA)
 18. J. Maysonnave, P. Cavalié, J. Madéo, D. Oustinov, R. Rungsawang, N. Jukam, S. Dhillon, J. Tignon, "Ultra-fast terahertz time-domain spectroscopy of quantum cascade lasers", Paris-Zurich meeting of young scientists in nanophotonics, 2010, Paris
 19. N. Jukam, S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, S. Hameau, S. Barbieri, C. Manquest, X. Marcadet, C. Sirtori, J. Tignon, "Gain and dynamics of terahertz quantum cascade lasers using terahertz time domain spectroscopy", OTS 2009, International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology, 2009, Santa Barbara (USA)

-
20. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Gain switching of a terahertz quantum cascade laser", GDR-E THz 2009, Montpellier (France).
 21. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, R. Colombelli, P. Dean, M. Salih, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Terahertz time domain spectroscopy of phonon-depopulation based quantum cascade lasers", THz-days 2009, Lille (France)
 22. S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet and J. Tignon, "Integrated Terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers", THz-days 2009, Lille (France)
 23. S. S. Dhillon, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, C. Manquest, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon, "Gain switching of a terahertz quantum cascade laser using terahertz time-domain techniques", THz-days 2009, Lille (France).
 24. N. Jukam, S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, S. Hameau, S. Barbieri, P. Filloux, X. Marcadet, C. Sirtori, and J. Tignon, "Application de la Spectroscopie THz dans le Domaine Temporel aux Lasers à Cascade Quantique THz", JMC11, Journées de la Matière Condensée, 2008, Strasbourg

Bibliographie

- [Abraham 2010] E. Abraham, A. Younus, J. C. Delagnes et P. Mounaix. *Terahertz-pulse imaging for non-destructive analysis of layered art paintings*. IRMMW-THz, 2010. (Cit  en page 8.)
- [Adam 2006] A. J. Adam, I Kasalynas, J. N. Hovenier, T. O. Klaassen, J. R. Gao, E. E. Orlova, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu et J. L. Reno. *Beam patterns of terahertz quantum cascade lasers with subwavelength cavity dimensions*. Appl. Phys. Lett., vol. 88, 2006. (Cit  en page 44.)
- [Afromowitz 1974] M. A. Afromowitz. *Refractive index of $Ga_{1-x}Al_xAs$* . Sol. Sta. Comm., vol. 15, 1974. (Cit  en page 152.)
- [Atanasov 1994] R. Atanasov, F. Basani et V. M. Agranovich. *Second-order non-linear optical susceptibility of asymmetric quantum wells*. Phys. Rev. B, vol. 50, 1994. (Cit  en pages 112 et 155.)
- [Auston 1980] D. H. Auston, A. M. Johnson, P. R. Smith et J. C. Bean. *Picosecond optoelectronic detection, sampling, and correlation measurements in amorphous semiconductors*. Applied Physics Letters, no. 37, page 371, 1980. (Cit  en page 10.)
- [Auston 1984a] D. H. Auston, K. P. Cheung et P. R. Smith. *Picosecond photoconducting hertzian dipole*. Applied Physics Letters, no. 45, page 284, 1984. (Cit  en pages 3 et 8.)
- [Auston 1984b] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis et D. A. Keinman. *Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media*. Physical Review Letters, no. 53, pages 1555–1558, 1984. (Cit  en page 10.)
- [Bahriz 2008] M. Bahriz. In Lasers   cascade quantique   plasmons de surface et leurs applications aux cristaux photoniques. Th se de doctorat- Paris Sud, 2008. (Cit  en page 28.)
- [Barbieri 2004] S. Barbieri, J. Alton, H. E. Beere, J. Fowler, E. H. Linfield et D. A. Ritchie. *2.9 THz quantum cascade lasers operating up to 70 K in continuous wave*. App. Phys. Lett., vol. 85, 2004. (Cit  en pages 86, 95, 131 et 144.)
- [Bastard 1988] G. Bastard. In Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures. Les Editions de Physique, 1988. (Cit  en pages 31 et 140.)
- [Bechtel 1976] J. H. Bechtel et W. L. Smith. *Two-photon absorption in semiconductors with picosecond laser pulses*. Phys. Rev. B, vol. 13, 1976. (Cit  en page 120.)
- [Beck 2002] M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilgens, E. Gini et H. Melchior. *Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature*. Science, vol. 295, 2002. (Cit  en page 28.)

-
- [Belkin 2007] M. Belkin, F. Capasso, A. Belyanin, D. Sivco, A. Cho, D. Oakley, C. Vineis et G. Turner. *Terahertz quantum-cascade-laser source based on intracavity difference-frequency generation*. Nat. Phot., vol. 1, 2007. (Cité en pages 2, 119 et 124.)
- [Bengloan] J.-Y. Bengloan. (Cité en page 90.)
- [Benveniste 2009] E. Benveniste, S. Laurent, A. Vasanelli, C. Manquest, C. Sirtori, F. Teulon, M. Carras et X. Marcadet. *Measurement of gain and losses of a midinfrared quantum cascade laser by wavelength chirping spectroscopy*. App. Phys. Lett., vol. 94, 2009. (Cité en page 75.)
- [Blakemore 1982] J .S. Blakemore. *Semiconducting and other major properties of gallium arsenide*. J. Appl. Phys., vol. 53, 1982. (Cité en pages 152 et 167.)
- [Boyd 2008] R. W. Boyd. In *Nonlinear optics - Third edition*. Academic press, 2008. (Cité en pages 111, 115, 116 et 118.)
- [Bucherseifer 2000] M. Bucherseifer, M. Nagel, P. Haring Bolivar, H. Kurz, A. Bosserhoff et R. Buttner. *Label-free probing of the binding state of DNA by time-domain terahertz imaging*. Appl. Phys. Lett., vol. 77, 2000. (Cité en page 8.)
- [Burghoff 2011] D. Burghoff, T.-Y. Kao, A. W. Min Lee, Q. Hu et J. Reno. *A terahertz emitter monolithically integrated with a quantum cascade laser*. App. Phys. Lett, vol. 98, page 061112, 2011. (Cité en page 76.)
- [Cai 1997] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata, J. Wynn, L. Pfeiffer et J. Frederici. *Design and performance of singular electric field terahertz photoconducting antennas*. App. Phys. Lett., no. 71, page 2076, 1997. (Cité en pages 46 et 47.)
- [Callebaut 2003] H. Callebaut, S. Kumar, B. S. Williams, Q. Hu et J. L. Reno. *Importance of electron-impurity scattering for electron transport in terahertz quantum cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. 84, 2003. (Cité en page 38.)
- [Carter 2003] S. G. Carter, V. Ciulin, M. S. Sherwin, M. Hanson, A. Huntington, L. A. Coldren et A. C. Gossard. *Terahertz electro-optic wavelength conversion in GaAs quantum wells : Improved efficiency and room-temperature operation*. Appl. Phys. Lett., vol. 84, 2003. (Cité en pages 4, 112 et 123.)
- [Carter 2005] S. G. Carter, V. Ciulin, M. hanson, A. S. huntington, C. S. Wang, A. C. Gossard, L. A. Coldren et M. S. Sherwin. *Terahertz-optical mixing in undoped and doped GaAs quantum wells : from excitonic to electronic intersubband transitions*. Phys. Rev. B, vol. 72, 2005. (Cité en page 124.)
- [Castro-Camus 2005] E. Castro-Camus, J. Lloyd-Hughes et M. B. Johnston. *Three-dimensional carrier-dynamics simulation of terahertz photoconductive switches*. Phys. Rev. B, no. 71, 2005. (Cité en page 23.)
- [Chassagneux 2009] Y. Chassagneux, R. Colombelli, W. Maineult, S. Barnieri, H. E. Beere, D. A. Ritchie, S. p. Khanna, E. H. Linfield et A. G. Davies. *Electrically pumped photonic-crystal terahertz lasers controlled by boundary conditions*. Nature, vol. 457, 2009. (Cité en page 2.)

-
- [Citrin 1999] D. S. Citrin. *Terahertz sideband generation and coherent control in semiconductor microcavities*. Phys. Rev. Lett., vol. 82, 1999. (Cité en page 121.)
- [Citrin 2001] D. S. Citrin et S. Hughes. *Terahertz sideband generation in a semiconductor optical amplifier*. Appl. Phys. Lett., vol. 78, 2001. (Cité en page 121.)
- [Ciulin 2004] V. Ciulin, S. G. Carter, M. S. Sherwin, A. Huntington et L. A. Coldren. *Terahertz optical mixing in biased GaAs single quantum wells*. Phys. Rev. B, vol. 70, 2004. (Cité en page 150.)
- [Coburn 1982] J. W. Coburn. In Plasma etching and reactive ion etching. American Institute of Physics - Technology and engineering, 1982. (Cité en page 59.)
- [Colombelli 2004] R. Colombelli, K. Srinivasan, M. Troccoli, O. Painter, C. Gmachl, F. Capasso, D. Tennant, A. Sergent, D. Sivco et A. Cho. *Quantum cascade photonic crystal surface emitting laser*. Science, vol. 302, 2004. (Cité en page 40.)
- [Coutaz 2008] J.-L. Coutaz et al. In Optoélectronique térahertz. EDP Sciences, 2008. (Cité en pages 22, 23 et 24.)
- [Devenson 2007] J. Devenson, R. Teissier, O. Cathabard et A. N. Baranov. *InAs/AlSb quantum cascade lasers emitting below 3 μm* . App. Phys. Lett., vol. 90, 2007. (Cité en pages 28 et 94.)
- [Dhillon 2007] S. S. Dhillon, C. Sirtori, J. Alton, S. Barbieri, A. De Rossi, H. E. Beere et D. A. Ritchie. *Terahertz transfer onto a telecom optical carrier*. Nat. Phot., vol. 1, 2007. (Cité en pages 4, 126 et 146.)
- [Diederichs 2006] C. Diederichs, J. Tignon, G. Dasbach, C. Ciuti, A. Lemaitre, J. Bloch, P. Roussignol et C. Delalande. *Parametric oscillation in vertical tripe microcavities*. Nature, vol. 440, 2006. (Cité en page 120.)
- [Dreyhaupt 2005] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy et M. Helm. *High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor*. App. Phys. Lett., no. 86, page 121114, 2005. (Cité en pages 3, 45 et 47.)
- [Duvillaret 1996] L. Duvillaret, F. Garet et J.-L. Coutaz. *A reliable method for extraction of material parameters in terahertz time-domain spectroscopy*. IEEE JSTQE, no. 2, page 739, 1996. (Cité en page 10.)
- [Duvillaret 2001] L. Duvillaret, F. Garet, J.-F. Roux et J.-L. Coutaz. *Analytical modeling and optimization of terahertz time-domain spectroscopy experiments using photoswitches as antennas*. IEEE-JSTQE, no. 7, page 615, 2001. (Cité en pages 22 et 23.)
- [Esaki 1970] L. Esaki et R. Tsu. *Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors*. IBM J. Res. Dev., vol. 14, 1970. (Cité en pages 27 et 32.)
- [Faist 1994] J. Faist, F. Capasso, D. Sivco, C. Sirtori, A. Hutchinson et A. Cho. *Quantum cascade laser*. Science, vol. 264, 1994. (Cité en pages 1 et 27.)
- [Faist 2001] J. Faist, M. Beck, T. Aellen et E. Gini. *Quantum cascade lasers based on a bound-to-continuum transition*. Appl. Phys. Lett., vol. 78, 2001. (Cité en page 28.)

-
- [Fattinger 1988] C. Fattinger et D. Grischkowsky. *Point source terahertz optics*. Appl. Phys. Lett., no. 53, pages 1555–1558, 1988. (Cité en page 10.)
- [Federici 2005] J. F. Federici, B. Schulkin, F. Huang, D. Gary, R. Barat, F. Oliveira et D. Zimdars. *Thz imaging and sensing for security applications-explosives, weapons and drugs*. Semicond. Sci. Technol., vol. 20, pages 266–280, 2005. (Cité en page 9.)
- [Ferreira 1989] R. Ferreira et G. Bastard. *Evaluation of some scattering times for electrons in unbiased and biased single and multiple quantum-well structures*. Phys. Rev. B, vol. 40, 1989. (Cité en page 37.)
- [Ferguson 2002] B. Ferguson et X.-C Zhang. *Materials for terahertz science and technology*. Nat. Mat., vol. 1, 2002. (Cité en page 1.)
- [Fiore 2007] A. Fiore, E. Rosencher, B. Vinter, D. Weill et V. Berger. *Second order optical susceptibility of biased quantum wells in the interband regime*. Phys. Rev. B, vol. 51, 2007. (Cité en pages 112 et 155.)
- [Franken 1961] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters et G. Weinreich. *Generation of optical harmonics*. Phys. Rev. Lett., vol. 7, 1961. (Cité en page 111.)
- [Freeman 2008] J. R. Freeman, O. Marshall, H. E. Beere et D. A. Ritchie. *Improved wall plug efficiency of a 1.9 THz quantum cascade laser by an automated design approach*. Appl. Phys. Lett., vol. 93, page 191119, 2008. (Cité en page 84.)
- [Freeman 2010] J. R. Freeman, J. Madéo, A. Brewer, S. Dhillon, O. P. Marshall, N. Jukam, D. Oustinov, J. Tignon, H. E. Beere et D. A. Ritchie. *Dual wavelength emission from a terahertz quantum cascade laser*. App. Phys. Lett., vol. 96, 2010. (Cité en pages 2, 4, 95, 97, 98, 99 et 100.)
- [Freeman 2011] J. R. Freeman, A. brewer, J. Madéo, P. Cavalié, S. S. Dhillon, H. E. Beere et D. A Ritchie. *Broadband heterogeneous terahertz quantum cascade lasers*. En cours de publication, 2011. (Cité en pages 105 et 108.)
- [Gallot 2006] G. Gallot, J. Zhang, R. W. McGowan, T.-I. Jeon et D. Grischkowsky. *Measurements of the THz absorption and dispersion of ZnTe and their relevance to the electro-optic detection of THz radiation*. App. Phys. Lett., no. 74, page 3450, 2006. (Cité en pages 14 et 55.)
- [Garmire 1999] E. Garmire, A. Kost et J. Khurgin. In *Nonlinear optics in semiconductors II*. Academic Press, 1999. (Cité en pages 111, 120, 147 et 155.)
- [Glover 2005] I. A. Glover, S. R. Pennock et P. R. Shepherd. In *Microwave devices, circuits and subsystems for communications engineering*. John Wiley and Sons, 2005. (Cité en page 8.)
- [Gmachl 2002] C. Gmachl, D. Sivco, R. Collombelli, F. Capasso et A. Cho. *Ultra-broadband semiconductor laser*. Nature, vol. 415, 2002. (Cité en page 94.)
- [Gurnick 1983] M. Gurnick et T. DeTemple. *Synthetic nonlinear semiconductors*. IEEE- JQE, vol. 19, 1983. (Cité en page 120.)

-
- [Hakki 1975] B. W. Hakki et T. L. Paoli. *Gain spectra in GaAs double-heterostructure injection lasers*. J. Appl. Phys., vol. 46, 1975. (Cité en page 75.)
- [Han 2001a] P. Y. Han, M. Tani, M. Usami, S. Kono, R. Kersting et X.-C. Zhang. *A direct comparison between terahertz time-domain spectroscopy and far-infrared Fourier transform spectroscopy*. J. Appl. Phys., vol. 89, 2001. (Cité en pages 2 et 10.)
- [Han 2001b] P. Y. Han et X.-C. Zhang. *Free-space coherent broadband terahertz time-domain spectroscopy*. Meas. Sci. Technol., no. 12, pages 1747–1756, 2001. (Cité en pages 10 et 15.)
- [Helm 1988] M. Helm, E. Colas, P. England, F. DeRosa et S. J. Allen. *Observation of grating-induced intersubband emission from GaAs/AlGaAs superlattices*. Appl. Phys. Lett., vol. 53, 1988. (Cité en page 30.)
- [Hu 2003] C. M. Hu, C. Zehnder, C. Heyn et D. Heitmann. *THz collective spin-flip excitation of a two-dimensional electron system*. Phys. Rev. B, vol. 20, page 201302, 2003. (Cité en page 9.)
- [Hugi 2009] A. Hugi, R. Terazzi, Y. Bonetti, A. Wittman, M. Fischer, M. Beck, J. Faist et E. Gini. *External cavity quantum cascade laser tunable from 7.6 to 11.4 μm* . App. Phys. Rev., vol. 95, 2009. (Cité en page 94.)
- [Jepsen 1996] P. Uhd Jepsen, R. H. Jacobsen et S. R. Keiding. *Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas*. J. Opt. Soc. Am. B, no. 13, page 2424, 1996. (Cité en pages 20, 51, 53 et 67.)
- [Jukam 2008a] N. Jukam, S. Dhillon, Z. Y. Zhao, G. Duerr, J. Armijo, N. Sirmons ans S. Hameau, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet et J. Tignon. *Gain measurements of THz quantum cascade lasers using THz Time Domain Spectroscopy*. IEEE JSTQE, vol. 14, page 436, 2008. (Cité en pages 2, 76, 80, 89 et 90.)
- [Jukam 2008b] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, Z.-Y. Zhao, S. Hameau, S. Barbieri, A. Vasanelli, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet et J. Tignon. *Investigation of spectral gain narrowing in quantum cascade lasers using terahertz time domain spectroscopy*. App. Phys. Lett., vol. 93, 2008. (Cité en pages 74, 76 et 89.)
- [Jukam 2009a] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, C. Manquest, S. Barbieri, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. Giles Davies et J. Tignon. *Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser*. Nat. Phot., vol. 3, 2009. (Cité en page 109.)
- [Jukam 2009b] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, J. Tignon, R. Collobelli, P. Dean, M. Salih, S. p. Khanna, E. H. Linfield et A. G. Davies. *Terahertz time domain spectroscopy of phonon-depopulation based quantum cascade lasers*. App. Phys. Lett., vol. 94, page 251108, 2009. (Cité en pages 3 et 74.)

-
- [Kazarinov 1971] R. F. Kazarinov et R. A. Suris. *Possibility of amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice*. Sov. Phys. Semicond., vol. 5, 1971. (Cit  en page 27.)
- [K hler 2002] R. K hler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. Giles Davies, D. A. Ritchie, R. C. Lotti et F. Rossi. *Terahertz semiconductor-heterostructure laser*. Nature, vol. 417, 2002. (Cit  en pages 1 et 28.)
- [K hler 2003] R. K hler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. Giles Davies, D. A. Ritchie, S. S. Dhillon et C. Sirtori. *High-performance continuous wave operation of superlattice terahertz quantum cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. 82, 2003. (Cit  en pages 73 et 75.)
- [Khurgin 1987] J. Khurgin. *Second-order susceptibility of asymmetric coupled quantum wells structures*. Appl. Phys. Lett., vol. 51, 1987. (Cit  en page 120.)
- [Khurgin 1988] J. Khurgin. *Second-order nonlinear effects in asymmetric quantum well structures*. Phys. Rev. B, vol. 38, 1988. (Cit  en page 155.)
- [Kim 2006] D. S. Kim et D. S. Citrin. *Coulomb and radiation screening in photoconductive terahertz sources*. Appl. Phys. Lett., vol. 88, 2006. (Cit  en page 23.)
- [Kohen 2004] S. Kohen, B. S. Williams et Q. Hu. *Electromagnetic modeling of terahertz quantum cascade laser waveguides and resonators*. J. Appl. Phys., vol. 97, 2004. (Cit  en page 41.)
- [Kohen 2005] S. Kohen, B. S. Williams et Q. Hu. *Electromagnetic modeling of terahertz quantum cascade laser waveguide and resonators*. J. App. Phys., vol. 97, pages 053106–1/053106–9, 2005. (Cit  en page 89.)
- [Kono 1997] J. Kono, M. Y. Su, T. Inoshita, T. Noda, M. S. Sherwin, S. J. Allen et H. Sakaki. *Resonant terahertz optical sideband generation from confined magnetoexcitons*. Phys. Rev. Lett., vol. 79, 1997. (Cit  en pages 121 et 122.)
- [Kono 2001] S. Kono, M. Tani et K. Sakai. *Ultrabroadband photoconductive detection : Comparison with free-space electro-optic sampling*. Appl. Phys. Lett., vol. 79, 2001. (Cit  en page 12.)
- [Kr ll 2007] J. Kr ll, J. Darmo, S. S. Dhillon, X. Marcadet, M. Calligaro, C. Sirtori et K. Unterrainer. *Phased-resolved measurements of stimulated emission in a laser*. Nature Letters, no. 449, page 698, 2007. (Cit  en pages 2, 9, 10 et 76.)
- [Kumar 2009] S. Kumar, Q. Hu et J. L. Reno. *186 K operation of terahertz quantum cascade lasers based on a diagonal design*. Appl. Phys. Lett., vol. 94, 2009. (Cit  en pages 2, 28 et 144.)
- [Lee 2009] Y. S. Lee. In Principles of terahertz science and technology. Springer, 2009. (Cit  en page 20.)
- [Leuliet 2006] A. Leuliet, A. Vasanelli, A. Wade, G. Fedorov, D. Smirnov, G. Bastard et C. Sirtori. *Electron scattering spectroscopy by a high magnetic field in quantum cascade lasers*. Phys. Rev. B, vol. 73, 2006. (Cit  en page 36.)

-
- [Levinson 2005] H. J. Levinson. In Principles of lithography. SPIE-The international Society for Optical Engineering, 2005. (Cit  en pages 56 et 64.)
- [Liu 2000] H. C. Liu et F. Capasso. In Intersubband transitions in quantum wells : Physics and device applications II. Academic Press, 2000. (Cit  en pages 1 et 35.)
- [Ludwig 1996] C. Ludwig et J. Kuhl. *Studies of the temporal and spectral shape of terahertz pulses generated from photoconducting switches*. Appl. Phys. Lett., no. 69, page 1194, 1996. (Cit  en page 23.)
- [Luo 2007] H. Luo, S. Laframboise, Z. Wasilewski, G. C. Aers, H. C. Liu et J. C. Cao. *Terahertz quantum cascade lasers based on a three well active module*. Appl. Phys. Lett., vol. 90, 2007. (Cit  en page 37.)
- [Mad o 2010] J. Mad o, N. Jukam, D. Oustinov, M. Rosticher, R. Rungsawang, J. Tignon et S. S. Dhillon. *Frequency tunable terahertz interdigitated photoconductive antennas*. Elec. Lett., vol. 46, no. 9, page 810, 2010. (Cit  en pages 3, 46 et 66.)
- [Malher 2004] L. Malher, R. K hler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, D. D. Ritchie et A. Giles Davies. *Single-mode operation of terahertz quantum cascade lasers with distributed feedback resonators*. Appl. Phys. Lett., vol. 84, pages 5446–5448, 2004. (Cit  en pages 2 et 40.)
- [Martl 2011] M. Martl, J. Darmo, C. Deutsch, M. Brandstetter, A. Maxwell Andrews, P. Kiang, G. Strasser et K. Unterrainer. *Gain and losses in THz quantum cascade laser with metal-metal waveguide*. Opt. Exp., vol. 19, no. 2, page 733, 2011. (Cit  en page 76.)
- [Maslov 2000] A. V. Maslov et D. S. Citrin. *Optical absorption and sideband generation in quantum wells driven by a terahertz electric field*. Phys. Rev. B, vol. 62, 2000. (Cit  en page 121.)
- [Miles 2006] R. E. Miles, X.-C. Zhang, H. Eisele et A. Krotkus. In Terahertz frequency detection and identification of materials and objects. Springer, 2006. (Cit  en page 1.)
- [Mukherjee 2006] B. Mukherjee. In optical WDM networks. Springer Science, 2006. (Cit  en page 157.)
- [Nuss 1991] M. C. Nuss, K. W. Goossen, J. P. Gordon, P. M. Mankiewich, M. L. OMalley et M. Bhushan. *Terahertz time-domain spectroscopy of the conductivity and superconducting band gap in niobium*. J. Appl. Phys., vol. 70, pages 2238–2241, 1991. (Cit  en page 9.)
- [Oustinov 2010] D. Oustinov, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Mad o, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon et S. S. Dhillon. *Phase seeding of a quantum cascade laser*. Nature Commun., vol. 1, 2010. (Cit  en pages 3 et 84.)
- [Oustinov 2011] D. Oustinov. In Etude de lasers   cascade quantique par spectroscopie t rahertz dans le domaine temporel. Th se de doctorat- Paris 6, 2011. (Cit  en pages 8 et 24.)

-
- [Owschimikow 2003] N. Owschimikow, C. Gmachl, A. Belyanin, V. Kocharovskiy, D. Sivco, R. Collombelli, F. Capasso et A. Cho. *Resonant second order nonlinear optical process in quantum cascade lasers*. Phys. Rev. Lett., vol. 90, 2003. (Cité en page 124.)
- [Palik 1998] E. D. Palik. In Handbook of optical constants of solids. Academic press, 1998. (Cité en pages 48, 70, 152 et 168.)
- [Panish 1980] M. B. Panish. *Molecular beam epitaxy*. Science, vol. 208, 1980. (Cité en page 27.)
- [Phillips 1999] C. Phillips, M. Su, M. S. Sherwin, J. Ko et L. Coldren. *Generation of first-order terahertz optical sidebands in asymmetric coupled quantum wells*. Appl. Phys. Lett., vol. 75, 1999. (Cité en page 121.)
- [Planken 2001] P. Planken, H.-K. Nienhuys, H. J. Bakker et T. Wienckeback. *Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe*. J. Opt. Soc. Am. B, no. 18, page 313, 2001. (Cité en page 12.)
- [Raether 1988] H. Raether. In Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings. Springer-Verlag, 1988. (Cité en page 43.)
- [Revin 2004] 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 et A. Vicet. *Measurements of optical losses in mid-infrared semiconductor lasers using Fabry-Pérot transmission oscillations*. J. App. Phys., vol. 95, 2004. (Cité en pages 74 et 75.)
- [Rodriguez 1996] G. Rodriguez et A. J. Taylor. *Screening of the bias field in terahertz generation from photoconductors*. Opt. Lett., no. 21, page 1046, 1996. (Cité en page 23.)
- [Rosencher 2002] E. Rosencher et B. Vinter. In Optoélectronique. Dunod, 2002. (Cité en pages 116, 154 et 167.)
- [Sakai 2005] K. Sakai. *Terahertz optoelectronics*. Springer, 2005. (Cité en page 24.)
- [Scalari 2007] G. Scalari, C. Walther, M. Fischer, R. Terazzi, H. Beere, D. Ritchie et J. Faist. *THz and sub-THz quantum cascade lasers*. Laser phot. Rev., vol. 3, 2007. (Cité en page 94.)
- [Shen 2003] Y. C. Shen, P.C. Upadhyay, E. H. Linfield, H. E. Beere et A. G. Davies. *Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature GaAs photoconductive emitters*. Appl. Phys. Lett., vol. 83, 2003. (Cité en page 70.)
- [Shen 2005] Y. C. Shen, T. Lo, P. F. Taday, B. E. Cole, W. R. Tribe et M. C. Kemp. *Detection and identification of explosives using terahertz pulsed spectroscopy*. App. Phys. Lett., vol. 86, 2005. (Cité en page 94.)
- [Shen 2008] Y. C. Shen et P. F. Taday. *Development and application of terahertz pulsed imaging for nondestructive inspection of pharmaceutical tablet*. IEEE JSTQE, vol. 14, page 407, 2008. (Cité en page 1.)

-
- [Shi 2009] W. Shi, L. Hou, Z. Liu et T. Tongue. *Terahertz generation from SI-GaAs stripline antenna with different structural parameters*. J. Opt. Soc. Am. B, no. 9, page 107, 2009. (Cit  en page 46.)
- [Siegman 1986] A. Siegman. Lasers. University science books, 1986. (Cit  en pages 11 et 73.)
- [Sirtori 1991] C. Sirtori, F. Capasso, D. Sivco, S. Chu et Y. Chu. *Observation of large second order susceptibility via intersubband transitions at $\lambda \sim 10 \mu\text{m}$ in asymmetric coupled AlInAs/GaInAs quantum wells*. Appl. Phys. Lett., vol. 59, 1991. (Cit  en page 112.)
- [Sirtori 1992] C. Sirtori, F. Capasso, D. Sivco et A. Cho. *Giant triply resonant third order nonlinear susceptibility in coupled quantum wells*. Phys. Rev. Lett., vol. 68, 1992. (Cit  en page 119.)
- [Smet 1996] J. H. Smet, C. G. Fonstad et Q. Hu. *Intrawell and interwell intersubband transitions in multiple quantum wells for far infrared sources*. J. Appl. Phys, vol. 79, 1996. (Cit  en page 36.)
- [Soole 1991] J. B. D. Soole et H. Schumacher. *InGaAs Metal-Semiconductor-Metal Photodetectors for Long Wavelength Optical Communications*. IEEE JQE, no. 27, page 737, 1991. (Cit  en page 52.)
- [Sutherland 2003] R. L. Sutherland, D. G. McLean et S. Kirkpatrick. In Handbook of nonlinear optics. Marcel Dekker Science, 2003. (Cit  en pages 116 et 117.)
- [Tonouchi 2007] M. Tonouchi. *Cutting-edge terahertz technology*. Nature Photonics, no. 1, page 104, 2007. (Cit  en pages 1, 8, 9 et 10.)
- [von Exeter 1989] M. von Exeter, C. Fattinger et D. Grischkowsky. *Terahertz time domain spectroscopy of water vapor*. Opt. Lett., vol. 14, 1989. (Cit  en page 8.)
- [Walther 2007] C. Walther, M. Fischer, G. Scalari, R. Terazzi, N. Hoyler et J. Faist. *Quantum cascade lasers operating from 1.2 to 1.6 THz*. Appl. Phys. Lett., vol. 91, 2007. (Cit  en page 28.)
- [Wemple 1971] S. H. Wemple et M. DiDomenico. *Behavior of the electronic dielectric constant in covalent and ionic materials*. Phys. Rev. B, vol. 3, 1971. (Cit  en page 167.)
- [West 1985] L. C. West et S. J. Eglash. *First observation of an extremely large-dipole infrared transition within the conduction band of a GaAs quantum well*. Appl. Phys. Lett., vol. 46, 1985. (Cit  en page 29.)
- [Williams 1990] R. Williams. In Modern GaAs processing methods. Artech house, 1990. (Cit  en page 24.)
- [Williams 2007] B. S. Williams. *Terahertz quantum cascade lasers*. Nat. Phot., vol. 1, 2007. (Cit  en pages 2, 43 et 44.)
- [Worral 2005] C. Worral, J. Alton, M. Houghton, S. Barbieri, H. E. Beere, D. A. Ritchie et C. Sirtori. *Continuous wave operation of a superlattice quantum*

-
- cascade laser emitting at 2 THz*. Opt. Exp., vol. 14, no. 1, page 171, 2005. (Cité en pages 36, 84, 86 et 144.)
- [Wu 1996] Q. Wu et X.-C. Zhang. *Ultrafast electro-optic field sensors*. App. Phys. Lett., no. 68, page 1604, 1996. (Cité en page 14.)
- [Wu 1997] Q. Wu et X.-C. Zhang. *7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor*. App. Phys. Lett., no. 70, page 1784, 1997. (Cité en pages 14 et 70.)
- [Xu 1992] L. Xu, X.-C. Zhang et D. H. Auston. *Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials*. Appl. Phys. Lett., vol. 61, 1992. (Cité en pages 8 et 11.)
- [Xu 2007] J. Xu, J. Hensley, D. Fenner, R. Green, L. Malher, A. Tredicucci, M. Allen, F. Beltram, H. Beere et D. Ritchie. *Tunable terahertz quantum cascade laser with an external cavity*. App. Phys. Lett., vol. 91, 2007. (Cité en pages 2 et 94.)
- [Yariv 1997] A. Yariv. In *Optical electronics in modern communications*. Oxford University Press, 1997. (Cité en pages 116 et 117.)
- [Zervos 2006] C. Zervos, M. D. Frogley, C. C. Phillips, D. O. Kundys, L. R. Wilson, J. W. Cockburn, M. Hopkinson et M. S. Skolnick. *Coherent near-infrared wavelength conversion in semiconductor quantum cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. 89, 2006. (Cité en pages 124 et 125.)
- [Zewail 2000] A. H. Zewail. *Femtochemistry : atomic-scale dynamics of chemical bond*. J. Phys. Chem. A, no. 104, page 5660, 2000. (Cité en page 11.)