

Optique non-linéaire résonante et contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique

Pierrick Cavalié

▶ **To cite this version:**

Pierrick Cavalié. Optique non-linéaire résonante et contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013. Français. NNT : . tel-00933128v1

HAL Id: tel-00933128

https://theses.hal.science/tel-00933128v1

Submitted on 19 Jan 2014 (v1), last revised 28 Jan 2014 (v2)

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.

UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité : **Science des Matériaux**

École Doctorale **397**

préparée au **Laboratoire Pierre Aigrain**

présentée par

Pierrick CAVALIÉ

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

Optique non-linéaire résonante et contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique

soutenue le 11 Octobre 2013 devant le jury composé de :

M. Daniel DOLFI	Rapporteur
M. François JULIEN	Rapporteur
M. William SACKS	Examinateur
M. Éric TOURNIÉ	Examinateur
Mme Angela VASANELLI	Examinatrice
M. Sukhdeep DHILLON	Encadrant de thèse
M. Jérôme TIGNON	Directeur de thèse

Remerciements

Après les trois années passées au laboratoire, les quatre mois passées à rédigées, après le temps de la soutenance et des dernières corrections vient le temps des remerciements. Conscient que de nombreuses personnes, passé cette section, s'arrêteront rapidement dans la lecture de ce manuscrit (à mon grand regret), je devrais y porter en théorie une application particulière. Comme je l'ai expérimenté pendant ma thèse, tous les phénomènes ne sont pas linéaires [1] et ces remerciements ne seront qu'une longue liste monotone des personnes ayant comptées pendant ma thèse et se termineront par le remerciement traditionnel à mes parents et ma famille qui m'ont soutenu pendant toutes ces années.

Avant toutes choses, je voudrais remercier les membres de mon jury. Merci à Daniel Dolfi et François Julien qui ont accepté de relire en détail mon manuscrit et avec qui j'ai pu avoir des discussions intéressantes sur ce travail. Je remercie également Angela Vasanelli, William Sacks et Eric Tournié d'avoir examiné cette thèse.

J'ai toujours accordé une grande importance à la chance dans la réalisation d'une thèse. Ma chance principale est d'être tombé dans une équipe sur mesure. Merci beaucoup Sukhy pour ces trois années de thèse. J'ai appris énormément tant sur les aspects expérimentaux que pour les bonnes idées des choses à faire et à tester. Si je n'ai qu'un regret, c'est peut-être de ne pas avoir été assez vif pour proposer plus d'idées personnelles.

Un grand merci à Jérôme pour son encadrement avec plus de recul. Il est toujours bon d'avoir un avis à moitié extérieur, me forçant à prendre un peu de hauteur par rapport à mes résultats expérimentaux. Merci notamment pour ton soutien pour mes projets d'après-thèse.

Pour le reste je remercie en vrac et dans le désordre : l'ambiance du laboratoire Pierre Aigrain et l'accueil de Jean-Marc Berroir ; Fabienne et Anne pour leur efficacité dans leur travail administratif. Julien qui m'a précédé et m'a montré les ficelles de la TDS et du couplage dans les ridges de 10 microns. J'en profite pour souhaiter bonne chance à Sarah qui continue sur les mêmes thématiques (j'espère que le cahier de manipes laissé est assez clair et que ma thèse ne comporte pas trop d'erreurs). Nathan, Nok et Dimitri pour leur accueil dans l'équipe THz quand je suis arrivé en stage. Juliette pour son énergie dans l'équipe. J'ai pu apprécier les grandes qualités de Josh pendant deux ans, aussi à l'aise avec une microbondeuse pour connecter un ridge étroit qu'avec une clé de 12 pour réparer un vélo. Saint-Gobain qui a grandement contribué à ma motivation pendant la rédaction pour finir dans les temps. Kenneth pour m'avoir fait découvrir les joies de maniper tard au labo. Merci à Jean pour cette thèse en parallèle, pour toutes ces heures à me supporter dans la pièce voisine, pour toutes les discussions de physique, d'enseignement et autre. Merci à Matthieu et Raphaël pour avoir égayé mon bureau (le tout sans siffler) après deux ans de solitude. Les thésards et post-docs du grand hall qui ont pleinement contribué à l'animation extra-scientifique. Merci à Michele (désolé de t'avoir abandonné pendant les moments de rédaction), Antoine, Camille, Simon, Djamal, Simon, François-Régis, Niall, Cécile, Giovanni, Michaël. Les personnes du groupe d'optique : Vincenzo, Hai-Son, Benjamin, Fabien. Mes amis de PC : le trio vanvéens Étienne-Charlotte-Aurélie, les zouaves, Jojo, Mathieu, Arthur et Thomas ; Charles, Alexandre, Benjamin, Cécile, Gary, Paul, Marion, Laure, Stéphanie. Merci pour la pause du Mercredi midi qui coupait idéalement la

1. Y.R. Shen l'écrit très bien dans l'incipit de *The principles of nonlinear optics* : "Physics would be dull and life most unfulfilling if all physical phenomena around us were linear. Fortunately, we are living in a nonlinear world. While linearization beautifies physics, nonlinearity provides excitement in physics."

semaine. C'est sympa d'être entouré d'autant de doctorants pendant la thèse, plein de docteurs à l'horizon. Mes amis non-scientifiques qui m'ont fait redoubler d'imagination pour expliquer ce qu'était un laser à cascade quantique THz. Et enfin, comme promis, je remercie mes parents, mes frères et ma sœur.

Résumé

Les lasers à cascade quantique (LCQ) sont des nanostructures semiconductrices se basant sur des transitions intrabandes entre états confinés de la bande de conduction. Ils ont permis de combler un manque de sources puissantes et compactes dans le moyen infrarouge (MIR) et le térahertz (THz). Cette thèse présente deux études sur ces lasers.

La première partie montre les propriétés d'optique non-linéaire résonante des LCQ. Il s'agit de démontrer la génération de différence de fréquences ($E_{\mathrm{IR}} - E_{\mathrm{LCQ}}$) entre un faisceau proche infrarouge (IR) et le champ THz du LCQ. L'excitation IR est résonante avec les transitions interbandes des puits quantiques composant le LCQ. Ceci exalte la susceptibilité non-linéaire du milieu. Le champ THz intense intracavité du LCQ combiné à l'excitation résonante permet d'obtenir de bonnes efficacités (0.13 %) et de générer des harmoniques supérieures jusqu'à l'ordre 3, ($E_{\mathrm{IR}} - 3E_{\mathrm{LCQ}}$). L'interaction non-linéaire est étudiée aussi dans les LCQ MIR, démontrant ainsi qu'elle est indépendante de la température jusqu'à 275 K.

Une deuxième partie traite du contrôle de la phase d'émission d'un LCQ par un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel. L'originalité résulte dans l'usage d'un LCQ ayant un guide double métal. Ce guide permet d'avoir de meilleures performances en température mais ses dimensions sont largement sub-longueur d'onde, compliquant le couplage d'une onde THz externe nécessaire à l'amorçage du LCQ sur une phase fixe. Des antennes en forme de V sont réalisées sur un LCQ pour favoriser le couplage et l'extraction dans la cavité. Nous pouvons ainsi verrouiller en phase l'émission d'un LCQ double métal et résoudre son champ complexe.

Mots clés : Lasers à cascade quantique, Térahertz, Infrarouge, Optique non-linéaire résonante, Spectroscopie THz dans le domaine temporel, Contrôle de la phase

Abstract

Quantum cascade lasers (QCL) are semiconductor nanostructures based on intersubband transitions between confined states in the conduction band of a quantum well system. These devices have permitted compact and powerful sources in the mid-infrared (MIR) and in the terahertz (THz) range. This thesis presents two studies on these lasers.

The first part investigates resonant optical nonlinearities of QCLs. We demonstrate intracavity difference frequency generation (DFG) between a near-infrared (NIR) beam and the QCL THz field, i.e. at $E_{\mathrm{NIR}} - E_{\mathrm{QCL}}$. The NIR excitation is resonant with interband transitions of the QCL, enhancing the nonlinear susceptibility. The high intracavity THz field combined with the resonant NIR beam results in good efficiencies for DFG (0.13 %) and in high order sideband generation up to the 3rd order ($E_{\mathrm{NIR}} - 3E_{\mathrm{QCL}}$). Further, this nonlinear interaction is investigated within a MIR QCL, allowing the demonstration of the DFG up to 275 K, showing that the interaction is temperature independent.

The second part investigates the phase control of QCL emission via THz time domain spectroscopy. The novelty is the use of metal-metal (MM) waveguides. QCLs based on MM guides show higher temperature operations but have sub-wavelength dimensions. These dimensions mean that the coupling of a THz seed, which is required to initiate the QCL field, is difficult. “V” shape antennas were realized on the QCL to match the impedance between the free-space and guided modes. These permit the coupling and extraction efficiency to be enhanced. Using this concept we show that the MM QCL emission can be phase-locked by THz injection seeding and hence resolve its amplitude and its phase.

Keywords: Quantum Cascade Lasers, Terahertz, Infrared, Resonant nonlinear optics, THz time-domain spectroscopy, Phase control

Liste des Publications

1. P. Cavalié, J. Freeman, K. Maussang, E. Strupiechonski, G. Xu, R. Colombelli, L. Li, A. G. Davies, E. H. Linfield, J. Tignon, et S. S. Dhillon. "High order sideband generation in terahertz quantum cascade lasers", Applied Physics Letters, **102**, 221101 (2013).
2. E. Strupiechonski, G. Xu, P. Cavalié, N. Isac, S. Dhillon, J. Tignon, G. Beaudoin, I. Sagnes, A. Degiron, and R. Colombelli. "Hybrid electronic-photonic subwavelength cavities operating at terahertz frequencies". Physical Review B, **87**(4), 041408, (2013).
3. J. R. Freeman, J. Maysonnave, N. Jukam, P. Cavalié, K. Maussang, H. E. Beere, D. a. Ritchie, J. Mangeney, S. S. Dhillon, et J. Tignon. "Direct intensity sampling of a modelocked terahertz quantum cascade laser". Applied Physics Letters, **101**, 181115 (2012).
4. J. Maysonnave et al. , K. Maussang, J. R. Freeman, N. Jukam, J. Madéo, P. Cavalié, R. Rungsawang, S. P. Khanna, E. H. Linfield, A. G. Davies, H. E. Beere, D. A. Ritchie, S. S. Dhillon et J Tignon. "Modelocking of a terahertz laser by direct phase synchronization". Optics Express, **20**, 698 − 701 (2012).
5. J. Madéo, P. Cavalié, et al. J. R. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, H. E. Beere, D. A. Ritchie, C. Sirtori, J. Tignon et S. S. Dhillon. "All-optical wavelength shifting in a semiconductor laser using resonant nonlinearities". Nature Photonics, **6**, 1 − 6 (2012).
6. J. Maysonnave, N. Jukam, M. S. M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalié, P. Dean, S. P. Khanna, D. P. Steenson, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon et S. S. Dhillon. "Integrated injection seeded terahertz source and amplifier for time-domain spectroscopy". Optics Letters, **37**, 731 − 733 (2012).
7. J. Maysonnave, N. Jukam, M. S. M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalié, P. Dean, P. Khanna, D. P. Steenson, E. H. Linfield, A. G. Davies, S. S. Dhillon et J. Tignon. "Measuring the sampling coherence of a terahertz quantum cascade laser". Optics Express, **20**, 698 − 701 (2012).
8. J. R. Freeman, A. Brewer, J. Madéo, P. Cavalié, S. S.Dhillon, J. Tignon, H. E. Beere et D. a. Ritchie. "Broad gain in a bound-to-continuum quantum cascade laser with heterogeneous active region". Applied Physics Letters, **99**, 241108 (2011).
9. 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, and D. a. Ritchie. "Gain enhancement in a terahertz quantum cascade laser with parylene antireflection coatings". Applied Physics Letters, **98**, 101102 (2011).

Table des matières

Introduction Générale **1**

1 Lasers à Cascade Quantique **7**

1.1 Transition optique dans les hétérostructures 2D 8

1.1.1 Historique 8

1.1.2 États électroniques dans les hétérostructures 2D 9

1.1.3 Transition optique dans un puits quantique 12

1.2 Ingénierie quantique pour les LCQ 14

1.2.1 Zone d'émission 16

1.2.2 Inversion de population et transport dans la cascade quantique 17

1.2.3 Limitation des LCQ THz 19

1.3 Géométrie des LCQ THz 20

1.3.1 LCQ à cavité Fabry-Perot 21

1.3.2 Guide d'onde THz 22

1.4 Géométrie des LCQ Moyen-IR 25

I Optique non-linéaire résonante dans les lasers à cascade quantique **27**

2 Optique non-linéaire résonante dans les semiconducteurs **33**

2.1 Optique Non-linéaire 33

2.1.1 Équation de propagation 33

2.1.2 Optique non-linéaire du second ordre 34

2.2 État de l'art 40

2.2.1 Mélange d'ondes dans des multi-puits quantiques 40

2.2.2 Conversion de fréquences dans un LCQ 43

2.3 Motivations de notre étude 45

3 Génération de mélange de fréquences résonant dans un LCQ THz **47**

3.1 Mélange de fréquences simplement résonant 47

3.1.1 Mise en évidence du mélange d'ondes 49

3.1.2 Application à la caractérisation des LCQ . . . 55
3.1.3 Effet non-linéaire d'ordre 2 - Dépendance avec la puissance des faisceaux incidents 56
3.1.4 Étude du mécanisme résonant du mélange d'ondes . . . 61
3.2 Mélange de fréquences doublement résonant - Géométrie en réflexion . . . 68
3.2.1 Principe de la cavité à double section . . . 69
3.2.2 Dispositif expérimental . . . 70
3.2.3 Mise en évidence du mélange de fréquences en réflexion . . . 72
3.2.4 Comparaison avec la géométrie en transmission . . . 76
3.2.5 Perspectives . . . 77
3.3 Génération d'ordres supérieurs dans un LCQ LO-phonon . . . 79
3.3.1 Caractérisation de l'échantillon L773 . . . 79
3.3.2 Démonstration de l'émission d'ordres supérieurs . . . 81
3.3.3 Effet non-linéaire d'ordre 3 - Dépendance avec la puissance THz . . . 82
3.3.4 Dépendance des ordres supérieurs avec l'énergie d'excitation . . . 85
3.4 Conclusion et perspectives . . . 89

4 Mélange d'ondes dans un LCQ moyen infrarouge 91
4.1 Description du laser L964 . . . 92
4.1.1 Structure de Bande . . . 92
4.1.2 Spécificité et modification du guide d'onde . . . 93
4.1.3 Comparaison des performances des deux guides . . . 95
4.1.4 Caractéristique Lumière-Tension-Courant . . . 97
4.2 Mélange de fréquences dans le domaine moyen-infrarouge . . . 98
4.2.1 Effet non-linéaire d'ordre 2 - Dépendance avec la puissance MIR . . . 99
4.2.2 Étude en température . . . 100
4.2.3 Mélange d'ondes résonant - Dépendance en longueur d'onde d'excitation . . . 102
4.3 Comparaison avec le mélange de fréquences dans le domaine THz . . . 105
4.3.1 Efficacité . . . 105
4.3.2 Largeur de raie . . . 106
4.3.3 Accord de phase . . . 107
4.4 Perspectives : Vers d'autres matériaux . . . 109
4.4.1 les LCQ InGaAs/InAlAs . . . 109
4.4.2 Travaux futurs sur les LCQ InGaAs/InAlAs . . . 111
4.5 Conclusion . . . 112

II Contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique 113

5 Spectroscopie THz dans le domaine temporel 117

5.1 Présentation du montage expérimental 117

5.1.1 Composants pour la spectroscopie THz 118

5.1.2 Montage expérimental 121

5.1.3 Amélioration du montage 124

5.2 Étude de LCQ par spectroscopie THz 127

5.2.1 Mesure de gain 128

5.2.2 Intérêt de la TDS pour la caractérisation des LCQ 133

6 Contrôle de la phase d'un LCQ à guide double-métal 135

6.1 Principe de l'expérience du contrôle de la phase d'un LCQ 136

6.1.1 Dispositif Expérimental 137

6.1.2 Résultats dans les guides à simple plasmon 139

6.2 Problématique des guides d'onde double-métal 143

6.2.1 Champ lointain 144

6.2.2 Couplage d'une onde THz dans un LCQ à guide double-métal 147

6.2.3 Géométrie de l'échantillon V588 149

6.3 Contrôle de la phase d'un échantillon double-métal 154

6.3.1 Caractérisation électrique 154

6.3.2 Démonstration du couplage 155

6.3.3 Résultats 155

6.3.4 Mesures en température 159

6.4 Conclusion et perspectives 161

Conclusion générale 163

A Résonance TM de l'échantillon L773 167

B Mesure FTIR de l'échantillon L773 169

C Caractérisation par micro-PL des lasers L964 et L966 171

D Couplage d'une onde THz externe dans un LCQ double métal à antennes cornet 173

Introduction Générale

La gamme térahertz (THz) définit généralement la bande de fréquences 10^{12} Hz – 10^{13} Hz, qui correspond à une région singulière du spectre électromagnétique (voir figure 0.1) entre les domaines de l'électronique (micro-ondes) et de l'optique (infrarouge (IR)). Cette frontière entre ces deux domaines a pendant longtemps été sous-exploitée à cause de la difficulté à réaliser des sources et des détecteurs efficaces. Pour cette raison, ce domaine de fréquences a été qualifié de "fossé THz". Le développement de sources THz est motivé en particulier par les applications en imagerie, en détection de polluants et notamment par le développement de la spectroscopie à ces fréquences [Tonouchi 2007]. La spectroscopie THz permet de sonder de faibles énergies de transition comme lors de la mesure de vibrations intermolécules [Nagai 2005] ou de l'étude de la physique intersousbande des semiconducteurs [Kaindl 2003]. Les astronomes s'intéressent également à ces rayonnements qui peuvent provenir de régions de l'univers très éloignées [Pilbratt 2010]. Une première approche pour générer des rayonnements à ces fréquences, est d'utiliser les technologies de l'électronique haute-fréquence (par exemple les diodes gunn ou la multiplication de fréquences GHz [Pearson 2011]). Ces sources voient cependant leur puissance chuter à l'approche des fréquences THz à cause de phénomènes de dissipation. Du point de vue de l'optique, le développement, dans les années 80, des lasers à impulsions courtes femtosecondes (fs) dans le domaine proche-IR a permis la génération de THz par rectification optique dans un cristal non-linéaire ou par excitation d'antennes photoconductrices [Auston 1984]. Ces méthodes permettent de générer des impulsions THz de l'ordre du μW dont le profil est donné par l'enveloppe des impulsions proche-IR. La détection par des méthodes électro-optiques du champ THz a ouvert la voie aux techniques de spectroscopie THz dans le domaine temporel (TDS). Il existe également des sources laser dans le domaine des THz (laser à gaz pompé CO_2, laser à électron libre, ...) mais elles sont limitées à un usage fondamental à cause de leur encombrement ou de leur coût. Du point de vue de la photonique, il est difficile de maintenir une inversion de population pour une émission laser car l'énergie des photons THz est de l'ordre de grandeur de l'agitation thermique ($k_B T$). La recherche dans le domaine THz est en pleine expansion et le développement en parallèle de différentes approches pour générer ces fréquences tend à réduire ce "fossé THz".

Le laser à cascade quantique (LCQ) constitue une source intéressante pour pallier le manque de lasers compacts et puissants dans cette bande de fréquences. Ces lasers sont des nanostructures semiconductrices dont l'émission radiative repose sur une transition entre des sous-bandes de la bande de conduction de puits quantiques (aussi appelée transition intrabande). Ce sont des lasers unipolaires (un

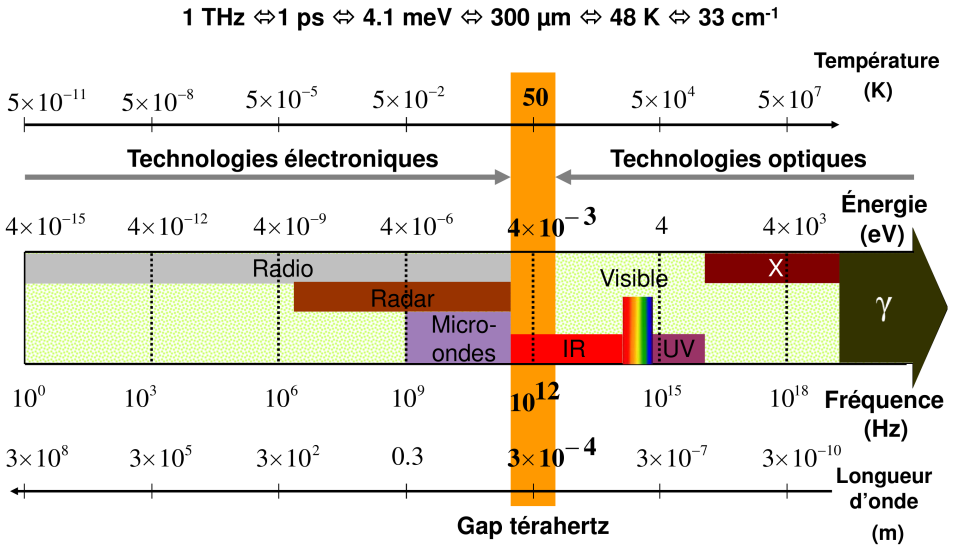


FIGURE 0.1 – Spectre électromagnétique montrant la frontière entre les domaines de l'électronique et de l'optique. Figure issue de [Oustinov 2011]

seul type de charge : l'électron). La structure est composée d'un ensemble périodique de puits quantiques couplés, à chaque période un électron émet un photon lors d'une transition radiative puis est transmis dans la période suivante. Ainsi, un électron émet plusieurs photons lors de son transport à travers la structure, c'est pourquoi, on parle de schéma à cascade. Les LCQ ont d'abord été mis au point dans le domaine du moyen-infrarouge (MIR) [Faist 1994] dans l'équipe de F. Capasso, puis au début des années 2000 dans le domaine THz [Köhler 2002]. Contrairement aux lasers à semiconducteurs à transitions interbandes, l'énergie d'émission est largement indépendante du matériau utilisé mais dépend du dessin des puits quantiques composant la structure. De ce fait, un même matériau permet de réaliser des lasers sur une vaste bande de longueurs d'onde (3 µm à 25 µm pour le MIR avec les puits InGaAs/InAlAs et jusqu'à ∼ 250 µm dans le domaine THz avec des puits GaAs/AlGaAs). Les LCQ dans le MIR fonctionnent depuis quelques années au-delà de la température ambiante [Beck 2002]. Dans le domaine THz, le fonctionnement des LCQ est limité aux températures cryogéniques (∼ 200 K [Fathololoumi 2012]). La difficulté à réaliser des LCQ dans ce domaine est due principalement à deux causes. Tout d'abord, l'énergie séparant les deux sous-bandes de la transition laser est faible ce qui complique la réalisation de l'inversion de population entre ces niveaux. En effet, il devient difficile de peupler sélectivement l'état haut et réciproquement d'extraire les porteurs de l'état bas. L'autre défi est la réalisation d'une cavité adaptée à ces longueurs d'onde. Dans le domaine MIR, le confinement du mode optique est réalisé par un guide à contraste d'indice. Ce type de guide n'est pas possible avec des longueurs d'onde de l'ordre de 100 µm, et le développement de guides plasmoniques (un plasmon de surface guide les ondes THz) a permis la réalisation de LCQ dans le domaine THz. Le confinement peut se faire avec un simple plasmon de surface entre la région active et le contact métallique supérieur (guide simple plasmon). Il peut également s'effectuer entre deux plans métalliques avec un double plasmon (guide double-métal). Ce dernier type de guide confine mieux les modes THz et permet d'atteindre des températures plus élevées. Les défis actuels consistent à augmenter les températures de fonctionnement et à extraire plus de puissance optique.

Dans cette thèse, nous réalisons la fonctionnalisation de LCQ THz par plusieurs méthodes. Nous étu-

dions l'interaction d'un laser à cascade quantique THz avec un faisceau lumineux externe couplé dans la cavité pour observer deux types de propriétés : les effets non-linéaires résonants dans les LCQ et le contrôle de la phase de leur émission. Ce couplage d'un faisceau externe permet de mettre en évidence de nouvelles fonctionnalités des LCQ. Dans un premier temps, le faisceau externe est dans le domaine du proche-IR pour étudier les propriétés d'optique non-linéaire résonantes des LCQ. Dans un deuxième temps, nous couplons une impulsion THz externe dans la cavité du LCQ pour contrôler sa phase d'émission.

Nous nous sommes d'abord intéressés aux propriétés d'optique non-linéaire des LCQ. Le champ THz à l'intérieur de la cavité est intense et très confiné, ce qui permet de mettre en évidence des effets non-linéaires. Plusieurs équipes ont étudié de tels effets non-linéaires au moyen de rayonnements THz importants provenant de lasers à électron libre. Dans ces études, l'interaction non-linéaire a lieu dans des multi-puits quantiques entre un faisceau proche-IR et un champ THz et elle donne lieu à la génération de raies issues d'un mélange de fréquences entre ces deux faisceaux [Kono 1997]. L'efficacité du mélange d'ondes réalisé avec les champs THz issus d'un FEL (0.2 % [Carter 2004]) provient d'une part de l'intensité THz mais également du couplage résonant de l'excitation proche-IR avec les transitions interbandes des puits quantiques. La susceptibilité non-linéaire est en effet exaltée par le couplage de la lumière avec les transitions réelles de la matière : on parle alors d'optique non-linéaire résonante. La démonstration d'effets d'optique non-linéaire résonants s'est plutôt basé par le passé sur des systèmes intrabandes [Sirtori 1994, Belkin 2007] où les non-linéarités sont qualifiées de géantes. En effet, les dipôles de ces transitions sont particulièrement grands du fait de la faible énergie des transitions et du confinement dans les puits quantiques. De plus, l'ingénierie quantique de structure de bande permet de dessiner des puits pour les adapter à des fréquences désirées [Rosencher 1996]. Cependant, ces transitions sont limitées au domaine du moyen-IR à cause de la profondeur finie des puits. Les non-linéarités résonantes interbandes sont intéressantes de ce point de vue car elles permettent de coupler à la matière des faisceaux ayant des longueurs d'onde dans le proche-IR tout en conservant une interaction résonante efficace. Nous observons dans notre étude l'interaction non-linéaire entre le champ THz du LCQ et un faisceau proche-IR résonant avec les transitions interbandes du LCQ. De manière concrète, nous étudions la génération de la différence de fréquences à l'énergie $E_{\mathrm{NIR}} - E_{\mathrm{THz}}$, avec E_{NIR} l'énergie du faisceau proche-IR externe et E_{THz} l'énergie d'émission du LCQ THz. L'utilisation de longueurs d'onde dans le proche-IR ouvre la voie à plusieurs applications. D'une part, le champ THz est converti sur une porteuse proche-IR. La détection du faisceau issu du mélange de fréquences permet ainsi d'obtenir des informations sur le champ THz tout en utilisant les techniques de détection matures du proche-IR. D'autre part, l'interaction non-linéaire est intégrée au LCQ ce qui en fait un dispositif potentiellement adapté aux réseaux de télécommunication optique pour la réalisation d'un décaleur de longueurs d'onde tout-optique.

Dans la deuxième partie, il s'agit de contrôler la phase d'émission de lasers à cascade quantique THz en couplant une onde THz externe dans la cavité du LCQ. Ce couplage est effectué au moyen d'un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel (TDS). Ce type de spectroscopie THz présente notamment l'avantage de pouvoir détecter un champ électrique complexe. Les techniques d'émission (antennes photoconductrices) et de détection (effet électro-optique) du THz reposent sur l'utilisation d'une même impulsion fs proche-IR. La détection est alors verrouillée en phase avec l'impulsion THz générée par l'antenne photoconductrice. Cette propriété donne accès à la mesure d'un champ THz dans

le domaine temporel. La spectroscopie THz pour étudier les propriétés des LCQ THz a été développée à l'université de Vienne et parallèlement au laboratoire. Elle est notamment utile pour mesurer le gain de ces lasers en dessous et au-dessus de leur seuil d'émission [Kröll 2007, Jukam 2008b] en observant la transmission d'une impulsion THz externe à travers la cavité du LCQ. Dans une configuration classique de spectroscopie THz, l'émission du LCQ n'est pas verrouillée en phase avec le système de détection qui, par conséquent, est insensible au champ THz issu du LCQ. Cette propriété est essentielle pour la mesure de gain des LCQ car sans cela, l'émission du LCQ dominerait la mesure de la transmission de l'impulsion THz externe sur la détection électro-optique. Dans cette thèse, la démarche est différente et le but est au contraire de verrouiller la phase du LCQ THz pour pouvoir détecter son champ dans le domaine temporel. Le LCQ peut dans ce cas être utilisé comme une source THz puissante pour la TDS (jusqu'à ~ 100 mW). Dans le cas général, la phase du champ émis par le LCQ dépend de la phase aléatoire de l'émission spontanée qui amorce l'action laser. En couplant une impulsion THz externe de phase fixe et connue (comme celle issue d'une antenne photoconductrice) dans la cavité et en synchronisant son arrivée avec l'alimentation électrique du LCQ, on peut forcer le LCQ à émettre sur une phase fixe [Oustinov 2010]. Des études précédentes ont démontré ce contrôle dans des LCQ à guide simple plasmon. L'originalité dans cette thèse, est l'utilisation d'un LCQ fabriqué avec un guide d'onde double-métal. Ces guides confinent la lumière dans des dimensions très faibles ($\sim 10\,\mu$m) comparées aux longueurs d'onde d'émission des LCQ THz ($\sim 100\,\mu$m). Ce confinement confère à ces LCQ de meilleures performances en terme de température de fonctionnement [Williams 2005]. En contrepartie, le faisceau de sortie est fortement diffracté dans toutes les directions [Adam 2006] et il est extrêmement difficile de coupler une impulsion THz externe dans la cavité. En collaboration avec le Cavendish laboratory de l'université de Cambridge, nous avons développé une amélioration du guide double-métal en favorisant l'adaptation d'impédance entre le guide d'onde double-métal et l'espace libre. Cette adaptation s'effectue par la modification du guide à ses extrémités, en évidant des parties métalliques en forme de V qui agissent comme des antennes. Ces antennes augmentent les capacités de couplage et d'extraction du champ THz dans la cavité du LCQ. En étant capable de coupler une onde THz externe dans ces guides, nous montrons que nous pouvons verrouiller en phase l'émission d'un LCQ THz fabriqué avec un guide double-métal grâce au couplage d'une impulsion THz externe. Nous sommes ainsi capables de résoudre son champ électrique dans le domaine temporel en ayant accès à son amplitude et à sa phase.

Le manuscrit s'organise en six chapitres distribués en deux parties. En préambule, le premier chapitre présente les lasers à cascade quantique. La première partie, composée des chapitres 2, 3 et 4, traite de l'optique non-linéaire résonante dans les LCQ. La seconde partie, composée des deux derniers chapitres, présente le contrôle de la phase d'émission des LCQ à guide double-métal.

Le **chapitre 1** décrit le fonctionnement des lasers à cascade quantique THz et moyen-IR. À partir des transitions optiques intersousbande dans les puits quantiques, nous présentons les dessins de structures de bande qui permettent de réaliser une inversion de population dans les régions du moyen-IR et du THz. Nous terminons par la description des géométries des LCQ dans les deux domaines.

Le **chapitre 2** expose d'abord les principes d'optique non-linéaire nécessaires à la compréhension des mécanismes mis en jeu lors des expériences de mélange de fréquences. Nous présentons une revue des expériences de mélanges d'ondes réalisées avec une source THz externe et des études montrant les propriétés d'optique non-linéaire des LCQ. Enfin, nous montrons quelles applications peuvent découler du mélange de fréquences dans un LCQ THz.

Dans le **chapitre 3**, une première section présente l'expérience de base qui permet de démontrer le mélange d'ondes dans un LCQ THz. Nous montrons que l'interaction est issue d'un processus du second ordre en $\chi^{(2)}$ et qu'elle est résonante avec les transitions interbande de la région active du LCQ. Nous exposons ensuite une autre géométrie qui permet d'éviter les problèmes d'absorption et d'étudier des processus doublement résonants. Enfin nous démontrons comment des ordres supérieurs ($E = E_{\mathrm{NIR}} + nE_{\mathrm{THz}}$ avec $|n| > 1$) peuvent être générés par des processus en $\chi^{(3)}$ dans un LCQ à dépopulation par phonon LO pour lequel la densité optique est plus importante.

Dans le **chapitre 4**, nous étendrons cette étude du mélange d'ondes aux LCQ émettant dans le moyen-IR. Nous verrons quelles différences implique l'utilisation d'un LCQ émettant des photons de plus grandes énergies. Ces expériences conduisent à la démonstration de l'interaction non-linéaire dans un LCQ se rapprochant d'un fonctionnement à température ambiante.

Le **chapitre 5** a pour but de présenter la technique de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous décrivons le fonctionnement des différents composants (antennes photoconductrices, détection électro-optique ...) et nous montrons, à partir d'un exemple, comment cette technique peut être utile pour caractériser un LCQ THz en régime stationnaire.

Le **chapitre 6** montre comment la phase d'émission d'un LCQ THz peut être contrôlée grâce au montage de spectroscopie THz dans le cas général. Nous exposons ensuite les problèmes de champs lointains et de couplages liés à la géométrie des guides d'onde double-métal, et nous présentons la géométrie développée pour augmenter le couplage dans la cavité. Enfin, nous montrons des résultats sur le contrôle de la phase d'émission d'un LCQ à guide double-métal. Nous observons que ce contrôle est possible au moins jusqu'à 77 K.

CHAPITRE 1

Lasers à Cascade Quantique

Les lasers à cascade quantique (LCQ) sont des nanostructures semiconductrices qui ont été mises au point il y a presque 20 ans [Faist 1994]. Ces lasers ont d'abord été réalisés pour le moyen infrarouge (MIR) puis pour la région du térahertz (THz) [Köhler 2002]. Ils se différencient des autres lasers à semiconducteurs car l'émission radiative s'effectue par la relaxation d'un électron entre deux sous-bandes de la bande de conduction. Ces lasers sont donc unipolaires, ils ne font intervenir que des électrons, à l'inverse des diodes lasers, où l'émission a pour origine la recombinaison d'un électron de la bande de conduction avec un trou de la bande de valence (recombinaison "électron-trou").

Ces sources, compactes et puissantes, ont permis de combler un manque, dans le moyen-IR d'abord, puis surtout dans le THz. Les divers développements successifs ont donné accès à une large gamme spectrale (3 μm à 250 μm) avec essentiellement deux matériaux : les puits quantiques AlGaAs/GaAs (pour le THz) et les puits InAlAs/InGaAs (pour le MIR). D'autres types de matériaux sont envisageables (InGaAs/GaAsSb pour le THz par exemple [Deutsch 2012]). Le choix des différents alliages a une influence sur la masse effective dans les puits quantiques et sur la hauteur des barrières qui sont le résultat des différences entre les bandes interdites des matériaux. D'un point de vue technologique, la structure des cristaux (notamment le paramètre de maille) joue un rôle sur la qualité des interfaces entre les différents matériaux formant les puits. Ces questions font l'objet d'études récentes pour obtenir encore de meilleures performances.

La compréhension des phénomènes physiques dans ces structures (interactions électron-phonon, électron-électron, absorption par les porteurs libres ...) permet d'optimiser le dessin des structures de bande, qui sont de mieux en mieux adaptées à l'émission de photons de faible énergie, ce qui représente une difficulté comme nous le verrons par la suite. Les progrès technologiques des outils de croissance cristalline et notamment de l'épitaxie par jet moléculaire (EJM), ont permis d'améliorer la qualité des échantillons. Les LCQ MIR sont aujourd'hui arrivés à maturité et fonctionnent jusqu'à environ 100 °C [Beck 2002]. Dans le domaine THz, l'énergie particulièrement basse des photons ($4-20$ meV ~ 48 K $-$ 240 K) rend difficile la conservation de l'inversion de population nécessaire à l'effet laser. Une des raison principale est le rôle de l'activation thermique des porteurs qui favorise l'émission de phonons. La figure 1.1 présente les performances des LCQ en température en fonction de la longueur d'onde. L'augmentation de la température de fonctionnement dans ce domaine constitue un défi pour la communauté des LCQ.

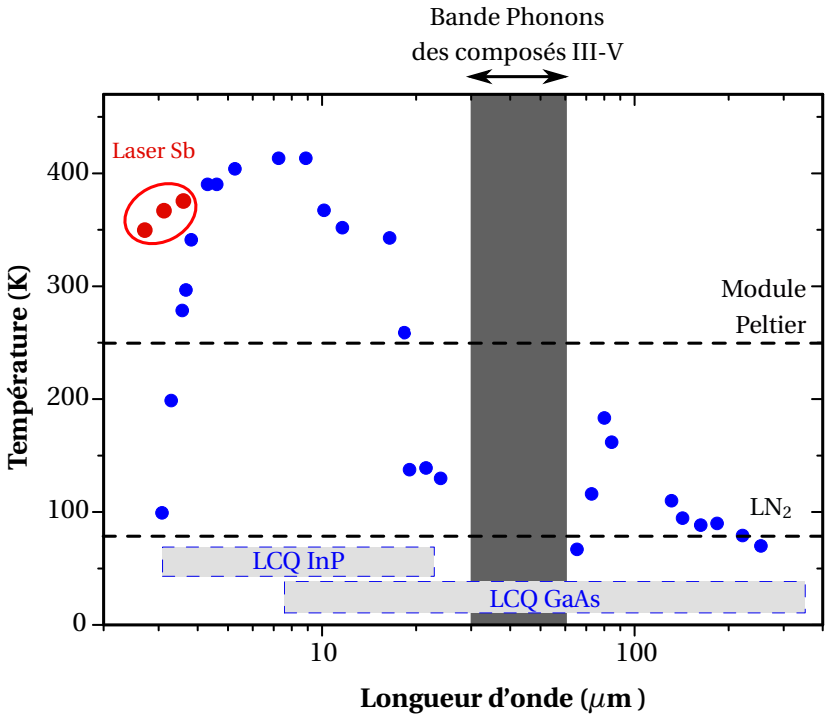


FIGURE 1.1 – Température de fonctionnement des LCQ en fonction de la longueur d'onde. Les lignes pointillées montre les températures accessible par les modules Peltier et l'azote liquide.

Le but de ce chapitre est de donner les bases du fonctionnement des LCQ. Nous présenterons d'abord les transitions optiques dans les hétérostructures qui sont à la base de l'ingénierie quantique permettant d'obtenir l'inversion de population dans les LCQ. Nous décrirons les différentes structures de bande possibles, puis nous présenterons la géométrie des LCQ qui permet d'avoir une cavité et d'obtenir l'effet laser. Enfin, nous comparerons les différences entre LCQ MIR et THz, bien que ce manuscrit traite principalement des LCQ THz.

1.1 Transition optique dans les hétérostructures 2D

Dans cette section, nous donnerons un rapide aperçu de l'interaction lumière-matière dans des hétérostructures à semiconducteurs. Après un bref historique sur les émetteurs à semiconducteurs, nous décrirons les états électroniques dans les puits quantiques. La détermination des niveaux d'énergie ainsi que leur dispersion permet de comprendre le comportement des transitions interbandes et intersous-bandes. On pourra consulter des ouvrages de référence comme celui de Gérald Bastard [Bastard 1988] pour une description plus détaillée et plus complète.

1.1.1 Historique

Les premiers lasers à semiconducteurs ont vu le jour dans les années 60 [Hall 1962] dans une jonction p-n. Dans un système de GaAs dopé, une recombinaison électron-trou donne lieu à l'émission d'un photon. L'énergie de ce photon est donnée par l'énergie de la bande interdite et est intrinsèque au matériau. Ces lasers nécessitaient une grande densité de courant pour fonctionner et n'ont donc pas trouvé beaucoup d'applications en dehors des laboratoires.

En 1975, une hétérojonction GaAs/AlGaAs est placée au niveau de la jonction p-n pour augmenter la densité des porteurs. La transition laser a lieu dans le puits de potentiel formé par l'hétérojonction [der Ziel 1975]. La densité de porteurs dans le puits quantique permet de diminuer de manière drastique le courant de seuil appliqué. Les progrès de nano-fabrication développés dans les années 1980 (épitaxie par jet moléculaire et déposition chimique en phase vapeur (CVD)) ont permis de diminuer la taille des puits et d'augmenter le confinement quantique. L'augmentation de ce confinement a eu pour conséquence de faire descendre la densité de courant seuil de deux ordres de grandeur (de 20 kA/cm^2 à 200 A/cm^2 [Yariv 1997]) augmentant fortement le nombre d'applications.

Concernant l'émission de photons à partir d'une transition intersousbande, Kazarinov et Suris prédisent dès 1971 la possibilité de réaliser un laser s'appuyant sur de telles transitions [Kazarinov 1971]. Cependant, il faudra attendre la fin des années 80 pour avoir une première observation expérimentale. M. Helm démontre expérimentalement en 1988 l'émission de photons dans l'infrarouge lointain à partir d'une transition dans la bande de conduction d'un super-réseau d'AlGaAs/GaAs [Helm 1988]. En 1994, l'équipe de F. Capasso aux *Bell labs* [Faist 1994] démontrent un effet laser se basant sur ces transitions optiques : le laser à cascade quantique.

1.1.2 États électroniques dans les hétérostructures 2D

Les propriétés des états électroniques dans les hétérostructures à semiconducteurs permettent de comprendre l'origine physique et les différences entre ces transitions interbandes et intrabandes. Nous décrirons d'abord un puits quantique idéal unidimensionnel puis le couplage tunnel qu'il peut y avoir entre deux puits. Nous considérerons un puits de profondeur finie mais nous parlerons de puits idéal dans le sens où les porteurs ont une masse effective indépendante de leur énergie (parabolicité des bandes). Les effets de non-parabolicités peuvent en effet être négligeables dans le cas des LCQ THz composés de puits formés par la différence d'énergies des bandes interdites du GaAs et de l'AlGaAs.

Le puits simple idéal

Une des briques élémentaires de l'optique dans les semiconducteurs est le puits quantique. Un puits de potentiel est créé par l'assemblage de semiconducteurs ayant des bandes interdites différentes comme illustré sur la figure 1.2. Dans cet exemple, 20 nm de GaAs sont compris entre deux barrières d'un alliage d'AlGaAs. Les électrons sont confinés selon l'axe de croissance z. Dans les deux autres dimensions les électrons sont libres. L'équation de Schrödinger stationnaire gouvernant les états électroniques dans le puits s'écrit :

$$H_0\psi(\mathbf{r}) = \left(\frac{p^2}{2m_0} + V(\mathbf{r})\right)\psi(\mathbf{r}) = E\psi(\mathbf{r})\,, \tag{1.1}$$

où p est l'impulsion, m_0 est la masse de l'électron, E l'énergie de l'électron et ψ sa fonction d'onde. Par la suite, nous utilisons l'approximation de la masse effective. $V(\mathbf{r})$, le potentiel cristallin, est remplacé par un potentiel unidimensionnel $V(z)$ et la masse effective de l'électron, m^*, est introduite ($m^* = 0.067\,m_0$ dans le GaAs). En utilisant le théorème de Bloch, la fonction d'onde peut se décomposer sous la forme : $\psi(\mathbf{r}) = f_n(\mathbf{r})u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ où $u_{n,\mathbf{k}}$ est la fonction de Bloch de la bande n au point $\mathbf{k}$ et f_n la fonction enveloppe [Bastard 1988]. Selon les axes (x, y), l'électron est presque libre et la fonction enveloppe devient :

$$f_n(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{S}}\,\mathrm{e}^{i\mathbf{k}_{//}\cdot\mathbf{r}_{//}}\,\chi_n(z)\,, \tag{1.2}$$

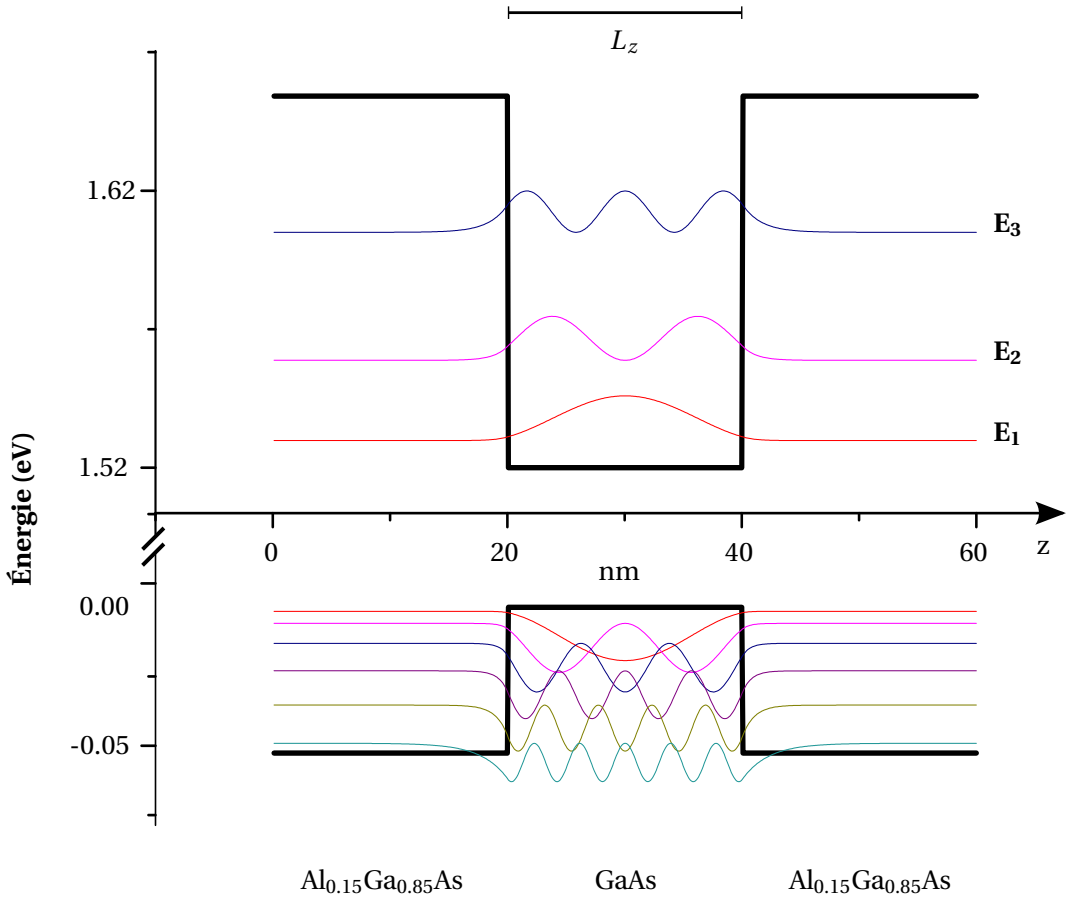


FIGURE 1.2 – Modules carrés des fonctions d'onde des états dans les bandes de conduction et de valence (trou lourd) d'un puits quantique GaAs/$Al_{0.15}Ga_{0.85}As$.

avec S la surface de l'échantillon et $\mathbf{r}_{//}$ le vecteur direction dans le plan (x,y). Les fonctions $\chi_n(z)$ sont les solutions de l'équation unidimensionnelle issue de l'équation 1.1 :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{\mathrm{d}^2}{\mathrm{d}z^2}+V(z)\right]\chi_{n,p}(z)=E_p\chi_{n,p}(z), \tag{1.3}$$

où l'indice p énumère les différentes sous-bandes de la bande n. Sur la figure 1.2, les modules carrés des états propres solutions sont tracés. Ces solutions sont calculées numériquement. On peut procéder de la même manière pour les trous dans la bande de valence en prenant les masses effectives appropriées pour les trous lourds et les trous légers.

Dans le cas du puits infini, l'équation 1.1 se résout aisément de manière analytique. Cette approximation du puits infini est souvent trop forte pour décrire les nanostructures de semiconducteurs, mais elle permet de faire apparaître les paramètres intervenant dans la quantification de l'énergie due au confinement :

$$E_p=\frac{\hbar^2\pi^2}{2}\frac{p^2}{m^*L_z^2}\,. \tag{1.4}$$

Les énergies propres évoluent de manière quadratique avec le nombre quantique p et sont inversement proportionnelles au carré de la largeur L_z du puits. Ce dernier résultat est très important. En effet, l'éner-

gie d'une transition intersousbande est ainsi directement reliée à la taille du puits et cela constitue le fondement de l'ingénierie quantique possible pour le dessin des LCQ. La dépendance avec la masse effective montre pourquoi les états de trou sont plus confinés dans la bande de valence que dans la bande de conduction (voir la figure 1.2). En effet, la masse des trous lourds est de l'ordre de $m_{\mathrm{HH}} \approx 0.5 m_0$. Les trous légers (non représentés sur le schéma) ont une masse intermédiaire ($m_{\mathrm{LH}} \approx 0.08 m_0$) [Vurgaftman 2001].

Enfin, l'électron n'est pas confiné dans les autres directions de l'espace et il garde une dispersion parabolique selon l'axe $\mathbf{k}_{//}$.

Puits couplés

Considérons maintenant deux puits de même largeur L_z, séparés par une barrière b (voir figure 1.3). Si la barrière est très large, alors les deux puits ne sont pas couplés et les états sont dégénérés pour chaque niveau d'énergie du puits simple. Si la barrière est suffisamment fine (figure 1.3), alors il y a un couplage par effet tunnel et l'électron est délocalisé sur les deux puits. Les états propres deviennent une combinaison linéaire des états propres des puits isolés. Dans l'exemple de la figure 1.3, le couplage entre deux puits de 20 nm par une barrière de 1 nm sépare les deux premiers niveaux d'une énergie de 4.7 meV. Ce couplage entre les puits est essentiel dans les structures à cascade. D'une part, il offre un

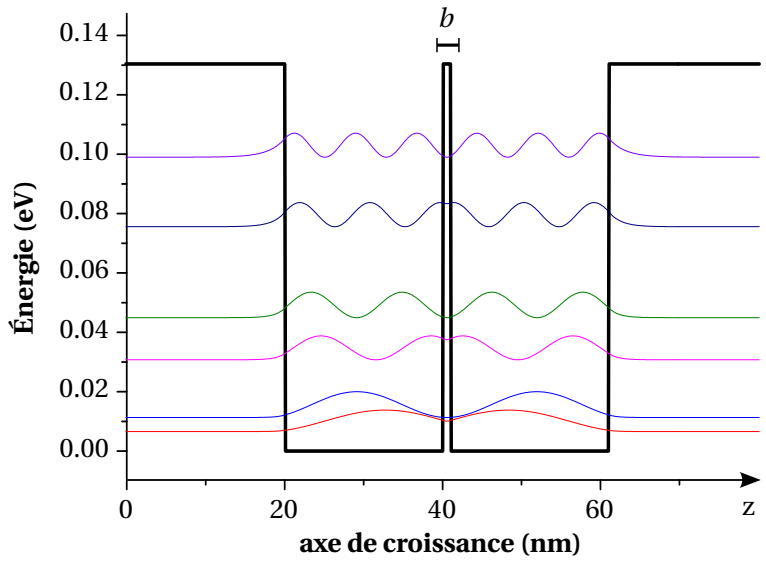


FIGURE 1.3 – États électroniques dans un puits quantiques de GaAs couplés par une barrière fine (1 nm) d'$Al_{0.15}Ga_{0.85}As$.

levier supplémentaire pour l'ingénierie de bande et l'ajustement des niveaux d'énergie intervenant dans les transitions radiatives. D'autre part, c'est ce couplage tunnel qui permet le transport électronique dans la structure, notamment pour l'injection et l'extraction des particules dans l'état haut et bas du laser respectivement.

Si on construit un super-réseau [Esaki 1970], c'est-à-dire une structure périodique de puits quantiques couplés par des barrières fines, des continuums d'énergie appelés mini-bandes vont apparaître dans la bande de conduction du fait du couplage tunnel. Ils sont séparés par des bandes interdites appelées mini-gap (voir figure 1.4). Dans cet exemple, plusieurs puits quantique de GaAs d'une largeur de

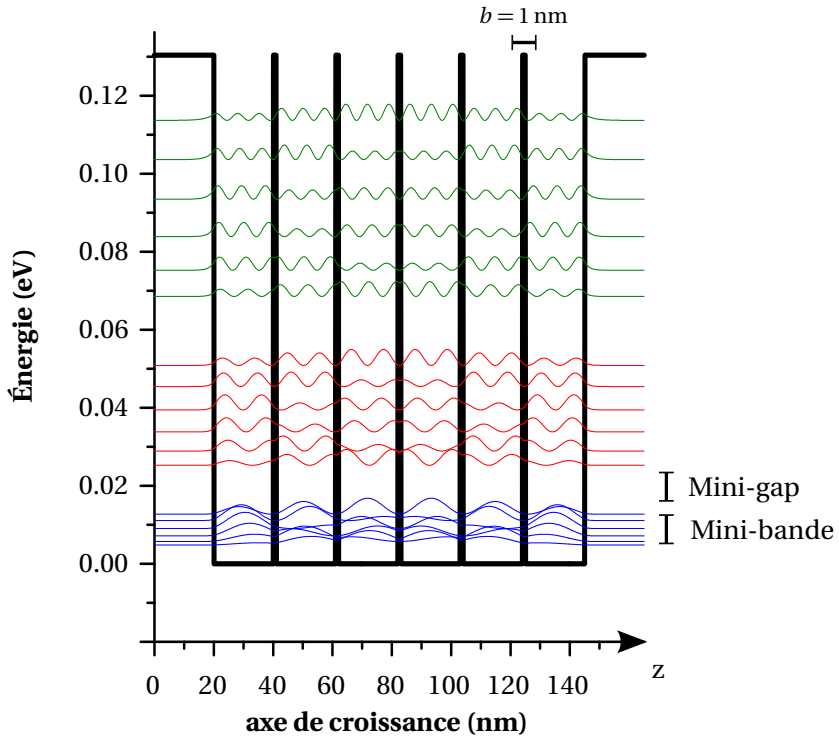


FIGURE 1.4 – Super-Réseau GaAs/AlGaAs constitué de puits quantique couplés par effet tunnel. Les états d'une même couleur forment un continuum d'énergie appelé mini-bande.

20 nm sont couplés par des barrières d'$Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ d'une épaisseur de 1 nm.

1.1.3 Transition optique dans un puits quantique

Lors d'une transition optique, une onde électromagnétique $\mathbf{F}(\mathbf{r},t)$ interagit avec le milieu d'indice $n_0 = \frac{c}{\omega}q$. On prendra pour hypothèse une onde plane polarisée rectilignement suivant $\boldsymbol{\epsilon}$ et se propageant le long de l'axe x soit $\mathbf{F}(x,t) = F\boldsymbol{\epsilon}\cos(\omega t - qx)$. L'hamiltonien du système est modifié en :

$$H = H_0 + \frac{\mathrm{e}}{2m_0c}(\mathbf{p}.\mathbf{A}+\mathbf{A}.\mathbf{p})\,, \tag{1.5}$$

avec $\mathbf{A}$ le potentiel vecteur. On fait le choix de la jauge de Coulomb $\mathbf{F} = -\frac{1}{c}\partial\mathbf{A}/\partial t$. Nous traiterons le problème en perturbation dépendant du temps et considérerons donc des transitions entre des états initiaux $|i\rangle$ et finaux $|f\rangle$ qui sont des états propres du système décrit par H_0. La règle d'or de Fermi donne la probabilité de transition suivante :

$$P_{if} = \frac{2\pi}{\hbar}|\langle f|\,V_{\mathrm{rad}}\,|i\rangle|^2\delta(|E_f - E_i| - \hbar\omega)\,. \tag{1.6}$$

Dans l'approximation dipolaire électrique ($\mathbf{A}$ varie lentement par rapport à la maille cristalline), le potentiel d'interaction V_{rad} s'écrit :

$$V_{\mathrm{rad}} = \frac{ieF}{2m_0\omega}\boldsymbol{\epsilon}.\mathbf{p}\,. \tag{1.7}$$

C'est l'élément de matrice $\langle f|\boldsymbol{\epsilon}.\mathbf{p}|i\rangle$ qui permet d'énoncer les règles de sélection des transitions permises et interdites. Les états propres sont décrits par le formalisme de la fonction enveloppe de sorte que $\psi_i(\mathbf{r}) = f_i(\mathbf{r})u_{i,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ pour l'état initial et de même pour l'état final. En utilisant la propriété que les

fonctions enveloppes varient lentement à l'échelle de la maille cristalline, on obtient :

$$\langle i|\boldsymbol{\epsilon}.\mathbf{p}|f\rangle = \boldsymbol{\epsilon}.\langle u_i|\mathbf{p}|u_f\rangle \int f_i^* f_f \mathrm{d}^3 r + \langle u_i|u_f\rangle \boldsymbol{\epsilon} \int f_i^* p f_f \mathrm{d}^3 r \,. \tag{1.8}$$

À partir de cette expression, envisageons les deux types de transitions possibles (interbande et intersous-bande).

Les transitions interbandes

Dans ce cas $u_i \neq u_f$ et comme les fonctions de Bloch sont orthonormées, le deuxième terme de l'équation 1.8 est nul. En explicitant la fonction enveloppe, d'après l'équation 1.2, l'élément de matrice devient donc pour l'absorption d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction :

$$\langle i|\boldsymbol{\epsilon}.\mathbf{p}|f\rangle = \boldsymbol{\epsilon}.\langle u_v|\mathbf{p}|u_c\rangle \frac{1}{S} \int \mathrm{e}^{i(\mathbf{k}_{//}-\mathbf{k}'_{//}).\mathbf{r}_{//}} \mathrm{d}^2 r_{//} \int \chi_n^* \chi_m \mathrm{d}z \,, \tag{1.9}$$

avec n et m les indices des sous-bandes. La première intégrale vaut 1 si l'impulsion de l'électron est conservée car l'impulsion du photon est très faible devant celle de l'électron, c'est pourquoi **les transitions doivent être "verticales"** dans l'espace des k (voir figure 1.6). Le nombre de cas (différentes polarisation et propagations du champ, symétries des bandes mises en jeu) est plus complexe pour les deux autres facteurs. L'ensemble des règles de sélection est énoncé dans la référence [Bastard 1988] (p. 248). Par souci de concision, nous ne considérerons que deux cas pratiques qui se réfèrent au chapitre 3. Dans ces deux cas, l'onde se propage selon x. Elle est polarisée soit selon y, dans le plan des couches, polarisation TE (transverse électrique) ; soit selon z, parallèle à l'axe de croissance, polarisation TM (transverse magnétique) (voir le schéma sur la figure 1.5).

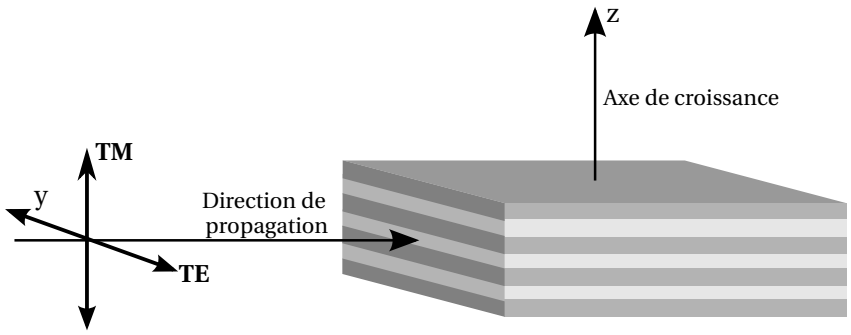


FIGURE 1.5 – Schéma illustrant les différentes polarisations d'un faisceau se couplant à des multi-puits quantiques

Pour la polarisation TM, du fait de la symétrie des fonctions $\chi(z)$, seuls les trous légers ont une contribution non nulle. Dans le cas TE, les deux bandes de trous contribuent avec une part trois fois plus importante pour les trous lourds. D'autre part, il faut que les indices n et m soit de même parité pour avoir de l'absorption théoriquement. En pratique dans le GaAs, seul les transition pour $n = m$ sont observées [Miller 1984].

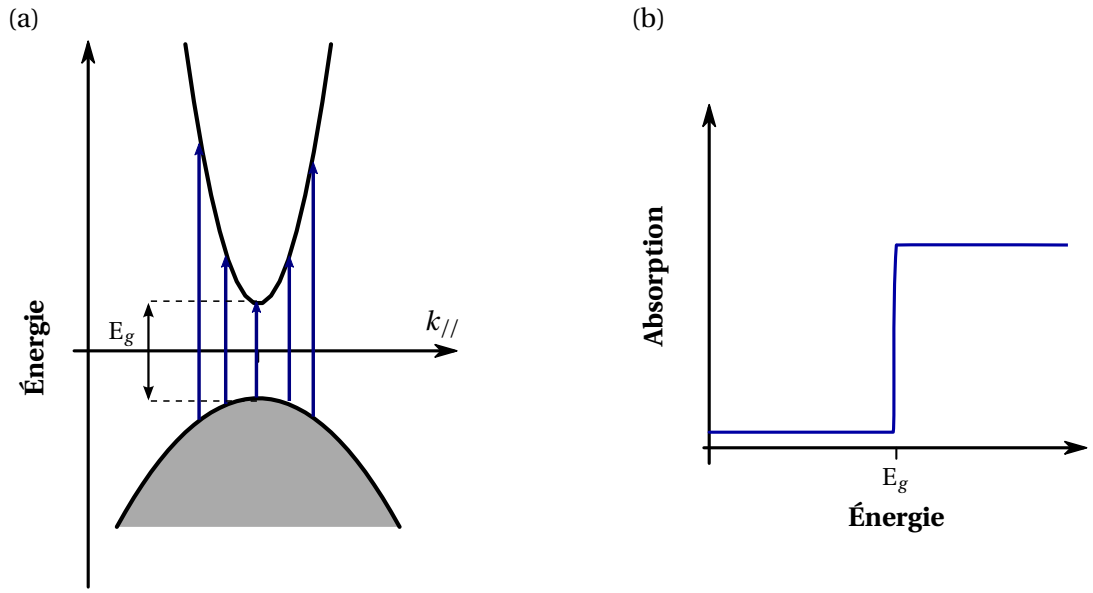


FIGURE 1.6 – Absorption interbande : la dispersion parabolique de l'énergie dans l'espace des k avec des signes opposée dans les bandes de valence et de conduction (a) autorise toutes les transitions ayant une énergie supérieure à E_g et conduit à une absorption en marche d'escalier (b).

Les transitions intersousbandes

Dans ce cas les transitions ont lieu entre deux sous-bandes de la bande de conduction. Les fonctions de Bloch sont les mêmes et seul le deuxième terme de l'équation 1.8 est non-nul. Il n'y a pas de quantification selon les direction x et y, cela impose que le champ électrique soit polarisé selon z (i.e. l'axe de croissance). Les transitions intersousbandes donnent lieu à une émission polarisée orthogonalement au plan des couches. Réciproquement, la lumière ne peut se coupler à un système intersousbande uniquement si elle est polarisée selon z. Du fait de l'opérateur p_z, seules les transitions faisant changer la parité des niveaux (pair vers impair et réciproquement) sont autorisées.

Deux caractéristiques différencient fondamentalement les transitions intrabandes et interbandes. D'une part, dans l'approximation parabolique, les transitions intersousbandes ont lieu entre deux sous-bandes parallèles. De ce fait, quelque soit la valeur de k, la transition se fait à la même énergie. La figure 1.7 représente qualitativement l'absorption intrabande en fonction de l'énergie. L'absorption a lieu seulement à l'énergie entre les deux premiers niveaux. Au contraire, pour les transitions interbandes, toutes les énergies supérieures à la valeur en $k = 0$ sont possibles ce qui donne une absorption en marche d'escalier (figure 1.6). D'autre part, il ne peut y avoir d'absorption intrabande que s'il y a un dopage de la bande de conduction. S'il n'y a pas de charges dans la bande de conduction, alors les transitions ne sont pas possibles.

1.2 Ingénierie quantique pour les LCQ

Les lasers à cascade quantique ont la particularité de reposer sur une transition intersousbande. Cette caractéristique les différencie des diodes laser conventionnelles car ils ne font intervenir que des états électroniques de la bande de conduction alors que dans le cas des diodes laser, il s'agit d'une recombinaison électron-trou. L'autre spécificité notable est que la structure est périodique et que chaque électron est recyclé d'une période à l'autre, c'est pourquoi, on parle de cascade quantique. Un électron

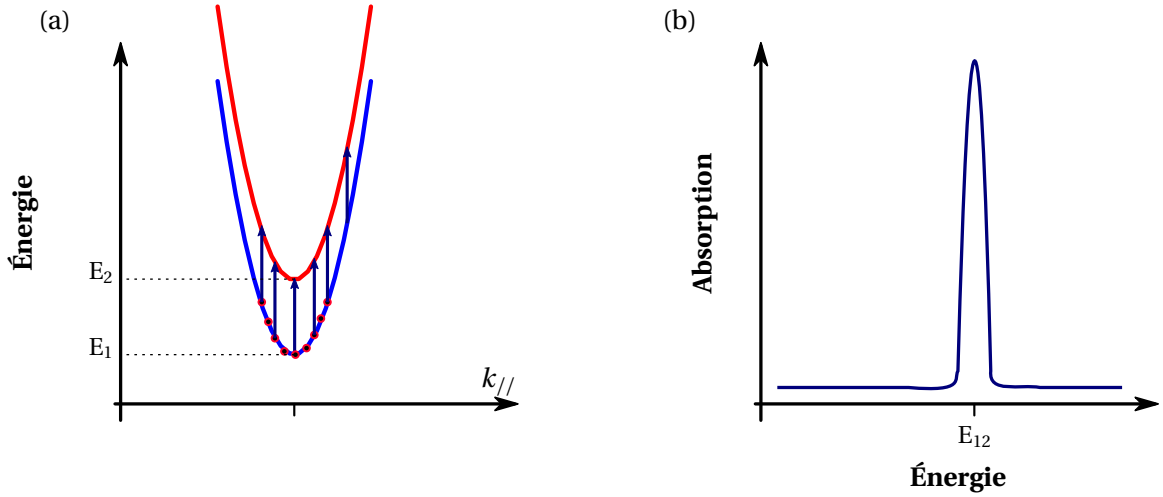


FIGURE 1.7 – Absorption intersousbande : la dispersion parallèle des sous-bandes de la bande de conduction (a) conduit à une absorption fine à l'énergie $E_{12} = E_2 - E1$.

émet ainsi plusieurs photons lors de son passage à travers la cascade.

La fréquence d'émission des diodes laser est fixée par l'énergie de la bande interdite du matériau qui la constitue. De ce fait, le développement des lasers à partir du moyen infrarouge ($\lambda > 2\,\mu$m) fait face à la problématique d'une zone du spectre électromagnétique où il n'y a plus de matériau ayant des bandes interdites suffisamment étroites. C'est le principal atout qui a fait le succès des LCQ : l'ingénierie de structure de bande permet d'ajuster la longueur d'onde d'émission en utilisant un même matériau. Plusieurs couples de matériaux peuvent être utilisés (InGaAs/InAlAs, InGaAs/GaAsSb, GaAs/AlGaAs ...) pour former les puits quantiques constituant le LCQ. Nous ne décrirons que les LCQ composés de puits GaAs/AlGaAs dans ce chapitre car nous n'avons utilisé que ce type de LCQ pour les expériences présentées dans ce manuscrit.

Le principe de base des lasers à cascade quantique repose sur trois briques élémentaires : l'inversion de population entre les deux sous-bandes de la transition optique et le transport électronique d'une période à l'autre. Le troisième ingrédient est le résonateur optique à faible pertes qui permet la génération de l'émission stimulée. Nous reviendrons sur ce point dans la section suivante sur la géométrie des LCQ THz.

La transition optique est réalisée à partir d'un ensemble de puits quantiques d'AlGaAs/GaAs, appelé zone d'émission. Pour réaliser l'inversion de population dans la zone d'émission, des puits sont placés avant et après pour injecter et extraire efficacement le niveau haut et le niveau bas de la transition (voir figure 1.8.a). Ces puits sont appelés injecteurs ou zone de transport. L'alignement des niveaux électroniques entre les différentes zones est ajusté par un champ électrique parallèle à l'axe de croissance, l'inversion de population dans le milieu à gain est donc réalisé par une injection électrique des porteurs. Le terme de cascade vient de la périodicité du système décrit, chaque électron provenant d'une transition radiative vient peupler le niveau haut de la période suivante. La figure 1.8.b montre une photo prise au microscope électronique qui illustre ce schéma en cascade : les flèches bleues représentent le transport électronique par effet tunnel résonant. Ce transport permet de réaliser l'inversion de population dans les puits où a lieu l'émission du photon THz (flèches oranges).

La description des LCQ est relativement succincte dans ce manuscrit. On pourra se référer aux revues suivantes pour plus de détails sur les LCQ dans le moyen-infrarouge [Gmachl 2001] et dans le THz [Scalari 2009, Williams 2007], et à cette référence plus récente [Faist 2013].

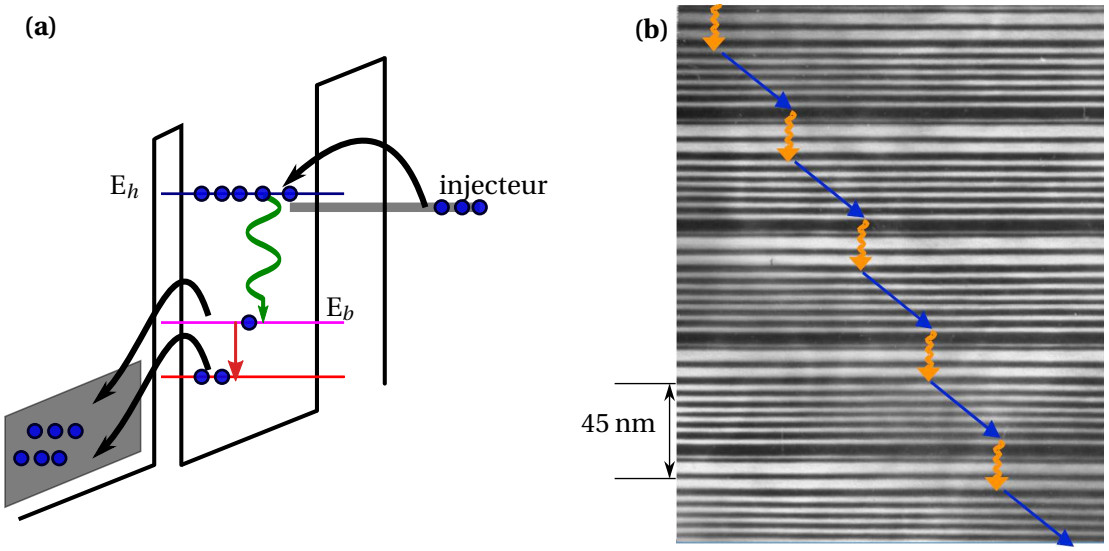


FIGURE 1.8 – (a) Schéma de principe de la zone d'émission résumée en un puits. Les zones de transport électronique de part et d'autre du puits assure le peuplement de l'état haut (Eh) et l'extraction des états bas (Eb). La transition laser est représentée par la flèche ondulée verte. La flèche rouge est une transition inélastique qui vide l'état bas du laser. (b) Photo prise au MEB représentant la cascade quantique ; Les puits sont en blanc. La transition optique a lieu dans la zone d'émission (flèches oranges) et le transport (flèches bleus) dans la mini-bande entre les zones actives. (*crédit C. Gmachl*).

1.2.1 Zone d'émission

La transition optique a lieu entre deux états confinés dans deux ou trois puits quantiques de GaAs/$Al_xGa_{1-x}As$. La fraction x d'aluminium varie de 0.45 pour les LCQ MIR à 0.10 pour les LCQ THz. Comme on l'a vu dans la section précédente, l'ingénierie quantique permet d'ajuster les niveaux des transitions intersousbandes en jouant sur la largeur des puits et sur le couplage tunnel entre les différents puits. L'énergie du photon est donc fixé par cette ingénierie de structure de bande. La largeur des puits varie de manière significative entre les LCQ MIR ($\sim$ 4 nm de large pour les puits où a lieu la transition) et les LCQ THz ($\sim$ 10 nm)

Les transitions peuvent être verticales (les électrons sont localisés dans les mêmes puits sur l'état haut et l'état bas) ou diagonales dans l'espace réel. Dans ce dernier cas, les fonctions d'ondes de l'état initial et final sont localisées majoritairement dans des puits adjacents. L'énergie de la transition est plus facilement ajustable dans cette configuration car l'énergie de l'état haut dépend alors principalement de la largeur du puits où il est localisé. Son énergie peut être modifiée sans changer le niveau de l'état bas qui est localisé dans un puits adjacent couplé par effet tunnel. En contrepartie, la force d'oscillateur de la transition est plus faible mais c'est ce cas (transition diagonale) qui permet d'atteindre les températures de fonctionnement les plus élevées. En effet, la durée de vie du niveau supérieur est augmentée et des canaux de transport parasites sont supprimés [Kumar 2009]. La force d'oscillateur caractérise le

couplage quantique entre deux niveaux. Elle dépend principalement du recouvrement des fonctions d'ondes entre le niveau initial et final. Le gain de la transition entre deux sous-bandes i et j permet de comparer les régions actives [Williams 2007] :

$$g(\nu_0) \propto \frac{\Delta N f_{ij}}{\Delta \nu} ,$$

où ΔN est l'inversion de population, $\Delta \nu$ est la largeur de la transition et f_{ij} est la force d'oscillateur. L'augmentation de la durée de vie sur le niveau haut (transition hyper-diagonale) et donc de l'inversion de population est en général défavorable pour la force d'oscillateur. Cette formule montre alors que le gain est un compromis entre le recouvrement entre les niveaux de la transition optique et l'inversion de population ΔN. De surcroît, plus la transition sera fine spectralement, meilleur sera le gain du laser.

Comme mentionné précédemment, un champ électrique est appliqué sur la structure pour injecter électriquement les niveaux. Ce champ a un effet sur les bandes en les inclinant et en modifiant les niveaux d'énergie. La valeur de ce champ est fixée par l'alignement des niveaux d'injection et il faut en tenir compte pour déterminer l'énergie d'émission du LCQ.

1.2.2 Inversion de population et transport dans la cascade quantique

Contrairement à l'image schématique souvent utilisée, la transition laser n'a pas lieu entre des niveaux mais entre des sous-bandes qui ont une dispersion parabolique. La parabolicité des bandes assure que la transition radiative entre deux sous-bandes se fait à une énergie constante. Cependant, cette dispersion autorise des processus non-radiatifs plus nombreux entre les sous-bandes (émissions spontanée de phonons optiques longitudinaux (LO), défauts d'interface, interactions électron-électron) qui sont sont efficaces par rapport à l'émission spontanée. Le temps de vie des processus non-radiatifs est inférieur à la picoseconde. Pour réaliser l'inversion de population, le temps de vie des porteurs sur l'état haut est augmenté en limitant l'émission des phonons (en dessinant, par exemple, des transitions radiatives diagonales) et la dépopulation de l'état bas est optimisée en réduisant le temps de vie des porteurs sur ce niveau. Cette diminution du temps de vie se fait par deux schémas principaux : soit en alignant le niveau bas avec une mini-bande ; soit en permettant l'émission résonante d'un phonon optique longitudinal vers un état plus bas.

Le transport dans la structure du LCQ est important pour assurer l'injection des électrons sur l'état haut et leur dépopulation de l'état bas. Il est dépendant du choix fait pour réaliser l'inversion de population. Nous présentons deux configurations différentes pour les LCQ THz : le dessin lié-continuum (BTC : *Bound to Continuum*), et le dessin à dépopulation par phonon LO. Par la suite, nous décrivons les dessins des LCQ MIR qui sont sensiblement différents à cause de l'énergie du photon qui est plus importante que celle du phonon LO.

LCQ THz bound-to-continuum

Pour ce dessin, la zone d'émission est entourée d'un ensemble de puits couplés qui forment un super-réseau. Un champ électrique bien choisi permet d'aligner les niveaux de ces puits pour former une mini-bande. Ces mini-bandes autorisent le transport d'une période à une autre. Avant la zone d'émission, une barrière plus épaisse permet d'injecter les porteurs sur le niveau haut de la zone d'émission.

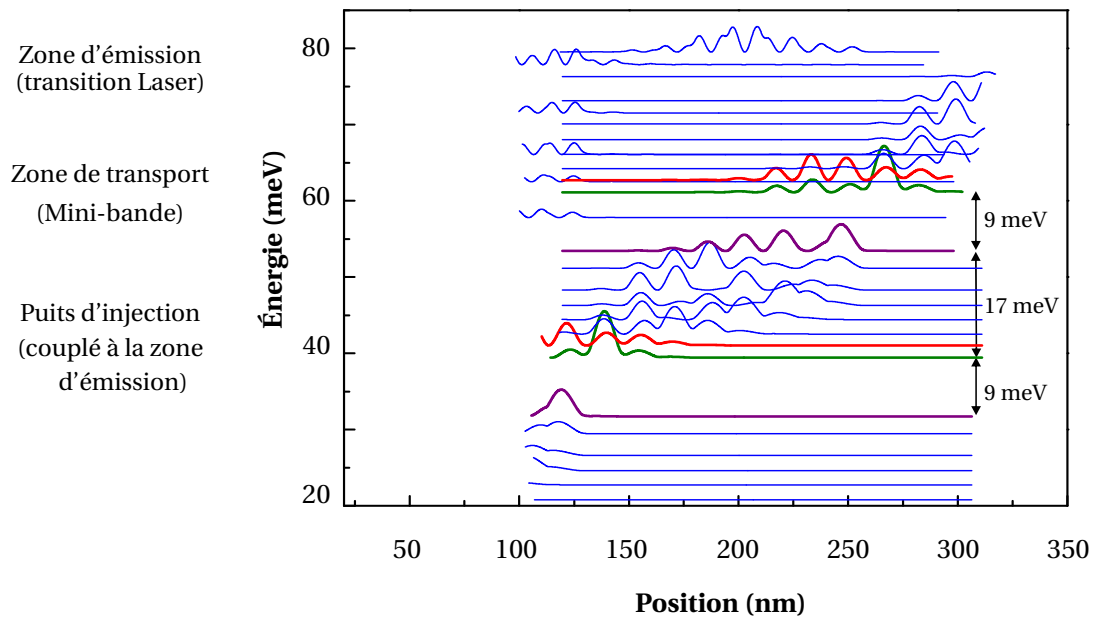


FIGURE 1.9 – Structure de bande d'un LCQ bound-to-continuum [Worrall 2006]. Les mini-bandes assurant le transport sont représentées en bleu. L'état injecteur est représenté dans le puits colorié en vert, il peuple l'état haut (en rouge) de la zone d'émission. L'état bas de la transition laser (en violet) se dépeuple vers la mini-bande suivante.

L'état bas correspond au haut de la mini-bande suivante ce qui permet d'extraire de manière efficace les électrons. Une structure de bande typique est présentée sur la figure 1.9. Les fonctions d'ondes sont calculées à partir de la résolution numérique de l'équation de Schrödinger dans le potentiel constitué par les différents puits et barrières. Ces laser atteignent des puissances de l'ordre de 50 mW en continu à 10 K et peuvent fonctionner jusqu'à 100 K en impulsionnel [Barbieri 2004].

LCQ THz à dépopulation par phonon LO

L'autre type de dessin que l'on étudie au laboratoire sont les LCQ THz dont la dépopulation du niveau bas s'effectue par l'émission d'un phonon LO résonant (voir figure 1.10). Dans ces structures, les périodes sont composées de moins de puits (entre deux et quatre). L'énergie des phonons LO dans le GaAs est de 36 meV. Le dessin est réalisée de sorte qu'il y ait une transition intersousbande de l'énergie du phonon entre le niveau fondamental de la transition optique et un niveau de plus basse énergie. Le champ appliqué doit être plus grand que dans le cas des dessins BTC afin de pouvoir ajuster l'écart entre ces deux niveaux avec l'énergie du phonon LO. Ce processus de dépopulation est extrêmement rapide (inférieur à la pico-seconde) ce qui permet de maintenir l'inversion de population. Sur le dessin présenté sur la figure 1.10, l'état bas du laser (en bleu) et couplé par effet tunnel résonant à l'état "rose". C'est à partir de cet état qu'a lieu l'émission d'un phonon. Le niveau vers lequel s'effectue la dépopulation est l'état injecteur de la période suivante (en violet sur la figure 1.10).

Les LCQ à dépopulation par phonon LO sont plus puissants (jusqu'à 250 mW en impulsionnel et 125 mW en continu à 10 K [Williams 2006]) et fonctionnent à plus hautes températures (199.5 K [Fathololoumi 2012]). Ils nécessitent par contre un champ plus important pour aligner la structure (~ 2 kV/cm pour les dessins BTC et ~ 7 kV/cm pour les dessins LO-phonon). De ce fait, les LCQ BTC ont des tensions

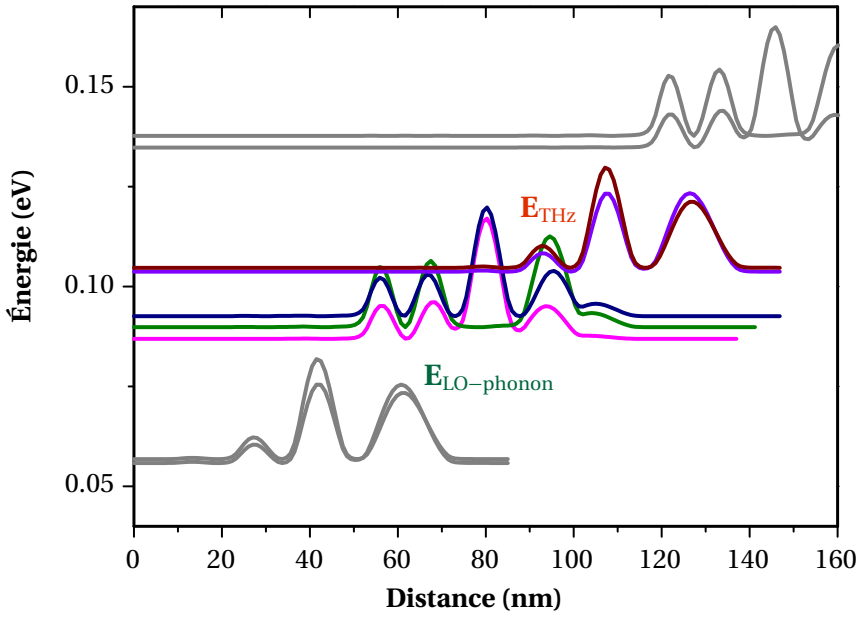


FIGURE 1.10 – Structure de bande d'un LCQ à dépopulation par phonon LO [Amanti 2009b]. L'émission du photon THz est indiquée par la flèche rouge entre l'état en marron et l'état tracé en bleu. La dépopulation de l'état fondamental s'effectue par l'émission d'un phonon LO dans le puits quantique le plus large (flèche verte).

de seuil plus faibles et consomment moins de puissance électrique ($\sim 500\,W/cm^2$ pour les LCQ BTC et $\sim 1000\,W/cm^2$ pour les LCQ LO-phonon).

LCQ MIR à dépopulation par phonon LO

Le dessin des LCQ MIR est en quelque sorte un mélange des deux dessins présentés plus haut. La structure de bande d'un dessin MIR composé de puits GaAs est représentée sur la figure 1.11. Une zone de transport, définie par cinq puits, assure le transfert des électrons entre les zones d'émission de chaque période qui sont constituées d'un ensemble de trois puits où a lieu la transition optique. Le couplage tunnel entre la mini-bande de transport et l'état haut du laser se fait par une barrière plus épaisse (appelée barrière d'injection). L'état bas du laser (en rouge) est vidée par des phonons LO qui sont résonants avec un niveau plus bas en énergie dans cette zone d'émission (niveau violet sur la figure 1.11). Ce niveau extrait les électrons par la suite dans la mini-bande de la zone de transport suivante. Les champs à appliquer pour les LCQ MIR sont beaucoup plus importants ($\sim 60\,kV/cm$) que pour les LCQ THz à cause de l'énergie plus importante du photon MIR. Ces structures composées de puits AlGaAs/GaAs peuvent fonctionner à température ambiante [Page 2001].

1.2.3 Limitation des LCQ THz

Le défi actuel du domaine est d'amener les lasers à cascade quantique THz jusqu'à des températures ambiantes. Le record de fonctionnement en 2013 est de 199.5 K [Fathololoumi 2012]. Lorsque la température augmente, deux effets principaux ont tendance à diminuer le gain et donc les performances du laser. Il y a tout d'abord une repopulation de l'état bas à partir des états injecteurs de la période suivante (voir figure 1.12.a). Les porteurs sont activés thermiquement quand la température augmente. Cet ef-

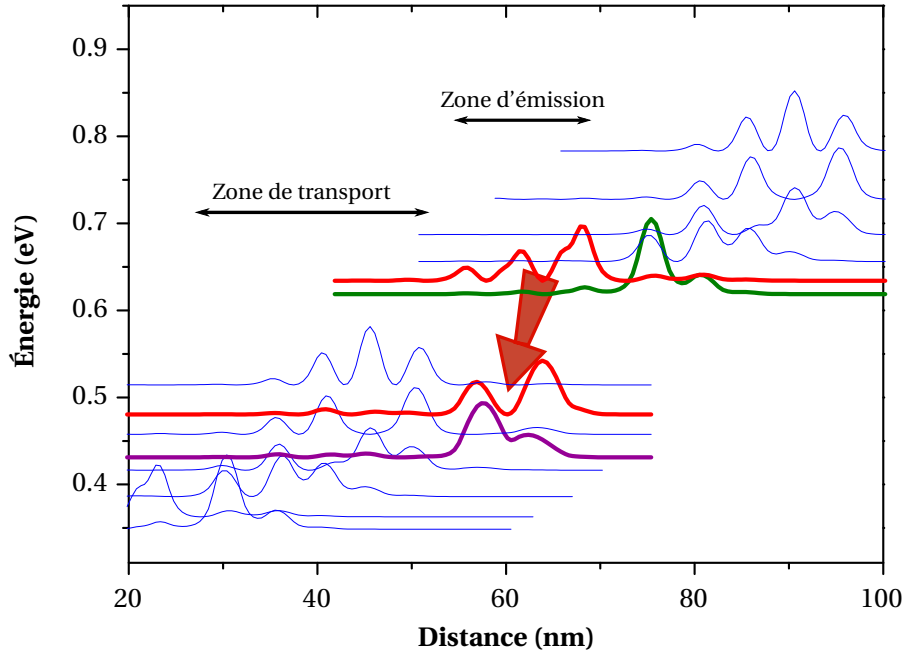


FIGURE 1.11 – Structure de bande d'un LCQ moyen-IR émettant à 9 µm [Page 2001]. L'état d'injection est représenté en vert, les mini-bandes sont constituées des états en bleu. Les deux états en rouge sont ceux impliqués dans la transition laser. Un phonon est émis de manière résonante entre l'état bas du laser et l'état fondamental des puits de la zone d'émission (en violet).

fet peut être vu comme une extraction moins efficace de l'état bas du laser. Pour des LCQ LO-phonon, cet effet est moins fort car l'état injecteur est séparé de 36 meV ce qui donne plus d'écart que pour les LCQ BTC. Le deuxième effet est la réduction du temps de vie de l'état haut. Lorsque la température électronique augmente, il y a une activation thermique des phonons LO qui peuvent diffuser les électrons d'une sous-bande à une autre de manière plus efficace (voir figure 1.12.b). Comme la transition optique est à une énergie faible ($\sim$ 12 meV) devant l'énergie du phonon, il est plus difficile à haute température d'injecter électriquement de manière sélective entre le niveau haut et le niveau bas de la transition. La stratégie utilisée pour obtenir des températures plus élevées est de réaliser une transition optique très diagonale. La force d'oscillateur diminue mais le temps de vie de l'état haut est augmenté, il y a donc un compromis à trouver.

1.3 Géométrie des LCQ THz

Nous venons de décrire comment l'ingénierie de bande permettait de générer du gain dans la zone active des LCQ. La réalisation d'un résonateur optique est un élément essentiel pour obtenir un laser. Les longueurs d'onde particulièrement longues du domaine THz compliquent la conception d'un guide d'onde diélectrique utilisé pour les autres lasers à semiconducteurs. Les LCQ étudiés pendant cette thèse sont construits sur une géométrie Fabry-Perot qui est décrite dans le paragraphe suivant. D'autres géométries existent comme les micro-disques par exemples [Mahler 2009, Chassagneux 2009], elles seront décrites brièvement dans le chapitre 6.

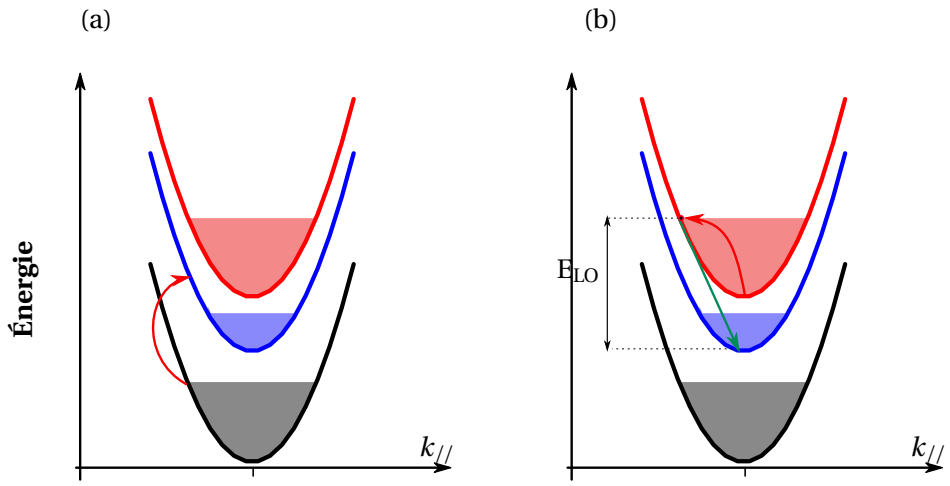


FIGURE 1.12 – Représentation schématique de mécanismes défavorables à l'inversion de population entre l'état haut (rouge) et bas (bleu) du LCQ. **(a)** Excitation thermique (flèche rouge) de charge des niveaux de l'injecteur (en noir) de la période suivante vers l'état bas. **(b)** Activation thermique (flèche rouge) de l'émission de phonons (flèche verte) à partir de l'état haut du laser.

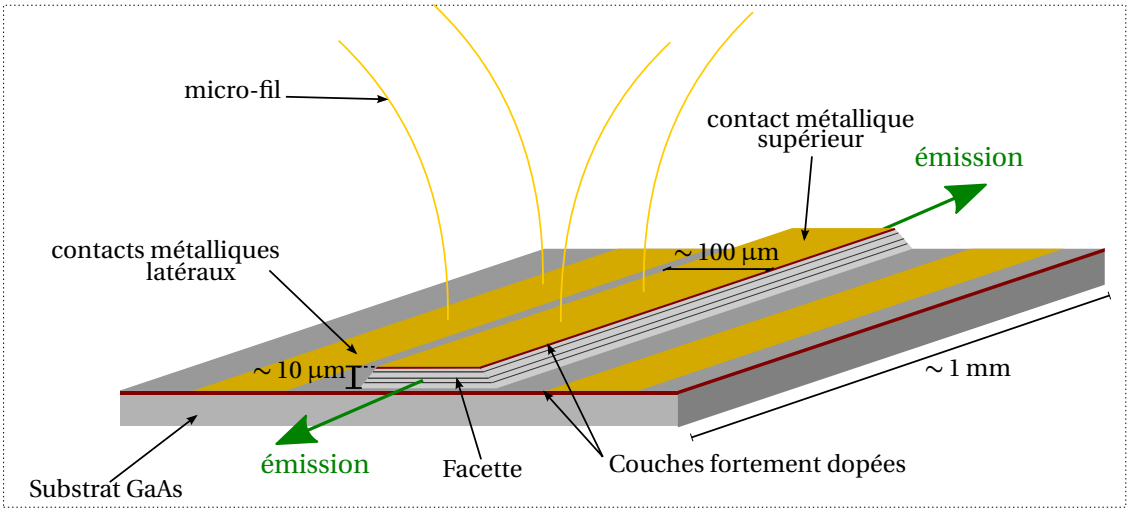


FIGURE 1.13 – Schéma d'un LCQ à géométrie Fabry-Perot avec un guide simple plasmon. L'épaisseur de la région active est de l'ordre de 10 µm. Les rubans ont une longueur typique de $1-3$ mm dans nos expériences.

1.3.1 LCQ à cavité Fabry-Perot

La figure 1.13 montre un schéma de la géométrie Fabry-Perot des LCQ. À partir d'un substrat épitaxié, un ruban est gravé soit par gravure humide (flan oblique), soit par gravure sèche (flan droit). La largeur de ce ruban varie entre quelques dizaines et la centaine de microns (jusqu'à 250 µm). On évapore par la suite, une couche métallique qui servira à injecter électriquement la structure. Pour avoir un transport électrique efficace, une couche très dopée ($\sim 10^{18}$ cm^{-3}, représentées en rouge sur le schéma) est présente aux deux extrémités de la croissance de la région active . La couche dopée, coté substrat, permet de conduire les électrons jusqu'aux contacts métalliques latéraux et sert au guidage de l'onde THz, comme on le verra par la suite.

Ces rubans sont ensuite "clivés" à la longueur désirée (entre 1 et 3 mm pour nos expériences). Les interfaces air/GaAs réalisées forment les miroirs de la cavité Fabry-Perot, elles sont appelée facettes. La formation de ces miroirs par cette méthode conduit à une bonne qualité de surface et le coefficient de réflexion dans le THz est de 0.32 [Kohen 2005]. La cavité Fabry-Perot confine les modes longitudinalement. Latéralement, le contraste d'indice entre le GaAs et l'air permet également de confiner les modes.

L'échantillon clivé est monté par une brasure à l'indium sur une embase en cuivre possédant un revêtement d'or. L'indium a une très bonne conductivité thermique, ce qui permet de bien connecter l'échantillon au réservoir thermique en cuivre. Deux plots en céramique recouverts d'or sont collés sur l'embase en cuivre. Les contacts métalliques de l'échantillon servant à polariser le LCQ sont connectés à ces plots par micro-soudure aux ultra-sons. Ces plots macroscopiques sont plus faciles à connecter aux fils du cryostat servant à l'alimentation électrique. Les LCQ fonctionnant seulement à températures cryogéniques, les embases sont montées sur le doigt froid d'un cryostat à flux continu d'hélium. Une feuille d'indium permet le bon contact thermique entre le doigt froid et l'embase.

1.3.2 Guide d'onde THz

Un bon guide d'onde permet le recouvrement des modes de la cavité avec la région à gain du laser et propage les photons avec le moins de pertes possibles. Le recouvrement (Γ) et les pertes du guide (intrinsèques α_g et par les miroirs α_m) caractérisent la qualité d'un guide. Le gain du laser est relié à ces paramètres par la relation suivante :

$$J_{\text{seuil}}\, g = \frac{\alpha_g + \alpha_m}{\Gamma}\,, \tag{1.10}$$

avec J_{seuil} la densité de courant au seuil et g le gain en cm/A. Cette expression rappelle que lors d'une émission laser, le gain est égal aux pertes. Les pertes α_m sont nécessaires pour avoir de la puissance en sortie. Ce sont surtout les pertes lors de la propagation α_g qu'il faut réduire. Ces pertes sont surtout dues aux transitions intrasousbandes [Carosella 2012] et à l'absorption des photons par des porteurs libres. On définit le facteur de mérite $\chi = \dfrac{\Gamma}{\alpha_g}$ pour comparer la qualité des guides.

Contrairement aux guides d'onde des lasers à semiconducteurs conventionnels, le confinement vertical des modes THz dans la cavité, ne peut pas se faire par contraste d'indice. En effet, les épaisseurs nécessaires au confinement doivent être de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde et il n'est pas envisageable de faire croître par épitaxie des couches supérieures à 15 µm. De plus, l'indice de la zone active qui possède une certaine fraction d'aluminium est plus faible que celui du substrat de GaAs ce qui compliquerait encore le procédé.

C'est la propagation par un plasmon de surface qui a permis de réaliser les premiers LCQ dans le domaine THz [Köhler 2002]. Le plasmon de surface entre le plan métallique supérieur et la région active confine l'onde THz dans la direction verticale et permet de propager le champ THz sans trop de pertes. Deux géométries sont possibles, les guides d'onde à simple plasmon où l'onde est guidée par un plasmon formé au niveau du contact supérieur et dont le confinement est fortement augmenté par la couche dopée inférieure ; et les guides d'onde double-métal (ou métal-métal), où le guidage se fait grâce à des plasmons de surface aux deux extrémités de la croissance de la zone active. Ces deux géométries sont décrites dans les paragraphes suivants.

Pour concevoir les guides, on peut simuler leur comportement en résolvant les équations de Maxwell

dans le guide. Les plasmons de surface sont des solutions particulières qui apparaissent à une interface entre deux milieux dont les parties réelles des permittivités diélectriques ont des signes opposés [Raether 1988]. Pour prendre en compte l'absorption par porteurs libres, on considère un indice complexe qui est calculé par un modèle de Drude. La région active est modélisée par une couche unique dont la composition en aluminium et le dopage sont obtenus en prenant la moyenne des couches nanométriques qui la composent. Nous réalisons les simulations pour une dimension (selon l'axe de croissance) à l'aide de MATLAB. Les deux autres directions sont considérées comme infinies. L'émission des transitions intersousbandes étant polarisée transverse magnétique, nous ne considérons que cette polarisation pour la simulation des modes.

Guide à simple plasmon

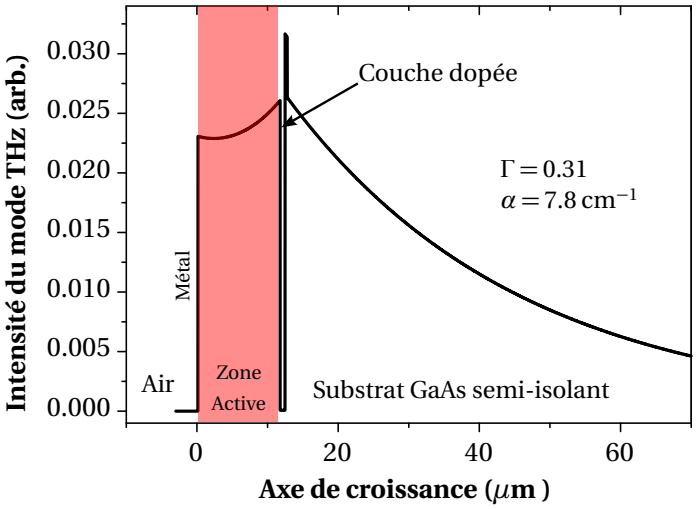


FIGURE 1.14 – Simulation à une dimension (axe de croissance) du mode optique TM à 2.9 THz dans un guide simple plasmon (la zone active est coloriée en rouge).

Dans les guides à simple plasmon, l'onde THz est confinée entre le plan métallique du contact supérieur et la couche dopée sous la région active qui assure le transport électronique jusqu'aux contacts latéraux (voir schéma 1.13). Le confinement par cette couche dopée est limité ce qui résulte en un mode qui s'étend dans le substrat de GaAs semi-isolant. Cette extension limite le recouvrement spatial avec la région active (de l'ordre de $0.1-0.3$, jusqu'à 0.5 [Kohen 2005]). La figure 1.14 présente les résultats d'une simulation à une dimension du mode optique THz. D'après cette simulation, le facteur de mérite de ce guide vaut $\chi = 3.9$ (avec le recouvrement en pourcent).

Les ruban plus étroits que 100 µm ont leur mode qui s'étend beaucoup dans le substrat [Williams 2007]. Pour éviter ce problème, la largeur des rubans est assez grande ($\sim$ 200 µm). L'extension du mode dans le substrat et la relative grande largeur du ruban favorise l'extraction des photons et donne une bonne directivité au faisceau en sortie. La taille du mode optique facilite également le couplage d'une impulsion THz externe dans la cavité. Cette propriété est particulièrement utile pour l'étude des LCQ dans un montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel comme nous le verrons dans la deuxième partie du manuscrit.

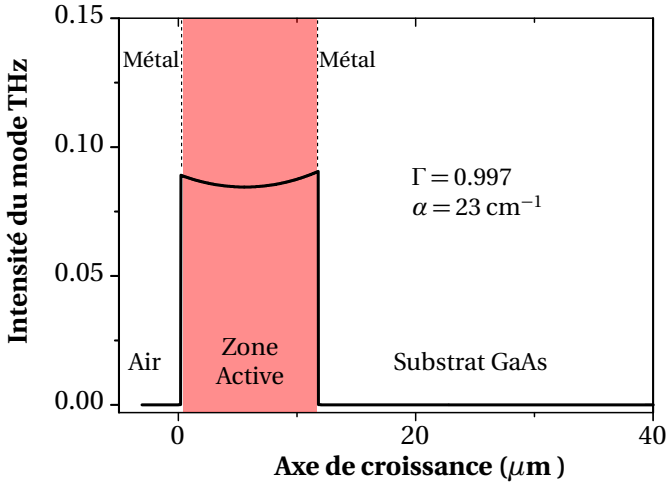


FIGURE 1.15 – Simulation à une dimension (axe de croissance) du mode optique TM à 2.9 THz dans un guide double métal (la zone active est coloriée en rouge).

Guide Double-Métal

L'autre type de guide confine l'onde THz entre deux plans métalliques. Un plasmon de surface apparaît alors à chaque interface métal/région active. Pour réaliser un tel guide, l'échantillon est crû sur un substrat sacrificiel. Ce substrat est thermo-soudé sur un substrat hôte qui a été au préalable métallisé par une couche d'or (le substrat hôte est très dopé pour pouvoir polariser la couche métallique à travers ce substrat). Le substrat sacrificiel est ensuite gravé jusqu'à une couche d'arrêt en AlGaAs. Le procédé de fabrication des rubans est le même que pour les autres guides par la suite.

Le confinement entre deux plans métalliques conduit à un recouvrement de l'ordre de l'unité avec la région active, comme en atteste la simulation de la figure 1.15. À partir de cette simulation, nous obtenons un facteur de mérite de $\chi = 4.3$, supérieur au facteur du guide simple plasmon. Ce meilleur confinement permet de réduire la largeur du ruban (< 100 µm). Le confinement plus important du mode crée une large différence d'impédance entre les modes guidés et l'espace libre. Cela a pour conséquence une réflectivité plus importante au niveau des facettes, diminuant les pertes α_m. De ce fait, malgré les pertes plus grandes du guide, le rapport $(\alpha_g + \alpha_m)/\Gamma$ diminue, ce qui permet d'atteindre des températures plus élevées [Williams 2005].

Au-delà de la fabrication plus compliquée de ces échantillons, ces guides possèdent deux inconvénients principaux. D'une part, les dimensions sub-longueur d'onde de la facette diffractent beaucoup le faisceau de sortie, rendant l'émission quasi-omnidirectionnelle [Adam 2006]. D'autre part, la désadaptation d'impédance entre les modes guidés et l'espace libre limite l'extraction de la puissance à l'extérieur de la cavité.

À cause du confinement des modes THz dans le guide, le couplage d'une onde THz externe dans la cavité double-métal est difficile. Or pour mesurer le gain d'un LCQ THz (comme nous le verrons au chapitre 5), il est nécessaire de coupler une impulsion THz dans la cavité et de mesurer sa transmission en sortie. Ce sont ces guides qui permettent les températures de fonctionnement les plus hautes, il est donc intéressant d'adapter ces guides pour pouvoir faire des mesures de gain et d'observer, par exemple, comment le gain varie avec la température. Des géométries alternatives ont été développées pour favoriser

l'extraction et le couplage d'une onde THz. Ce sujet fera l'objet du chapitre 6.

1.4 Géométrie des LCQ Moyen-IR

La géométrie des LCQ MIR est très semblable à celle des LCQ THz et la différence principale est le guide d'onde qui est un guide diélectrique pour les LCQ MIR. Le nombre de développements technologiques a cependant été plus important, étant donné qu'ils ont été mis au point presque 10 ans avant les LCQ THz. Les LCQ MIR les plus efficaces repose sur des puits InAlAs/InGaAs. Cependant, dans le chapitre 4 traitant du mélange de fréquences dans les LCQ MIR, nous n'utiliserons que des LCQ en AlGaAs/GaAs car ils sont mieux adaptés à nos sources d'excitation.

Les rubans ont une largeur de l'ordre de la longueur d'onde d'émission du laser ($\sim 10\ \mu m$), ils sont donc plus étroits que les rubans des LCQ THz. Une autre différence avec les LCQ THz est l'épaisseur de la région active. Comme la longueur d'onde est plus petite, le mode optique est plus confiné. Le nombre de période de la région active et donc son épaisseur est limité par la taille de ce mode. En moyenne, les LCQ MIR sont composés d'une quarantaine de périodes, soit un peu moins de 2 μm d'épaisseur contre $\sim 10\ \mu m$ d'épaisseur et une centaine de périodes pour les LCQ THz.

Dans cette section, nous allons voir comment le faisceau moyen-IR est guidé dans le LCQ et quelles applications peuvent être réalisées avec ces LCQ.

Guide d'onde MIR

Les longueurs d'onde d'émission des LCQ dans le domaine du moyen-IR ($< 10\ \mu m$) permettent d'utiliser des guides diélectriques qui confinent les modes optiques par contraste d'indice entre la région active et une gaine. Ils se différencient donc fondamentalement des guides pour le THz qui sont des guides plasmoniques. Pour les LCQ MIR en GaAs/AlGaAs (ceux utilisés dans le chapitre 4), le confinement se fait par un contraste d'indice. Ces guides sont dit "renforcés par plasmon" car des couches de GaAs très dopées ($\sim 10^{18}\ cm^{-3}$) sont utilisées pour confiner le mode optique. Le dopage sert à approcher la fréquence plasma du semiconducteur de la fréquence d'émission du LCQ. Cela a pour effet de diminuer l'indice de cette couche et de favoriser le confinement dans la région active. Ces couches très dopées induisent en contrepartie de grandes pertes provenant de l'absorption par porteurs libres. Cette absorption est limitée par l'ajout d'une couche tampon en GaAs peu dopée. Cette couche limite le recouvrement du mode avec la couche très dopée. La figure 1.16 présente une simulation du mode optique dans un tel guide d'onde ainsi que l'indice de réfraction dans le moyen-IR.

Performances et applications

Les LCQ MIR composés de puits InAlAs/InGaAs ont vu leurs performances être grandement améliorées depuis leur première démonstration en 1994. Notamment, les rubans de ces LCQ MIR peuvent être enterrés : après la mise en forme des rubans, une couche d'InP non-dopée est déposée par évaporation en phase vapeur. Cette couche permet de mieux dissiper la chaleur et de confiner les modes optiques par contraste d'indice. Ce type de géométrie a permis de faire fonctionner des LCQ MIR à température ambiante en régime continu [Beck 2002]. Actuellement, ils peuvent émettre plusieurs Watts de puissance à température ambiante [Bai 2010, Liu 2010]. D'autre part, le contrôle spectral de l'émission peut être amélioré par des réseaux de Bragg à rétroaction distribuée (DFB) ou par l'ajout de cavité ex-

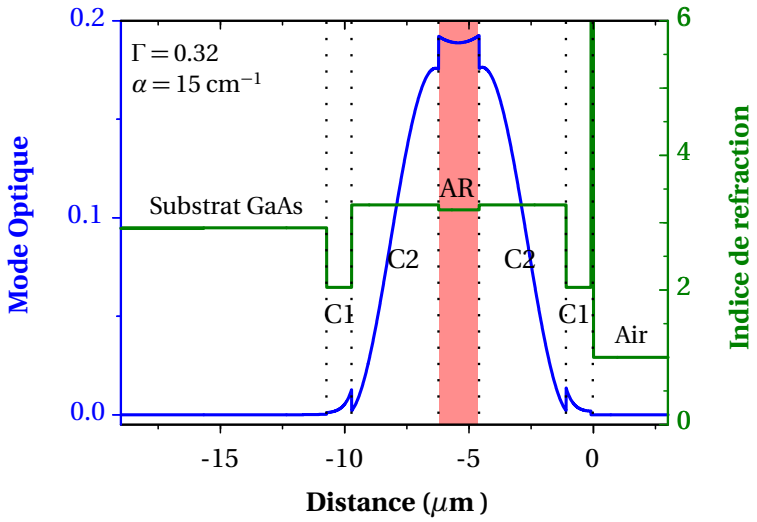


FIGURE 1.16 – Simulation à une dimension (axe de croissance) du mode optique TM (bleu) et indice de réfraction (vert) dans un guide MIR (la zone active est coloriée en rouge). L'étiquette C1 désigne la couche GaAs très dopée, C2 indique la couche tampon.

terne [Yao 2012] pour avoir une raie d'émission fine et accordable. Les LCQ MIR couvrent une bande de longueurs d'onde allant de 3 µm à 25 µm. Ces deux caractéristiques (haute puissance à température ambiante et contrôle spectral) font de ces lasers des dispositifs très adaptés à la détection de molécules ayant des signatures d'absorption dans le MIR [Curl 2010]. Ces applications ont donné naissance à plusieurs sociétés commerciales fabricant des LCQ MIR (Alps Laser, EOS photonics, 3-5 Lab) et des acteurs plus anciens (Hamamatsu) commercialisent à leur tour de telles sources montrant que ces LCQ sont arrivés à maturité.

Première partie

Optique non-linéaire résonante dans les lasers à cascade quantique

Introduction

Depuis le début des années 1960, l'arrivée du laser a ouvert de nouveaux domaines dans le monde de l'optique. La puissance et la cohérence de cette nouvelle source a permis d'explorer de nouveaux champs et de mettre en évidence des phénomènes jusque là inaccessibles. Une de ces nouvelles branches est l'optique non-linéaire qui permet de générer de nouvelles fréquences à partir d'ondes se propageant dans un milieu matériel (doublage de fréquence, somme et différence de fréquences, rectification optique...). Depuis la génération de seconde harmonique par Franken et al. en 1961, de nombreuses avancées ont été faites notamment dans le domaine des impulsions ultra-courtes [Paul 2001], du slow-light (propagation lente de la lumière [Okawachi 2005]) ou de la cryptographie quantique (génération de photons jumeaux [Diederichs 2006]).

Généralement, on peut distinguer deux configurations différentes pour les expériences d'optique non-linéaire : soit les faisceaux optiques sont non-résonants avec les niveaux du milieu où a lieu l'interaction lumière-matière ; soit à l'inverse, ils sont résonants.

Dans le premier cas, l'excitation hors résonance produit des non-linéarités relativement faibles et ne permet pas de générer de manière très efficace de nouveaux faisceaux. Les longueurs d'interaction doivent par conséquent être assez grandes. Il devient alors crucial que la propagation des ondes générées se fasse sans pertes (ou alors très faibles) et que ces ondes interfèrent de manière constructive le long du milieu (condition d'accord de phase). Historiquement, c'est cette approche qui a été développée dans des milieux diélectriques (KDP, KTP). La biréfringence naturelle de ces milieux permet de réaliser l'accord de phase assez facilement.

Lorsque les faisceaux d'excitation sont résonants avec les transitions de la matière (voir figure 2.0), l'interaction lumière-matière est naturellement plus importante. Les pertes par absorption augmentent mais la susceptibilité non-linéaire (grandeur qui caractérise la polarisation non-linéaire, notée χ) est exaltée et on peut travailler avec des longueurs d'interaction plus courtes. Les conditions d'accord de phase étant plus difficiles à réaliser dans les semiconducteurs [Khurgin 1988], la configuration d'optique non-linéaire résonante est privilégiée dans ces matériaux. Les semiconducteurs III-V massifs possèdent de grandes non-linéarités résonantes par rapport aux diélectriques mais c'est véritablement avec les puits quantiques asymétriques que le domaine a gagné de l'intérêt en introduisant une susceptibilité non-linéaire du deuxième ordre. Une ingénierie quantique est apparue pour dessiner des systèmes par-

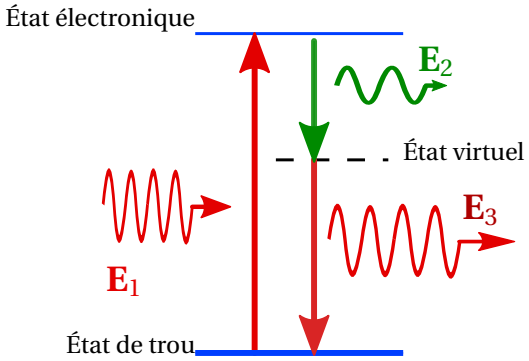


FIGURE 2.0 - Schéma illustrant une interaction non-linéaire simplement résonante entre un faisceau incident (E_1) et la transition interbande d'un semiconducteur. Deux faisceaux sont générés aux énergies E_2 et E_3.

ticulièrement adaptés à l'optique non-linéaire [Rosencher 1996]. On peut en effet calculer la susceptibilité d'ordre 2 dans des puits quantiques asymétriques et optimiser leur dessin pour exalter les effets non-linéaires grâce à un $\chi^{(2)}$ résonant. De plus cette asymétrie peut être contrôlée par l'application d'un champ électrique, ce qui ouvre la voie à de nombreuses applications pour l'optoélectronique.

Ces effets non-linéaires exaltés peuvent être qualifiés de non-linéarités géantes dans le cas de transitions intersousbandes car les dipôles de ces transitions sont très grands (voir chapitre 1). Lorsque les faisceaux impliqués ont des énergies résonantes avec des sous-bandes de la bande de conductions, on peut obtenir des susceptibilités très supérieures à la valeur du matériau massif (10^6 pm/V dans des puits GaAs/AlGaAs [Sirtori 1994] contre 100 pm/V [Patel 1966] pour le massif). Les non-linéarités résonantes avec les transitions interbandes bénéficient également des résonances avec de grands dipôles qui augmentent la susceptibilité non-linéaire par rapport au matériau massif [Fiore 1995]. De plus ces transitions permettent d'utiliser une gamme de longueurs d'onde plus courtes par rapport aux transitions intersousbandes.

Grâce à ces non-linéarités géantes et au confinement de la lumière dans des guides d'onde, ce domaine de l'optique, qui était réservé aux grandes puissances d'excitation, est maintenant accessible à tout type de sources et même à l'extrême avec des sources de photons uniques [Volz 2012].

Le but de cette partie est de démontrer l'existence de non-linéarités résonantes optiques dans les cavités de lasers à cascade quantique THz. Ces nanostructures semiconductrices possèdent de grandes non-linéarité par le dessin de leur structure de bande. L'étude de ces non-linéarités sera dans un deuxième temps étendue aux LCQ moyen-infrarouge (MIR). Pour démontrer la présence de ces non-linéarités résonantes, nous étudions la génération de mélange de fréquences entre une porteuse optique proche infrarouge (NIR) résonante interbande et l'onde présente dans la cavité du LCQ. Par les processus d'optique non-linéaire, il y aura génération de la somme et de la différence de fréquences : $\omega = \omega_{\mathrm{NIR}} \pm n\omega_{\mathrm{LCQ}}$ avec n un entier. Une des particularités de cette interaction non-linéaire est que les énergies des faisceaux incidents sont très éloignés (deux ordres de grandeur). Le schéma du mécanisme (pour $n = 1$) est représenté sur la figure 1.0, où le faisceau E_1 est l'excitation résonante proche-IR (~ 1.5 eV). L'émission E_2 (~ 10 meV) est stimulée par le champ THz de la cavité et la génération de la différence de fréquences (E_3) est émise dans le proche-IR à partir d'un état virtuel dans la bande interdite

du semiconducteur. Dans ce cas on a : $E_1 \sim E_3 \gg E_2$.

Le mélange de fréquences fortement non-dégénérées a été réalisé depuis le milieu des années 1990 [Kono 1997], dans des puits quantiques, tirant avantage des non-linéarités résonantes. Comme nous le verrons par la suite, si les efficacités démontrées dans ces études sont relativement bonnes (jusqu'à 0.2 % [Carter 2004]), l'utilisation d'un laser à électron libre (FEL) comme source externe est toujours nécessaire ce qui empêche toutes applications potentielles à cause de l'encombrement de ce grand instrument.

Le champ intracavité d'un laser à cascade quantique peut s'approcher de celui d'un FEL. En effet, la puissance à l'intérieur de la cavité est plus importante que celle émise en sortie du LCQ et les modes optiques sont confinés dans une épaisseur de 10 μm ce qui permet d'atteindre des puissances de l'ordre de la dizaine de kW/cm^2. Le principe est donc de réaliser une telle conversion de fréquences à l'intérieur de la cavité, utilisant la région active du laser comme milieu non-linéaire. Nous obtenons des efficacités de conversion de l'ordre de grandeur des efficacités obtenues avec une source THz externe volumineuse. D'un point de vue pratique, le dispositif réalisé est tout intégré au LCQ ce qui ouvre la voie à des applications potentielles comme la caractérisation de LCQ THz ou la création d'un décaleur de fréquence tout-optique. Nous reviendrons sur ces applications à la fin du chapitre suivant.

Cette partie s'organise de la façon suivante : dans le premier chapitre, nous exposerons d'abord les principes d'optique non-linéaire nécessaires à la compréhension des mécanismes mis en jeu, puis nous ferons une revue des expériences de mélanges d'ondes réalisées avec une source THz externe et des études montrant les propriétés d'optique non-linéaire des LCQ. Le chapitre suivant présente les résultats majeurs obtenus dans deux échantillons possédant des guides d'onde THz différents : nous montrons d'une part des efficacités de conversion importantes et d'autre part la génération d'ordres supérieurs ($n > 1$) dans un LCQ LO-phonon, plus puissant et dont la structure de bande est plus simple à interpréter. Enfin dans un troisième chapitre nous étendrons cette étude aux lasers à cascade quantique émettant dans le moyen infrarouge ce qui conduit à se rapprocher d'une démonstration de l'interaction non-linéaire dans un LCQ à température ambiante.

CHAPITRE 2

Optique non-linéaire résonante dans les semiconducteurs

Le but de ce chapitre est de décrire le contexte dans lequel se place notre travail. Les principes d'optique non-linéaire présentés dans la première section sont généraux et permettent de mettre en évidence les paramètres clés du mélange de fréquences résonant. On pourra trouver une description plus complète dans des ouvrages de référence [Shen 1984, Boyd 2008]. À partir de l'état de l'art présenté par la suite, nous motivons le travail ce cette thèse. Pour terminer ce chapitre, nous décrivons quelques applications liées aux expériences exposées.

2.1 Optique Non-linéaire

Lorsqu'un faisceau lumineux se propage dans un milieu matériel (dans notre cas un cristal de semiconducteur), le champ électrique associé fait osciller les charges. Il faut d'une part traiter l'oscillation de ces charges (ici par la mécanique quantique), et d'autre part inclure l'effet de ces oscillations dans les équations de Maxwell. Pour résoudre ce problème, nous nous placerons dans un modèle semi-classique et pour rendre compte des effets observés, il faudra considérer une polarisation non-linéaire comme réponse du milieu au champ incident.

2.1.1 Équation de propagation

À partir des équations de Maxwell on peut écrire l'équation de propagation d'une onde électrique **E** se propageant dans un milieu ayant une réponse **P** :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}\,, \tag{2.1}$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide. Dans le cas où le champ **E** est faible devant le champ caractéristique du milieu (typiquement le champ liant l'électron à son noyau atomique), on peut effectuer un développement de la polarisation auto-induite :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r},t) = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r},t) + \mathbf{P}^{(3)}(\mathbf{r},t) + \dots\,, \tag{2.2}$$

où $\mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{r},t)$ est une fonction n-linéaire par rapport aux champs électriques présents dans le milieu.

On peut l'écrire dans le domaine de Fourier de la manière suivante :

$$\mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{k},\omega)=\epsilon_0\sum_{i_1,i_2,i_3,\ldots}\chi^{(n)}_{i_1 i_2 i_3\ldots}(\omega;\omega_1,\omega_2,\omega_3,\ldots)\mathbf{E_1}(\mathbf{k_1},\omega_1)\mathbf{E_2}(\mathbf{k_2},\omega_2)\mathbf{E_3}(\mathbf{k_3},\omega_3)\ldots \tag{2.3}$$

où $\chi^{(n)}$ est par définition le tenseur de susceptibilité d'ordre n. L'ordre 1 caractérise la réponse linéaire du milieu, il définit son indice et son absorption linéaire. Pour un milieu isotrope, on a $\mathbf{P}^{(1)}=\epsilon_0\chi(\omega)\mathbf{E}$. On peut réécrire l'équation de propagation en introduisant l'indice du matériau $n(\omega)=\sqrt{1+\chi(\omega)}$ et en faisant apparaître la polarisation non-linéaire $\mathbf{P}^{\mathrm{NL}}$. Cette somme des différents ordres supérieurs ($n>1$) est le terme source de l'équation de propagation non-linéaire.

$$\Delta\mathbf{E}-n^2(\omega)\frac{\omega^2}{c^2}\mathbf{E}=-\frac{\omega^2}{\epsilon_0^2c^2}\mathbf{P}^{\mathrm{NL}}\,. \tag{2.4}$$

Dans le cas général, cette équation fait apparaître de nombreux termes qui rendent le calcul complexe. C'est pourquoi nous ferons plusieurs hypothèses utilisées couramment pour traiter ce genre de problème. On décrira les faisceaux incidents par des ondes planes monochromatiques se propageant selon l'axe x. De plus, on se placera dans l'approximation paraxiale, c'est-à-dire que le champ électrique peut s'écrire sous la forme : $\mathbf{E}(x,y,z)=\mathbf{A}(x,y,z)\exp(ikx)$, soit le produit d'une enveloppe A, lentement variable et d'une porteuse optique ayant pour vecteur d'onde k dans le milieu. L'enveloppe varie lentement de sorte qu'on peut négliger sa dérivée seconde ($\partial^2A/\partial x^2\ll k\partial A/\partial x$). Par la suite, on s'intéresse uniquement à la direction de propagation [1]. L'équation 2.4 peut se simplifier sous la forme suivante :

$$\frac{dA}{dx}=\frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0c}P^{\mathrm{NL}}(x,\omega)\exp(-ik(\omega)x)\,. \tag{2.5}$$

On partira de cette expression pour écrire le système d'équation qui décrit nos phénomènes dans la suite du chapitre.

2.1.2 Optique non-linéaire du second ordre

Les effets non-linéaires du second ordre ($\chi^{(2)}$) sont ceux les plus facilement observables et ce avec des puissances raisonnables car c'est l'ordre non-linéaire le plus bas. Dans cette section, nous décrirons comment deux faisceaux incidents génèrent de nouvelles fréquences. Après l'étude générale de la génération de la différence de fréquences, nous nous concentrerons sur notre cas spécifique où il s'agit de faire interagir de manière résonante dans des puits quantiques une pompe proche-IR avec un rayonnement THz.

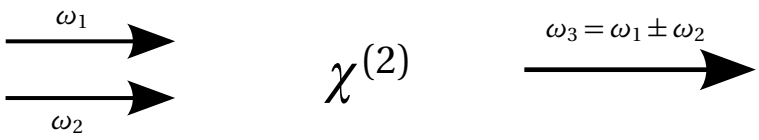


FIGURE 2.1 – Optique non-linéaire d'ordre 2 : deux ondes se propagent dans un milieu non-linéaire possédant une susceptibilité $\chi^{(2)}$ et génèrent une onde de pulsation $\omega_3=\omega_1\pm\omega_2$.

1. Le problème dans les directions transverses a été traité de manière numérique dans la partie sur les guides d'onde des LCQ pour déterminer la forme du mode optique.

La figure 2.1 présente le mélange de deux fréquences, ω_1 et ω_2, se propageant dans un milieu possédant une susceptibilité d'ordre 2. Les propriétés non-linéaires du milieu donne lieu à la génération d'un champ oscillant à la fréquence $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$. Les deux pulsations ω_1 et ω_2 peuvent être dégénérées, il y a alors un doublage de la fréquence ou un phénomène de redressement optique selon le signe. Nous nous sommes surtout intéressés au cas non-dégénéré et plus particulièrement à la génération de différence de fréquences. C'est pourquoi dans la suite nous ne traiterons que ce cas. La génération de la somme de fréquences peut être étudiée de la même façon et fait intervenir des procédés analogues.

Mélange à trois ondes

Dans la configuration du mélange à trois ondes, sont présents dans le milieu les deux champs incidents $\mathbf{E_1}$ et $\mathbf{E_2}$, auxquels s'ajoutent les champs résultants du mélange de ces deux ondes. De nombreux effets d'ordre 2 peuvent apparaître (doublage de fréquences, somme, différence ...). Cependant, nous ne considérons que les plus efficaces, c'est-à-dire ceux pour lesquels l'accord de phase est réalisé (voir plus bas) ou lorsque les champs sont résonants avec des transitions dans le matériau. Dans notre cas, le champ $\mathbf{E_3}$, oscillant à la pulsation $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$, s'ajoute aux deux champs incidents. La polarisation non-linéaire à l'ordre 2 peut alors s'écrire :

$$\begin{aligned} P^{\mathrm{NL}} &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4}(E_1 + E_1^* + E_2 + E_2^* + E_3 + E_3^*)^2 \\ &= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2}(E_1 E_2^* + E_1 E_3^* + E_2 E_3) + c.c.. \end{aligned} \tag{2.6}$$

À partir des équations 2.5 et 2.6, le système non-linéaire décrivant l'évolution des champs selon la direction de propagation s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dx} &= \frac{i\omega_1 \chi^{(2)}}{2n_1 \epsilon_0 c} A_2 A_3 \, \mathrm{e}^{-i\Delta k x} , \\ \frac{dA_2}{dx} &= \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{2n_2 \epsilon_0 c} A_1 A_3^* \, \mathrm{e}^{-i\Delta k x} , \\ \frac{dA_3}{dx} &= \frac{i\omega_3 \chi^{(2)}}{2n_3 \epsilon_0 c} A_1 A_2^* \, \mathrm{e}^{-i\Delta k x} , \end{aligned}$$

où $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$ est le désaccord de phase. La conversion est supposée suffisamment faible pour qu'il n'y ait pas de déplétion des faisceaux incidents. On peut montrer à partir de ce système [Yariv 1997] que la puissance totale se conserve : le milieu sert d'intermédiaire pour la conversion de photons mais n'absorbe pas d'énergie pour effectuer cette conversion. Dans le cas où il n'y a pas d'absorption on peut résoudre ce système pour en tirer **l'efficacité de conversion du mélange** entre le faisceau généré et le faisceau à la pulsation ω_1 :

$$\eta_{\mathrm{diff}} = \frac{I_3}{I_1} = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 I_2}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_3^2} \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} , \tag{2.7}$$

avec I_j et n_j la densité optique et l'indice associé aux amplitudes A_j ($I_j = 2\epsilon_0 n_j |A_j|^2$), L la longueur de l'échantillon où a lieu l'interaction non-linéaire et λ_3 la longueur d'onde du faisceau généré.

Nous voyons, d'après cette expression, que l'efficacité dépend principalement de deux grandeurs sur lesquelles nous pouvons jouer : la susceptibilité $\chi^{(2)}$ et l'accord de phase. Nous verrons dans le paragraphe suivant comment l'efficacité peut être optimisée en rendant le facteur dû à l'accord de phase

négligeable. On notera η_0 l'efficacité pour laquelle le désaccord de phase est nul, soit :

$$\eta_0 = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 I_2}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_3^2} \,. \tag{2.8}$$

Dans cette expression, les indices optiques sont fixés par le semiconducteur et les longueurs d'onde utilisés. Théoriquement, des longueurs d'interaction plus grandes peuvent être utilisées, mais cela n'est valable que lorsque l'excitation est hors résonance et que les pertes sont très faibles.

Les paramètres restants sont les intensités des faisceaux incidents. Dans notre cas spécifique, le mélange de fréquences a lieu entre un faisceau proche-IR (I_1) et la puissance THz intracavité d'un LCQ (I_2). Pour un mélange d'ondes du second ordre, l'intensité du faisceau généré, I_3, est proportionnelle à l'intensité des deux faisceaux initiaux (I_1 et I_2). Cette dépendance linéaire est une signature d'un mécanisme d'ordre deux et nous pourrons l'observer lors de l'exposé de nos résultats. L'efficacité a été définie comme le rapport I_3/I_1 car ces deux faisceaux sont dans le proche-IR contrairement au faisceau I_2 (qui est dans le THz). Pour avoir un mélange d'ondes efficace, il est nécessaire d'avoir un champ THz le plus intense possible.

Optique non-linéaire résonante

La susceptibilité non-linéaire peut être exaltée quand l'énergie des faisceaux mis en jeu entre en résonance avec des transitions entre des niveaux réels du milieu non-linéaire (configuration illustrée sur la figure 2.2). En utilisant le formalisme de la matrice densité et en ne gardant que les termes résonants, on peut écrire la susceptibilité du second ordre [Boyd 2008] :

$$\chi^{(2)}(-\omega_3;\omega_1,-\omega_2) \approx \frac{e^3 N}{2\epsilon_0 \hbar^2} \frac{z_{ln} z_{nm} z_{ml}}{\omega_3 - \omega_{ln} + i\gamma_{ln}} \left(\frac{1}{\omega_1 - \omega_{ml} + i\gamma_{ml}} + \frac{1}{\omega_2 - \omega_{ml} + i\gamma_{ml}} \right) , \tag{2.9}$$

où N est la densité électronique, z_{ij} les moments dipolaires et γ la largeur des niveaux. D'après l'équation 2.9, lorsque les faisceaux sont résonants, le module de la susceptibilité dépend de la partie imaginaire des dénominateurs, c'est-à-dire de l'élargissement des niveaux avec lesquels il y résonance. Il y a alors exaltation des non-linéarités. Dans le cas parfaitement résonant, l'absorption provenant de la partie imaginaire du $\chi^{(1)}$ devient non négligeable pour au moins un des faisceaux et cela est défavorable pour la génération du mélange d'ondes. Il existe donc un léger désaccord (*detuning*) à trouver pour l'énergie des faisceaux pompes afin d'avoir un compromis entre exaltation du $\chi^{(2)}$ résonant et limitation de l'absorption.

Rôle de la symétrie

Lorsqu'on étudie les effets du second ordre (où tout effet d'ordre pair), la symétrie du système joue un rôle primordial. Lors d'une inversion ($\vec{r} \rightarrow -\vec{r}$), les vecteurs **E** et **P** sont transformés en leur opposé. Ceci impose la même chose pour $\chi^{(2)}$ d'après l'équation 2.2. Or si un milieu est centro-symétrique, le tenseur de susceptibilité reste inchangé d'où $\chi^{(2)} = -\chi^{(2)}$ soit $\chi^{(2)} = 0$. Dans les puits quantiques symétriques, la susceptibilité non-linéaire d'ordre deux est également nulle. Le développement du calcul de

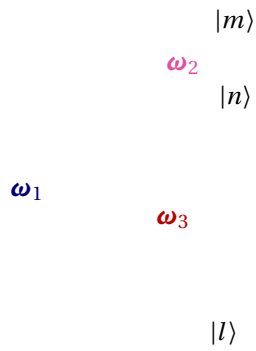


FIGURE 2.2 – Mélange résonant à trois ondes

la susceptibilité non-linéaire [Boyd 2008], montre qu'elle est proportionnelle au produit de trois dipôles :

$$z_{ln}z_{nm}z_{ml} = \langle l|z|n\rangle\langle n|z|m\rangle\langle m|z|l\rangle \ . \tag{2.10}$$

Or, les transitions interbandes dans un puits quantique ne sont autorisées qu'entre états de même parité et les transitions intrabandes entre états de parité différente (voir chapitre 1). Cela impose un produit nul pour l'équation 2.10 car il y a au moins une transition intrabande lors d'une interaction résonante. Pour réaliser une conversion de fréquences se basant sur des effets du second ordre, il faut donc briser la symétrie du potentiel. Cela peut être fait, par exemple, en appliquant un champ électrique sur la structure pour tordre les bandes [Tsang 1990] où en utilisant des puits asymétriques [Khurgin 1988].

Accord de phase

L'expression 2.7 montre que la condition d'accord de phase est importante pour obtenir un mélange de fréquences efficace. Le désaccord de phase est dû à la différence de vitesses de phase entre la polarisation non-linéaire et l'onde optique générée par cette polarisation. À partir d'une certaine distance de propagation, la différence de phase entre les deux ondes atteint π et les interférences destructives empêchent la conversion de fréquences d'être efficace (voir courbe en vert sur la figure 2.3). Cette distance définit la longueur de cohérence, $L_c = \frac{\pi}{|\Delta k|}$. Certaines conditions bien choisies permettent d'annuler le Δk et être dans les conditions d'accord de phase (courbe noir en pointillé, figure 2.3).

Les deux méthodes conventionnelles sont l'accord de phase par biréfringence [Boyd 2008] et le quasi-accord de phase [Armstrong 1962]. La première méthode nécessite d'avoir un milieu non-linéaire biréfringent dans lequel le faisceau incident et généré ont des polarisations orthogonales. L'angle d'incidence est alors ajusté pour accorder les indices des deux polarisations. Dans la deuxième méthode, le milieu est constitué d'un empilement de couche d'épaisseur L_c, à chaque interface la non-linéarité change de signe ce qui compense le déphasage de π (courbe en rouge sur la figure 2.3). La biréfringence dans le GaAs est nulle et il est compliqué de retourner le signe de la non-linéarité dans notre milieu [Yoo 1995], ces deux méthodes ne sont donc pas accessibles pour le milieu non-linéaire avec lequel on travaille. Néanmoins, à l'approche des résonances dans le milieu (résonance avec la bande interdite ou avec l'énergie des phonons du matériau), l'indice de réfraction diverge. Par exemple, l'indice optique du GaAs dans le THz (au-delà de la restrahlen bande) est plus élevé que dans le proche-IR ce qui permet de réaliser l'accord de phase dans le cas de la génération de la différence de fréquences [Berger 2004].

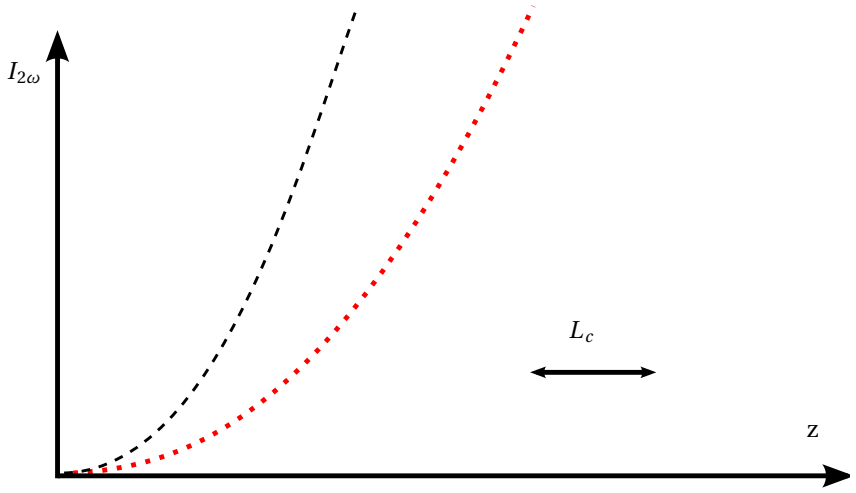


FIGURE 2.3 – Quasi-accord de phase : les différentes courbes montrent l'intensité du faisceau généré en fonction de la longueur de propagation pour trois cas différents : accord de phase parfait, $\Delta k = 0$ (pointillé noir), $\Delta k \neq 0$ (vert) et quasi-accord de phase (rouge).

Lorsque la condition d'accord de phase est remplie, le mélange de fréquences peut se faire sur des longueurs beaucoup plus importantes et est donc plus efficace. Il faut alors prendre en compte les effets de déplétion du faisceau incident I_1 (appelé faisceau pompe).

Conversion de fréquences et absorption

Dans les paragraphes précédents, nous avons considéré la propagation d'onde sans absorption. Cette hypothèse est valable si on se place loin des transitions du matériau. Au contraire dans notre cas, comme nous le montrerons plus tard, nous cherchons à avoir au minimum un faisceau résonant avec la matière. Dans ce cas, il convient d'ajouter un terme d'absorption dans le système d'équations couplées :

$$\begin{aligned}
\frac{dA_1}{dx} &= -\frac{1}{2}\alpha_1 A_1(x) + \frac{i\omega_1\chi^{(2)}}{2n_1\epsilon_0 c} A_2 A_3 \, \mathrm{e}^{-i\Delta kx} \,, \\
\frac{dA_2}{dx} &= -\frac{1}{2}\alpha_2 A_2(x) + \frac{i\omega_2\chi^{(2)}}{2n_2\epsilon_0 c} A_1 A_3^* \, \mathrm{e}^{-i\Delta kx} \,, \\
\frac{dA_3}{dx} &= -\frac{1}{2}\alpha_3 A_3(x) + \frac{i\omega_3\chi^{(2)}}{2n_3\epsilon_0 c} A_1 A_2^* \, \mathrm{e}^{-i\Delta kx} \,,
\end{aligned}$$

où les α_j sont les pertes de chaque faisceaux à la fréquence ω_j au cours de la propagation dans le milieu.

Dans le cas simplement résonant où le faisceau pompe (I_1) est résonante avec la bande interdite, on peut considérer que seul ce faisceau est absorbé de manière efficace. Les pertes de l'autre faisceau incident (THz) sont compensées par le gain obtenu lors de la conversion et celles du faisceau proche-IR généré sous le gap sont faibles devant les pertes de l'excitation résonante et peuvent être négligées ici. La formule de l'efficacité devient alors [Sutherland 2003] :

$$\eta_{\text{diff}} = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 I_2}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_3^2} \frac{\sin^2(\frac{\Delta kL}{2}) + \sinh^2(\frac{\alpha_p L}{4})}{(\frac{\Delta kL}{2})^2 + (\frac{\alpha_p L}{4})^2} \, \mathrm{e}^{-\alpha_p \frac{L}{2}} \,. \tag{2.11}$$

Dans cette expression le premier facteur est identique à l'efficacité η_0 discutée précédemment. Les

autres facteurs font apparaître une compétition entre absorption et accord de phase. Lorsqu'on est à résonance, l'absorption est très grande ($\sim 1000\,\mathrm{cm}^{-1}$ pour les puits quantiques GaAs). Pour avoir un mélange de fréquences efficace dans le cas simplement résonant, il faut que le désaccord de phase Δk soit plus petit que l'absorption α_p. Dans ce cas, la longueur de cohérence est plus longue que la longueur d'absorption et *il n'y a pas besoin de prendre en considération le désaccord de phase* car $\alpha_p \gg \Delta k$. L'efficacité peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$\eta_{\mathrm{diff}} \approx \frac{32\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 I_2}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_3^2} \frac{1}{\alpha_p^2} \,. \tag{2.12}$$

La longueur d'interaction est limitée par la longueur d'absorption. L'efficacité est indépendante de la longueur, L, de l'échantillon car toute l'interaction s'effectue dans les premiers microns du milieu. On retrouve le fait que si la résonance du faisceau pompe permet d'un côté d'avoir une exaltation du $\chi^{(2)}$, cette résonance induit une très forte absorption (α_p) qui est défavorable. Un optimum est à trouver pour maximiser le mélange de fréquences. Si le désaccord de phase domine sur l'absorption alors les deux effets se cumulent et rendent le mélange d'ondes peu efficace comme on le verra au chapitre 4.

Mélange à quatre ondes

Le mélange à quatre ondes ($\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$) est un processus du troisième ordre qui intervient dans la génération d'ordres supérieurs dans le mélange de fréquences. Ce processus est utilisé couramment en optique non-linéaire pour amplifier un signal [Yariv 1977]. Dans ce cas là, les quatre ondes ont des fréquences dégénérées ($\omega_4 = \omega_1 = \omega_2 = -\omega_3$) et l'amplitude en sortie s'écrit $A_{\mathrm{out}}(\omega) \propto \chi^{(3)} A(\omega) A(\omega) A(\omega)^*$ soit $A_{\mathrm{out}}(\omega) \propto \chi^{(3)} |A|^2 A(\omega)$. Dans notre cas il y aura seulement une fréquence qui sera dégénérée deux fois, la fréquence THz. La fréquence de sortie générée sera $\omega_s = \omega_{\mathrm{NIR}} - 2\omega_{\mathrm{LCQ}}$ et l'amplitude du champ en sortie peut s'écrire sous la forme suivante :

$$A_{\mathrm{out}}(\omega) \propto \chi^{(3)} A(\omega_{\mathrm{NIR}}) A^*(\omega_{\mathrm{LCQ}})^2 \,.$$

Le mélange à quatre ondes peut également avoir pour origine un processus du second ordre en cascade [Khurgin 1997]. Dans ce cas là, un faisceau intermédiaire, généré par un processus du second ordre ($A_{\mathrm{int}}(\omega) \propto \chi^{(2)} A(\omega_{\mathrm{NIR}}) A^*(\omega_{\mathrm{LCQ}})$), devient à son tour le faisceau pompe incident pour générer un nouveau faisceau (avec toujours le même processus d'ordre deux). L'amplitude de l'onde ainsi générée s'écrit :

$$A_{\mathrm{out}}(\omega) \propto \chi^{(2)} A_{\mathrm{int}}(\omega) A^*(\omega_{\mathrm{LCQ}}) \propto \chi^{(2)} \times \chi^{(2)} A(\omega_{\mathrm{NIR}}) A^*(\omega_{\mathrm{LCQ}})^2 \,.$$

Le faisceau résultant de cette conversion en cascade a la même dépendance avec les amplitudes des champs incidents que le mécanisme direct en $\chi^{(3)}$, c'est la valeur de la susceptibilité non-linéaire qui change.

Nous reviendrons plus spécifiquement sur ces mécanismes dans la section 3.3 qui traite de la génération de raies latérales d'ordres supérieurs.

2.2 État de l'art

Cette section propose un état de l'art de conversions de fréquences dans les nanostructures de semiconducteurs. L'optique non-linéaire est un champ très vaste et nous nous limiterons à la configuration étudiée dans cette thèse, c'est-à-dire au mélange de fréquences entre deux faisceaux très différents en énergie : l'un dans la région du proche-IR et l'autre dans le THz, soit à une énergie beaucoup plus faible. Dans le premier paragraphe nous exposerons des expériences de mélange d'ondes dans des puits quantiques multiples entre des rayonnements proche-infrarouges et du THz. Ces études se rapprochent de nos expériences dans le sens où des transitions interbandes et intersousbandes sont utilisées pour avoir un mélange de fréquences résonant et ainsi exalter l'efficacité. Toutes ces expériences sont réalisées en utilisant un laser à électron libre comme source THz. Cette source THz est extrêmement puissante et très accordable. La contre-partie est qu'elle n'est pas accessible pour des applications à cause de son encombrement et de son coût.

Dans le deuxième paragraphe nous ferons une revue d'expériences d'optique non-linéaire réalisées dans des LCQ MIR et THz.

2.2.1 Mélange d'ondes dans des multi-puits quantiques

Mélange résonant avec des niveaux excitoniques

Depuis la fin des années 1990 [Kono 1997] des expériences de mélanges d'ondes entre des faisceaux proche-IR et THz ont été effectuées dans des multi-puits quantiques et plus récemment dans des matériaux massifs [Zaks 2013]. L'idée directrice de ces études est d'exciter de manière résonante des excitons (ou magnéto-excitons en présence d'un champ magnétique) avec un rayonnement proche-IR (ω_{NIR}) et d'exciter avec un champ THz intense les résonances *intrabandes* entre les différents niveaux excitoniques.

La référence [Kono 1997] est fondatrice dans ce domaine. Le mélange de fréquences est réalisé dans un échantillon de multi-puits quantiques découplés (25 puits d'une largeur de 10 nm). La figure 2.4 montre le mécanisme résonant entrant en jeu pour la génération de la somme de fréquences selon un processus en $\chi^{(3)}$ résonant. Le processus décrivant la génération de la différence de fréquences est l'exacte réciproque. Il suffit d'exciter les puits quantiques de sorte que le faisceau NIR excite l'état $|2s\rangle$ et que la différence de fréquences soit résonante avec l'état $|1s\rangle$. Le faisceau THz est lui résonant avec des transitions inter-excitoniques. Du fait de la symétrie du système, Kono et al. ne peuvent observer que les ordres pairs du mélange d'ondes. Le faisceau généré aura donc pour pulsation $\omega_{\mathrm{NIR}} \pm n\omega_{\mathrm{THz}}$ avec n un entier pair. Les bandes latérales ont des intensités de l'ordre de 0.15% du faisceau de pompe (voir figure 2.4). Pour le deuxième ordre, soit $n = 2$, l'intensité est linéaire avec la puissance du faisceau proche-IR et quadratique avec la puissance THz ($P_{2\mathrm{nd}} \propto P_{\mathrm{NIR}} P_{\mathrm{THz}}^2$). Ce comportement est la signature d'un effet non-linéaire du troisième ordre.

De plus, dans cet article, un champ magnétique perpendiculaire au plan des puits permet d'ajuster l'écart énergétique entre les états magnéto-excitoniques. Pour le cas (b) sur la figure 2.4, le *detuning* entre les ondes incidentes et les transitions intersousbandes est beaucoup plus faible que dans le cas (a), ce qui conduit à des générations d'harmoniques plus intenses (des règles de sélection supplémentaires apparaissent pour les transitions sous champ magnétique mais nous n'entreront pas dans ces détails).

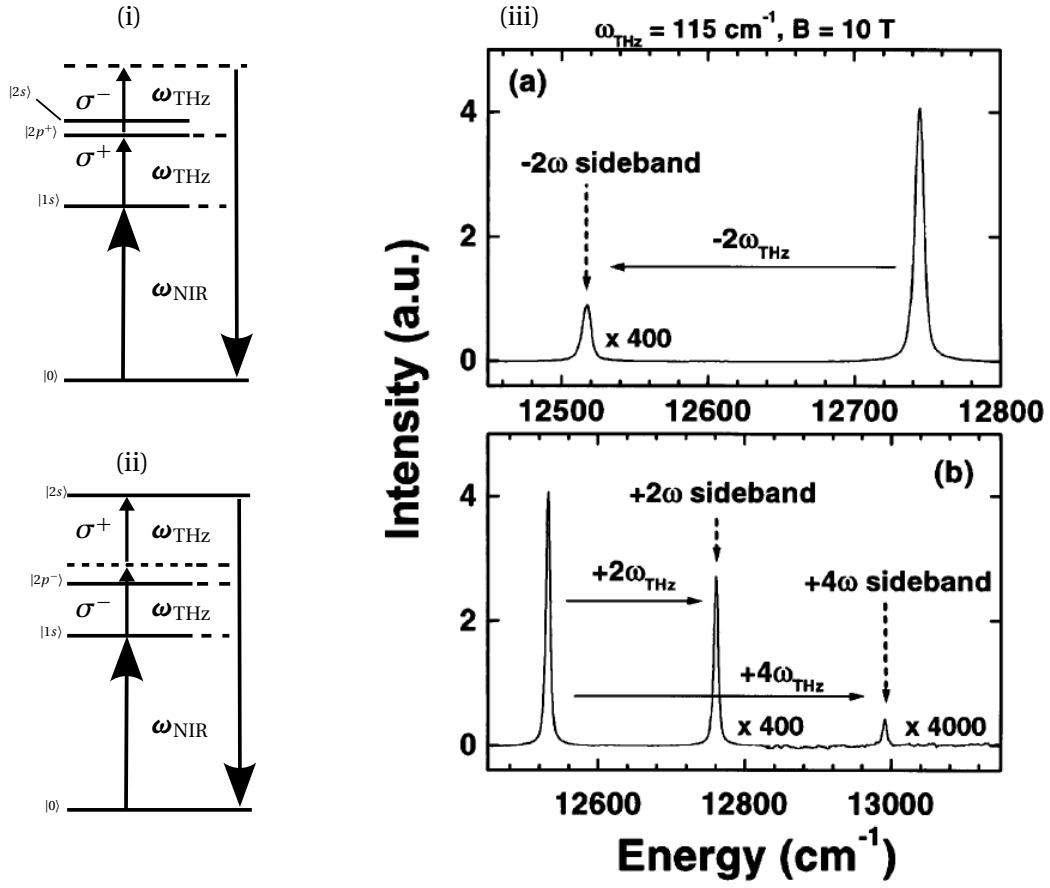


FIGURE 2.4 – Diagramme représentant les processus résonants observés pour la somme de fréquences lorsqu'on augmente le champ magnétique (respectivement 4.5T (i) et 9T (ii)). Les lignes pointillées représentent les états virtuels et les zones grisées le *detuning* entre l'énergie du photon et la transition inter-niveaux excitoniques. (iii) Spectre typique de la génération de la différence (a) et de la somme (b) de fréquences sous champ magnétique ($B = 10$ T). Figure issue de [Kono 1997]

De nombreux articles connexes ont été publiés sur ce schéma (par exemple [Carter 2004] ou [Wagner 2011]) utilisant le FEL de l'université de Santa Barbara (USA, Ca.) ou de Dresde (Allemagne). Pour observer les ordres pairs et impairs du mélange ($\omega_{\mathrm{NIR}} \pm n\omega_{\mathrm{THz}}$ avec $n = 1,2,3...$) Carter et al. utilisent deux puits couplés ce qui brise la symétrie des fonctions d'ondes. L'efficacité atteint 0.2% pour la raie du premier ordre et la génération de bandes latérales est observable à température ambiante [Carter 2004].

Nous porterons notre attention enfin sur deux articles récents [Zaks 2012] [Zaks 2013]. Dans ces études, des ordres supérieurs sont générés jusqu'au 18ème ordre ($E_{18eme} = E_{\mathrm{NIR}} + 18E_{\mathrm{THz}}$) dans des puits quantiques d'$In_{0.06}Ga_{0.94}As/Al_{0.3}Ga_{0.7}As$ (voir figure 2.6). L'excitation interbande proche-IR est résonante mais le rayonnement THz est très en dessous de l'énergie de liaison des excitons. La génération d'ordres supérieurs élevés s'appuie sur un formalisme de recollision électron-trou semblable à celui utilisé pour la génération d'harmonique élevée dans des systèmes dilués (gaz atomique ou moléculaire) [Ferray 1988]. Le champ THz éjecte l'électron de l'exciton et le fait repercuter le trou. Cette recollision donne naissance à un rayonnement dont l'énergie est supérieure à celui de l'exciton nu. Aux ordres élevés, un développement perturbatif ne convient plus, et par exemple la n-ième bande latérale générée ne varie plus comme une loi de puissance n-ième de l'intensité THz.

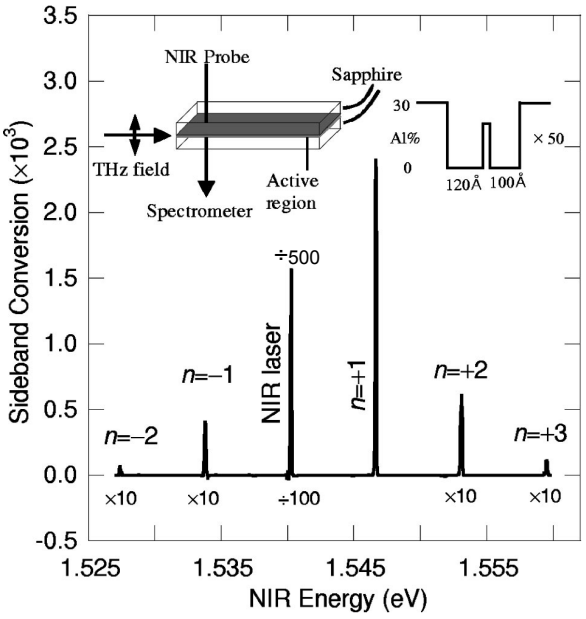


FIGURE 2.5 – Spectre typique de la génération de la différence et de la somme de fréquences à 20 K. En insert, la schéma de l'expérience et le diagramme de la bande de conduction des puits couplés. Figure issue de [Carter 2004]

Les mêmes observations sont présentées dans du GaAs massif [Zaks 2013]. Le champ THz a besoin d'être moins intense car la liaison électron-trou est plus faible dans le massif que pour l'exciton confiné. Dans cette référence, l'évolution de l'intensité de la raie générée en fonction de l'énergie de la pompe NIR montre que l'interaction non-linéaire est efficace quand au moins un des faisceaux proche-IR (excitation ou faisceau généré) est résonant avec une transition réelle de la matière.

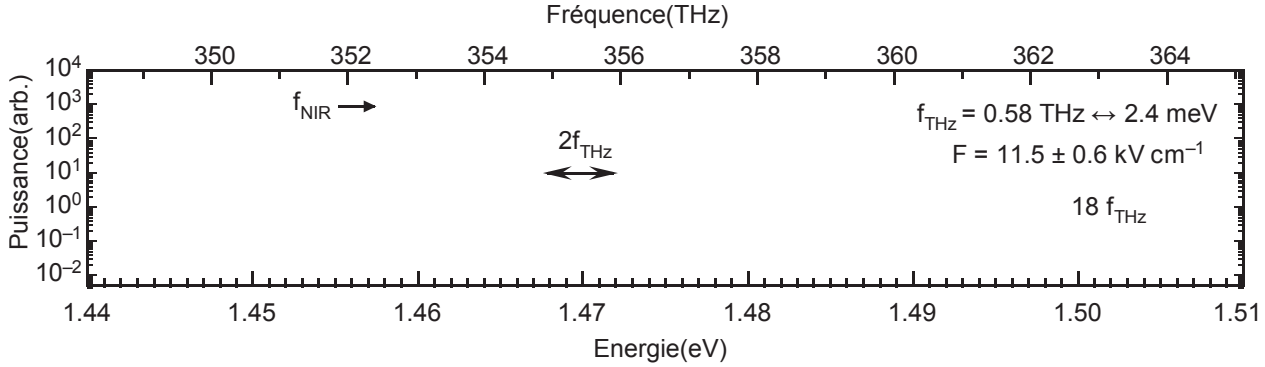


FIGURE 2.6 – Génération de bande latérale d'ordre élevé. Le signal de pompe a été réduit d'un facteur 500. Figure issue de [Zaks 2012].

Mélange résonant avec des niveaux électroniques

Toutes les études précédentes se basaient sur une excitation proche-IR résonante avec des niveaux excitoniques. Cependant, dans le cas d'un LCQ, qui sera le milieu non-linéaire étudié dans cette thèse, il n'y a pas d'excitons. En effet le fort dopage et le champ statique externe appliqué à la structure empêchent la stabilité de cette quasi-particule. Peu de travaux ont été publiés sur des résonances mettant en jeu des niveaux purement électronique dans les puits quantiques. On peut cependant évoquer la ré-

férence [Carter 2005], où sont comparées des expériences de mélange de fréquences dans des puits sans dopage et des puits dopés. Dans ce dernier cas, les résonances sont observées avec les transitions intersousbandes électroniques de la bande de conduction. Ces niveaux électroniques se couplent moins bien à la lumière que les niveaux excitoniques, par conséquent seul le premier ordre est observé avec une efficacité de 0.02 % pour l'ordre $n = +1$, les ordres supérieurs sont trop faibles pour être mesurés.

2.2.2 Conversion de fréquences dans un LCQ

Une des motivations de notre travail est de pouvoir rendre possible la conversion de fréquences dans un système intégré, compatible avec le développement d'applications. Dans ce but, l'utilisation d'une source THz telle qu'un laser à électron libre est à proscrire. Les LCQ THz, bien que moins puissants et fonctionnant seulement à des températures cryogéniques pour le moment ($T_{\max} \approx 200$ K), possèdent l'avantage d'être des sources compactes et robustes.

Nous évoquerons d'abord deux travaux d'optique non-linéaire dans des LCQ, l'un émettant dans le THz et l'autre dans le MIR. Pour finir cet état de l'art nous décrirons dans un dernier paragraphe des expériences de mélange d'ondes dans les LCQ se basant uniquement sur des transitions intersousbandes de la bande de conduction. Si les motivations et le type de non-linéarités dépassent le cadre de cette thèse cela reste des travaux intéressants qui pourraient être mis en perspective avec nos résultats.

Conversion non résonante

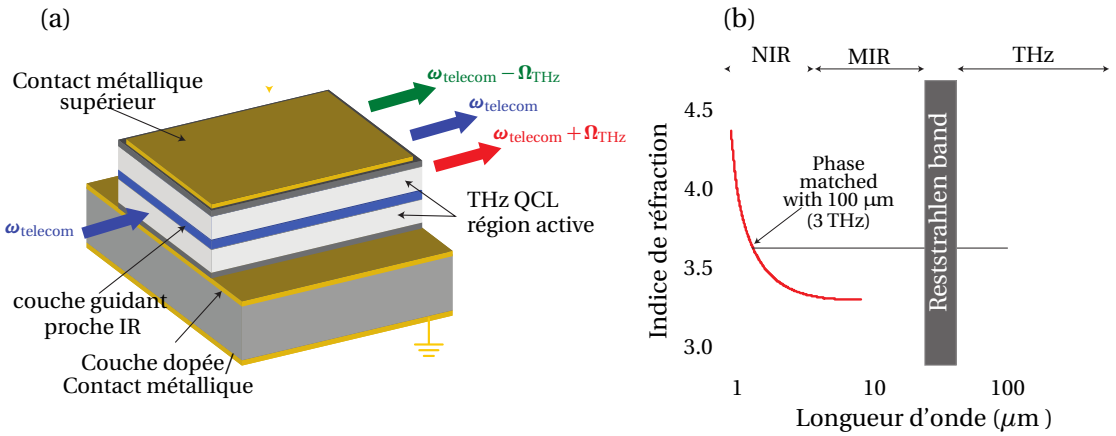


FIGURE 2.7 – (a) Schéma de la géométrie utilisée pour la conversion de fréquences THz vers une porteuse télécom. (b) Dispersion d'indice dans le GaAs pour différente bandes de fréquences. Figures issues de [Dhillon 2007].

Dans le travail de la référence [Dhillon 2007], l'interaction non-linéaire s'effectue hors résonance dans un guide d'onde de GaAs d'une épaisseur d' 1 µm. Cette couche insérée au centre de la région active d'un LCQ THz (voir figure 2.7.a) permet de guider un faisceau aux longueurs d'onde des télécommunications optiques dans le LCQ car l'indice est plus élevé que dans le reste de la zone active. Une conversion du THz est observée sur la porteuse infrarouge avec une efficacité de 10^{-5}. L'originalité de ce travail tient dans le fait qu'ils réalisent l'accord de phase entre les différentes ondes. Ceci est possible car l'indice optique dans le THz diverge à l'approche de la restrahlen bande (bande correspondant à l'énergie des phonons optiques). Cette condition d'accord de phase permet d'avoir une efficacité relativement bonne si on considère que la susceptibilité du GaAs massif est assez faible ($\chi^{(2)} \sim 100$ pm/V [Patel 1966]) comparée aux valeurs des systèmes résonants (voir plus haut). On peut voir sur la figure 2.7, la géomé-

trie de l'expérience (très similaire à celle qu'on utilisera), un faisceau proche-IR est couplé dans le LCQ via une de ses facettes et se propage dans le guide d'onde décrit plus haut. La figure 2.7.b représente la dispersion des indices ; l'indice est plus élevé dans le THz ce qui suffit à remplir la condition d'accord de phase (courbe en rouge) [Berger 2004]. L'efficacité est limitée par les pertes dans le guide qui empêche d'utiliser des longueurs de cavité plus grande.

Conversion résonante dans un LCQ MIR

L'étude réalisée par [Zervos 2006] se rapproche des travaux que nous présenterons dans la partie sur le mélange d'ondes dans des LCQ MIR. Cet article décrit la génération de la somme de fréquences entre un faisceau pompe résonant avec la bande interdite du GaAs et le rayonnement MIR du LCQ. Le faisceau généré est lui aussi résonant avec une transition interbande. Pour éviter que l'onde résultante ne soit trop absorbée, le LCQ est excité par la surface où une partie du métal a été enlevée. Un miroir de Bragg se situe sous la région active du LCQ ce qui permet de réfléchir le proche-IR. La longueur d'interaction pour la conversion de fréquences est donc courte et vaut à peu près deux fois l'épaisseur de la région active. Leur géométrie ne permet d'avoir accès qu'à une très faible longueur d'interaction et les efficacités obtenues à basse température (15 K) sont faibles malgré le $\chi^{(2)}$ doublement résonant (de l'ordre de $10^{-6} - 10^{-5}$.)

Génération de THz à partir de LCQ MIR

Nous venons de présenter deux études réalisant des expériences d'optique non-linéaire dans des LCQ au moyen d'un faisceau externe. On peut également étudier les propriétés non-linéaires des LCQ en n'utilisant que les ondes générées par ce dernier. Les motivations de ces expériences sont différentes des nôtres puisqu'il s'agit de générer de l'émission THz à partir de LCQ MIR. Cependant, ces travaux montrent l'intérêt des non-linéarités dans les LCQ et pourraient être mis en perspective avec nos résultats à plus long terme. La littérature sur les effets non-linéaires résonants dans les LCQ est riche. Utiliser un LCQ permet de combiner un milieu possédant des non-linéarités intersousbandes très grandes avec un champ intracavité intense. De plus il n'y a pas de problème de couplage du faisceau pompe avec le milieu non-linéaire qui peut occasionner des pertes. Un des premiers buts a été de faire de la génération de seconde harmonique et de somme de fréquences avec un laser MIR émettant à deux fréquences MIR (7.1 μm et 9.5 μm) [Owschimikow 2003]. L'intérêt dans cet article est d'atteindre des longueurs d'onde plus courtes et de démontrer la possibilité de sources non-linéaires à partir de LCQ.

La génération de différence de fréquences dans un LCQ MIR a aussi suscité beaucoup d'intérêts récemment [Belkin 2007]. Il présente un intérêt technologique comme émetteur THz à température ambiante. En effet la différence de deux fréquences moyen infrarouge bien choisies donne une émission dans le THz. Un LCQ hétérogène constitué de deux empilements émet à deux fréquences dans le MIR (7.6 μm et 8.7 μm). Le mélange de ces deux ondes est doublement résonant avec les niveaux intersousbandes de l'empilement émettant à 8.7 μm (voir figure 2.8.a).

Dans des travaux plus récents, la condition d'accord de phase est satisfaite par la technique de *Čerenkov phase matching* [Vijayraghavan 2012] [Lu 2012]. L'accord de phase dans ces structures peut aussi être réalisé en jouant sur les indices des modes optiques confinés [Lu 2013]. Du fait de la réalisation de la condition d'accord de phase, ces dispositifs permettent d'émettre du THz jusqu'à ~ 65 μW à température ambiante et d'avoir une bonne accordabilité . Les figures 2.8.b) et 2.8.c) montrent respectivement les spectres des LCQ MIR utilisés et les spectres de l'émission THz résultant de la génération de différence

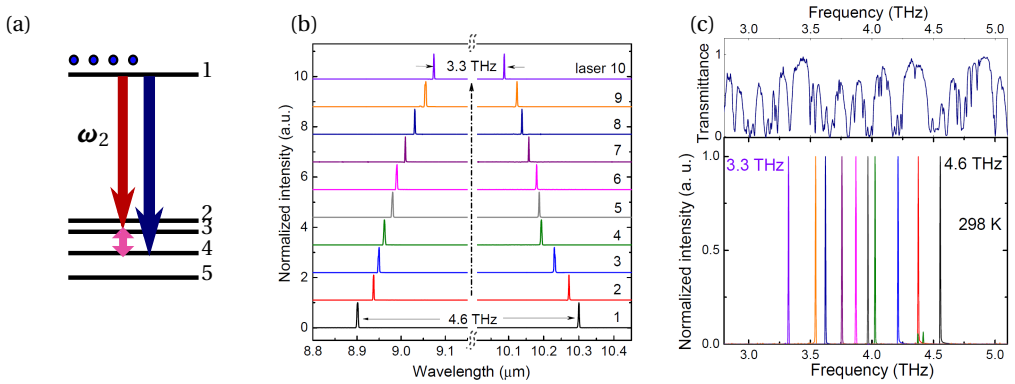


FIGURE 2.8 – (c) Diagramme du mécanisme doublement résonant. Figures (a) issues de [Belkin 2007]. (b) Spectre MIR normalisé des lasers utilisés pour la génération de différence de fréquences. (c) Spectres normalisés THz correspondant et spectre de la transmittance de l'atmosphère utilisée pour les mesures. Figures (b) et (c) issues de [Lu 2013].

de fréquences.

2.3 Motivations de notre étude

L'état de l'art montre qu'il y a de nombreux travaux démontrant la génération de différence de fréquences entre une porteuse proche-IR et un photon THz. L'utilisation de lasers à cascade quantique comme milieu non-linéaire est aussi largement éprouvée. Les résonances interbandes et intersous-bandes possibles assurent une exaltation de la susceptibilité non-linéaire.

Partant de ces deux ensembles d'études, l'idée directrice de cette partie est d'étudier l'interaction entre le rayonnement proche-IR et THz dans un dispositif intégré à un LCQ. Cette interaction permettra de réaliser un mélange de fréquences efficace. Les champs THz à l'intérieur de la cavité ont des densités de puissance très intenses ($\sim 10\,\mathrm{kW/cm^2}$) du fait du grand confinement du champ dans le guide d'onde THz. Ces densités se rapprochent de celle des FEL. Dans le paragraphe suivant, nous verrons que la réalisation d'un tel dispositif ouvre la voie au développement d'applications comme, par exemple, un décaleur de longueurs d'onde tout-optique.

Applications

Au-delà de l'aspect fondamental de l'interaction lumière-matière dans les LCQ qui nous intéresse, notre dispositif expérimental ouvre la possibilité de deux applications. La réalisation d'un décaleur de longueurs d'onde tout-optique grâce à des processus d'optique non-linéaire est intéressante pour les télécommunications optiques. Le multiplexage fréquentiel est un ingrédient essentiel pour augmenter le débit des réseaux de fibres optiques [De Cusatis 2002]. En effet, dans une fibre chaque fréquence/longueur d'onde correspond à un canal d'information. Il est donc utile de pouvoir modifier la fréquence d'une porteuse optique pour maîtriser le multiplexage fréquentiel. Ceci est réalisé conventionnellement avec des solutions optoélectroniques. L'information est démodulée en un signal électrique de base qui est ensuite transféré sur une porteuse optique d'une longueur d'onde différente. Cette technique a pour désavantage d'être plus lente par rapport à une méthode dite tout-optique. L'optique non-linéaire permet la génération de mélanges de fréquences entre une porteuse optique proche-IR et

une onde THz. On obtient alors la somme et la différence des fréquences, décalant ainsi la longueur d'onde initiale. Le processus non-linéaire dépend de la puissance THz du LCQ. Cette puissance peut être ajustée par la densité de courant appliquée au LCQ. Les LCQ peuvent être modulés jusqu'à des fréquences GHz [Barbieri 2007] ce qui permet de moduler directement le faisceau généré par le mélange de fréquences non-linéaire et faire ainsi une remise de forme des signaux.

La deuxième application découlant du mélange de fréquences est de faire de la conversion de THz vers le proche-IR (ou *up-conversion* en anglais). Le principe est que la différence de fréquences générée possède une information provenant du photon THz (énergie, largeur,...). La raie générée est facilement détectable puisqu'elle se trouve dans le proche-IR. Nous avons évoqué en introduction de cette thèse le fait qu'il n'était pas facile de détecter du rayonnement THz. Cette *up-conversion* permet d'obtenir des informations sur un faisceau THz en utilisant les techniques matures du proche-IR. Nous verrons aussi dans le chapitre suivant comment la conversion de fréquences permet de réaliser le spectre d'un LCQ THz sans utiliser de spectromètre FTIR (Fourier transform infrared) et sans mouvement mécanique nécessaire à l'acquisition du spectre.

CHAPITRE 3

Génération de mélange de fréquences résonant dans un LCQ THz

Ce chapitre est divisé en trois sections principales. La première partie expose l'expérience de base qui permet de démontrer le mélange d'ondes dans un LCQ THz. Nous montrons le caractère résonant de l'interaction. La seconde section présente une autre géométrie qui permet d'éviter les problèmes d'absorptions pour étudier des processus doublement résonants. Enfin nous démontrons comment des ordres supérieurs ($E = E_{\mathrm{NIR}} + nE_{\mathrm{THz}}$ avec $|n| > 1$) peuvent être générés dans un LCQ plus puissant à dépopulation par phonon LO.

3.1 Mélange de fréquences simplement résonant

Dans cette section nous démontrons qu'on peut générer la différence de fréquences de manière résonante entre une pompe proche-IR et le champ THz d'un LCQ. Le champ THz confiné à l'intérieur du guide d'onde du laser atteint des densités importantes ($\sim 10\,\mathrm{kW/cm^2}$) ce qui permet d'exalter les effets non-linéaires. La figure 3.1 montre une vue d'artiste de l'expérience réalisée [1]. La pompe NIR est couplée par une facette dans le LCQ puis est guidée le long de la cavité (de même que la différence générée car les deux ondes ont des fréquences proches). Le processus non-linéaire a lieu à l'intérieur de la cavité qui possède de très grandes non-linéarités du fait de l'excitation résonante interbande. Le LCQ joue donc un triple rôle :

1. la source THz,
2. le milieu non-linéaire,
3. le guide d'onde des trois faisceaux participant au mélange d'ondes.

La figure 3.2 montre un schéma simplifié de la structure de bande et présente les énergies et les transitions mises en jeu dans le mélange de fréquences. Les états en vert de la bande de conduction désignent l'état haut (E_h) et bas (E_b) du laser THz. La différence d'énergie entre ces deux sous-bandes est de l'ordre de 10 meV. Le faisceau de pompe ($\sim 810\,\mathrm{nm} - 1.53\,\mathrm{eV}$) excite des états de trous dans la bande de valence et photo-excite ces électrons dans les états bas de la bande de conduction. L'énergie de la pompe se situe donc au-dessus de la bande interdite effective des puits quantiques. La bande interdite effective est définie par l'énergie de la transition verticale entre les premiers états confinés de la bande

1. Cette image peut être trompeuse car dans la configuration de pompe résonante, les photons NIR sont très absorbés par le LCQ et ne sont pas extraits à la sortie de la facette opposée. les photons détectés sur la caméra à l'énergie de la pompe proviennent majoritairement de photons parasites non couplés.

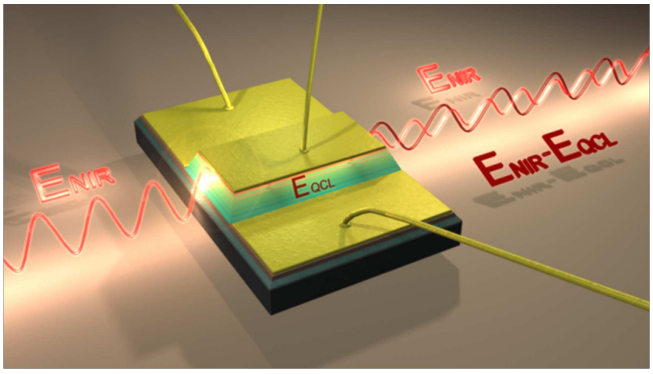


FIGURE 3.1 – Représentation schématique de la géométrie de l'expérience. Une onde proche-IR (E_{NIR}) est couplée via la facette d'un LCQ émettant à l'énergie E_{QCL}. L'onde proche-IR non couplée ainsi que l'onde générée à l'énergie (E_{NIR} - E_{QCL}) sont détectées à la sortie de la facette opposée. (*Crédits David Darson*).

valence et de conduction. Cette énergie vaut $\sim$ 1.525 eV pour les LCQ THz utilisés. La génération de différence de fréquences est stimulée par la présence du champ THz dans la cavité et par conservation de l'énergie, l'émission du faisceau généré s'effectue à partir d'un état virtuel situé sous le gap du matériau. Elle n'est ainsi pas ou peu absorbée par le LCQ. Le niveau virtuel est un état intermédiaire qui "apparaît" dans la bande interdite du semiconducteur lors du processus d'émission de la différence de fréquences. L'excitation résonante de la pompe exalte les non linéarités du matériau.

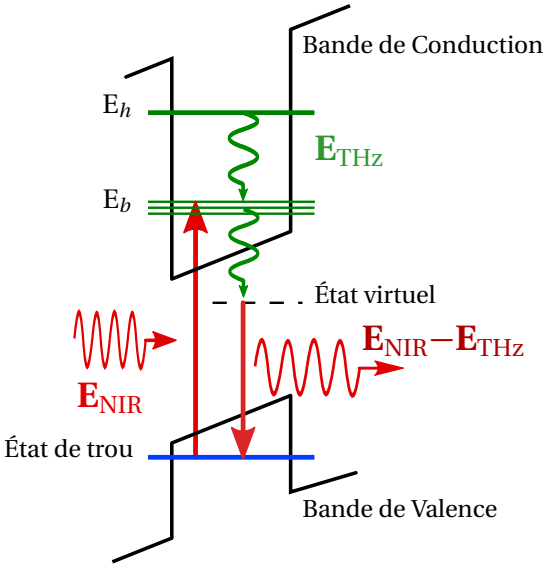


FIGURE 3.2 – Diagramme schématique de la structure de bande (simplifiée à un seul puits) et des énergies des faisceaux du mélange à trois ondes.

Un point essentiel dans cette configuration est le rôle de filtre spectral que joue le LCQ. Il facilite ainsi la mise en évidence expérimentale en absorbant fortement la pompe et en étant transparent pour le faisceau généré. La génération de la somme est également observable mais nous ne bénéficions pas de l'effet du filtre de la pompe par le LCQ, nous en parlerons peu dans cette partie du fait qu'elle est plus difficilement observable expérimentalement. Cependant les mécanismes résonants sont très semblables.

Nous parlerons d'ordre négatif lorsqu'on évoque la génération de différence de fréquences ($n = -1$ dans l'équation générale $E_d = E_{\mathrm{NIR}} + nE_{\mathrm{THz}}$) et réciproquement d'ordre positif pour la somme.

3.1.1 Mise en évidence du mélange d'ondes

3.1.1.1 Montage Expérimental

Pour réaliser l'interaction non-linéaire, nous utilisons une géométrie dite colinéaire où les trois faisceaux (pompe NIR, THz et différence de fréquences) se propagent dans la même direction et le même sens. La figure 3.3 présente un schéma de principe du montage expérimental. Le laser à cascade quan-

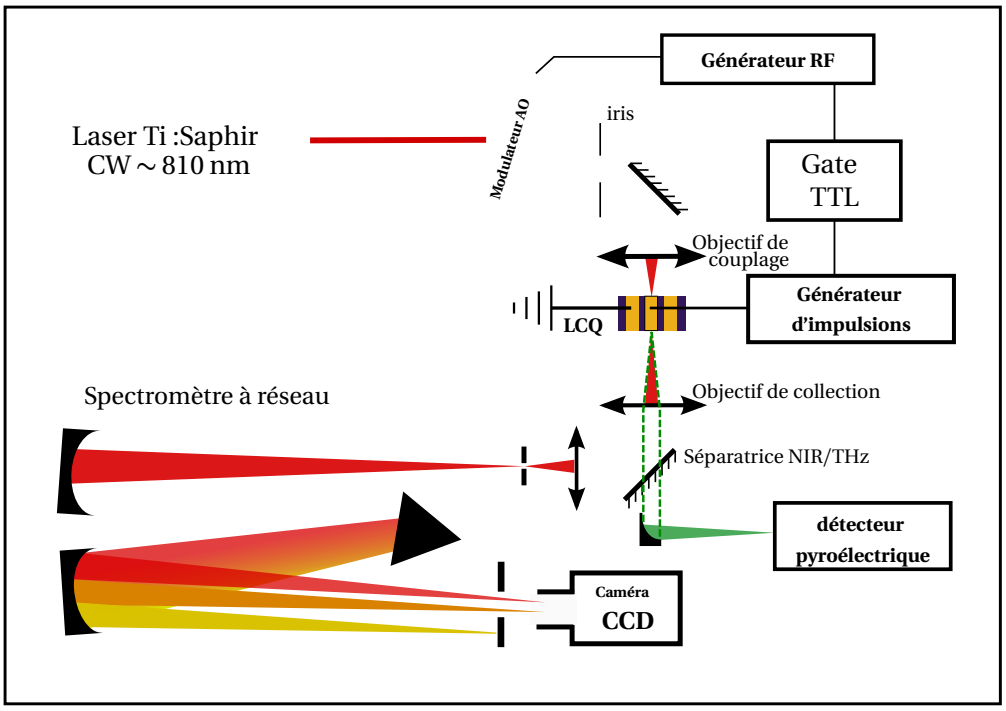


FIGURE 3.3 – Schéma de principe du montage utilisé pour générer du mélange de fréquences. (La séparatrice NIR/THz est remplacée par un miroir quand on ne cherche pas détecter le THz.)

tique est refroidi aux alentours de 10 K par le doigt froid d'un cryostat à circulation d'hélium liquide. Les fenêtres du cryostat sont montées sur une tête particulièrement étroite qui permet de travailler avec des distances focales relativement petites (voir figure 3.4). Elles sont composées de quartz qui est transparent dans le NIR et absorbe peu dans le THz.

La source laser pour la pompe NIR est un laser Ti-Saphir utilisé en continu. Il couvre une gamme de longueurs d'onde allant de 720 nm à 920 nm. Ce laser peut délivrer jusqu'à 1.6 W en continu. Les puissances nécessaires sont de l'ordre de la centaine de µW. En utilisant des filtres à densité optique, la valeur de la puissance NIR est ajustée au besoin sur une très large gamme.

Le faisceau passe à travers un modulateur acousto-optique. L'utilisation de cette modulation sert à synchroniser le laser Ti :Saphir avec le LCQ. Certains LCQ THz sont capables de fonctionner avec une alimentation continue, mais pour des échantillons nécessitant une grande puissance électrique, il est préférable de les faire fonctionner avec une alimentation impulsionnelle pour avoir de meilleures performances. De plus, de fortes puissances électriques à dissiper induisent un risque d'avoir des fluctuations thermiques qui perturbent la position de l'échantillon dans l'alignement optique. Quand le LCQ

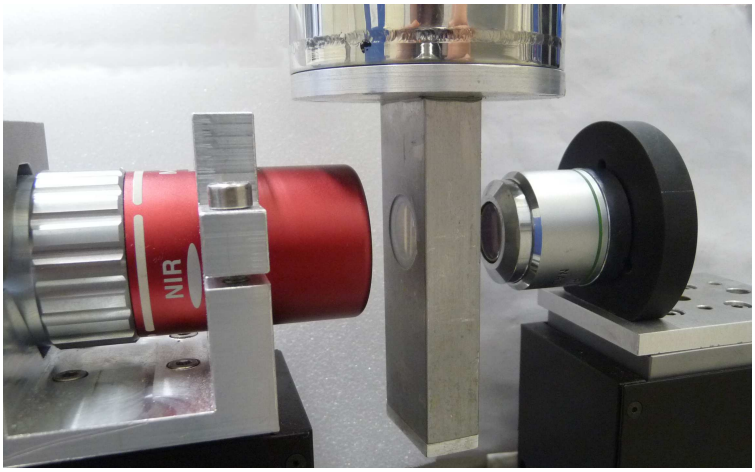


FIGURE 3.4 – Vue de profil du cryostat utilisé et des objectifs de couplage (gauche) et de collection (droite).

est éteint, le mélange de fréquences n'est pas possible mais l'excitation NIR génère de la photoluminescence. Le détecteur fait des acquisitions en continu, s'il n'y a pas de synchronisation entre l'excitation lumineuse et l'alimentation du LCQ, on détectera un signal moyenné dont une partie non désirée viendra du LCQ éteint. Ce modulateur est composé d'un cristal d'oxyde de tellure (TeO_2) qui est soumis à une excitation d'un transducteur piézoélectrique. Cette excitation génère une onde acoustique stationnaire dans le cristal. Par diffusion Brillouin (interaction photon-phonon acoustique), une partie du faisceau NIR est déviée d'un angle θ qui dépend de la longueur d'onde du photon incident (cependant sur une plage de 20 nm autour de 810 nm, on peut considérer cet angle constant en première approximation).

On utilise un objectif de microscope de marque Mitutoyo constitué de lentilles plano-apochromatiques (grossissement $\times 100$) pour coupler dans le laser à cascade quantique. Cette technologie permet d'avoir des distances de travail relativement longues de 17 mm ce qui est nécessaire à cause de l'encombrement du cryostat. Un objectif avec un grossissement un peu plus faible ($\times 20$) collecte la lumière émise à la sortie du LCQ. On analyse ensuite le rayonnement au moyen d'un spectromètre à réseau couplé à une caméra CCD (couple-charged device) refroidie par des modules Peltier à $-20\,°C$. Cette caméra a été mise au point par le service électronique du laboratoire. Nous avons à disposition dans le spectromètre trois réseaux avec différentes densité de lignes : 300 l/mm (avec un blaze centré sur 500 nm), 1200 l/mm (750 nm), 1800 l/mm (500 nm). L'utilisation du réseau de 300 l/mm permet d'acquérir un spectre sur une largeur de 75 meV avec une résolution de ~ 0.15 meV. Les spectres de micro-photoluminescence ont été faits avec ce réseau qui permet d'avoir une vue d'ensemble de l'émission. À l'inverse on utilisera le réseau à 1800 l/mm pour avoir la meilleur résolution possible (20 µeV). Il permet également de restreindre la plage d'analyse (7 meV) et d'utiliser le spectromètre en quasi-monochromateur. Cela a l'avantage de n'observer que la longueur d'onde d'intérêt et d'écarter un faisceau de pompe qui éblouit la caméra. On utilisera ce réseau pour l'observation des ordres supérieurs (voir la section 3.3).

À partir de ce schéma expérimental, on peut envisager plusieurs configurations pour faire des mesures différentes :

Mesure simultanée de la puissance THz

Il peut être intéressant de modifier légèrement le montage pour détecter la puissance THz émise par le LCQ (voir figure 3.3). Cela permet de vérifier que les performances du LCQ ne sont pas modifiées avec l'excitation de la pompe. Pour pouvoir mesurer l'émission du LCQ simultanément avec celle de la bande latérale, l'objectif de collection est remplacé par un objectif réfléchissant (×15) fonctionnant tel un *télescope* (ensemble de deux miroirs concaves). Cet objectif peut donc collecter aussi bien le THz que le NIR. Le miroir suivant l'objectif est remplacé par une séparatrice NIR/THz constituée d'un substrat de silicium haute résistivité d'une épaisseur de 300 µm. Le silicium est transparent dans le THz et réfléchit le proche-IR. On peut alors placer un miroir parabolique derrière cette séparatrice pour focaliser le THz sur un détecteur pyroélectrique (faisceau vert sur la figure 3.3). La tension du LCQ est modulée à basse fréquence (25 Hz) pour mesurer la sortie du détecteur pyroélectrique sur une détection synchrone. Le faisceau proche-IR est réfléchi par le disque de silicium avec peu de pertes et suit le chemin optique usuel.

Mesure de photoluminescence

Comme on le verra dans la section 3.1.4, il est utile de mesurer le spectre de photoluminescence du LCQ pour pouvoir déterminer les transitions interbandes en présence. Pour mesurer la photoluminescence, il faut avoir une géométrie confocale, c'est-à-dire que l'objectif de couplage sert aussi à collecter le signal (figure 3.5). Le LCQ est excité très au-dessus de son gap ($\lambda_{\text{excitation}} = 710$ nm) à faible puissance (~ 100 µW). La photoluminescence émise par la facette d'entrée est collectée par le même objectif et est dirigée vers le spectromètre par une séparatrice très fine qui dévie peu les faisceaux en transmission.

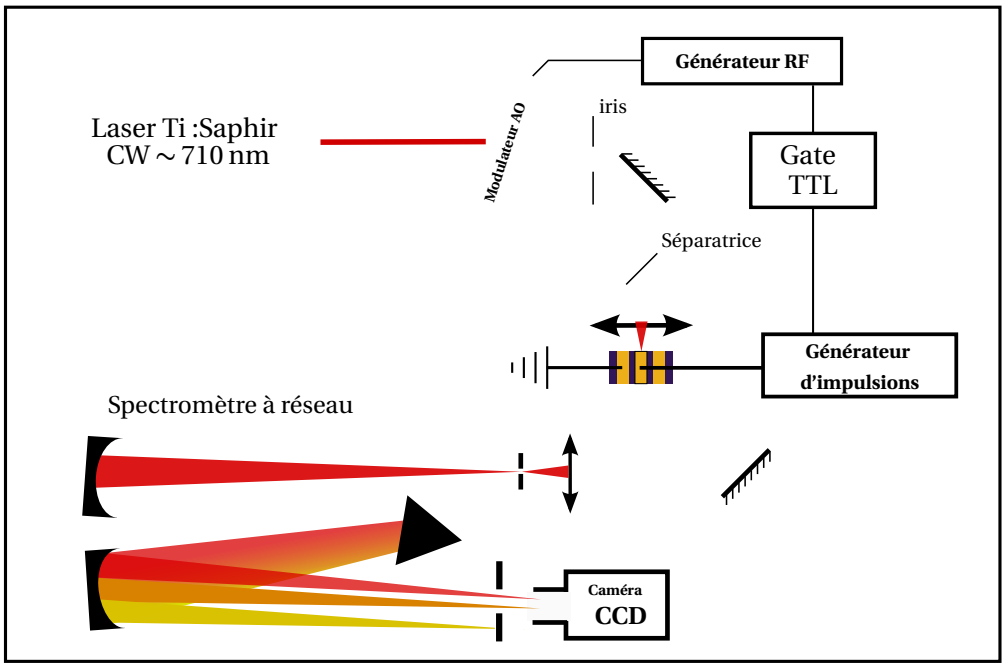


FIGURE 3.5 – Schéma de principe du montage de micro-photoluminescence. La puissance avant l'objectif est d'environ 100 µW.

La caméra CCD mesure en continu quelque soit l'alimentation du LCQ ou la modulation de la pompe faite par l'acousto-optique. Plus le rapport cyclique de l'impulsion lumineuse est faible, moins il y aura

d'intensité sur la caméra et il faudra intégrer d'autant plus pour avoir un rapport signal sur bruit convenable. On obtient en sortie une image 2D. L'axe des abscisses donne l'énergie du rayonnement. C'est selon cette direction que les fréquences sont dispersées par le réseau. La caméra CCD est calibrée avec lampe à vapeur de Krypton dont les raies sont bien identifiées [Driscoll 1978]. L'axe des ordonnées donne l'extension spatiale du faisceau car il n'y a pas de déviation selon cette direction. De manière générale, on fera la moyenne des lignes où il y a une intensité non-nulle ce qui nous ramènera à un spectre unidimensionnel. On ne présentera par la suite que des spectres. Les images 2D sont utiles pour distinguer le bruit du signal réel car les raies parasites ont en règle générale une extension verticale différente du signal.

3.1.1.2 Guidage et couplage du proche-IR dans le LCQ

Une étape critique dans la réalisation expérimentale est de faire en sorte que le faisceau externe soit bien couplé dans le guide car son épaisseur est de l'ordre de 10 µm. Il faut vérifier également que les faisceaux se propagent bien dans le milieu non-linéaire.

Comme on l'a vu au premier chapitre, le THz est guidé par un plasmon de surface qui est confiné par la couche métallique déposée au-dessus du ruban laser. L'échantillon utilisé ici possède la spécificité d'avoir une couche de 300 nm d'$Al_{0.5}Ga_{0.5}As$ entre la région active et le substrat [2]. Cette couche permet de guider le proche-IR, comme le montre les simulations du mode optique (voir figure 3.6). En effet l'alliage ternaire a un indice optique plus faible que l'indice moyen de la région active et ces 300 nm servent de gaine au guide proche-IR.

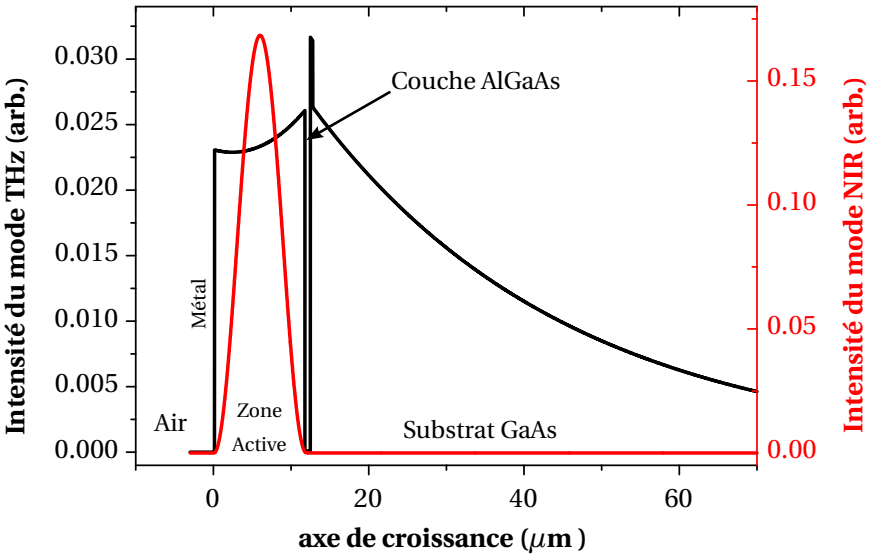


FIGURE 3.6 – Simulation unidimensionnelle de l'intensité modale des faisceaux guidés THz ($\lambda = 100$ µm en noir) et proche-IR ($\lambda = 880$ µm en rouge) polarisé transverse magnétique (TM). L'origine est prise au niveau de la couche métallique supérieure.

Dans cette géométrie de guide simple plasmon, il y a un recouvrement de 20 % entre la région active et le mode THz. Le mode THz décroît ensuite de manière exponentielle dans le substrat.

2. L'échantillon utilisé vient en réalité d'une croissance destinée à être mis sous la forme d'un laser "double-métal". Pour ces croissances, une couche d'arrêt en AlGaAs sert à interrompre la gravure au moment du processus.

Une autre solution possible pour guider le proche-IR, consiste à insérer une couche de GaAs au centre de la zone active comme dans la référence [Dhillon 2007]. L'indice plus élevé du GaAs confine la pompe dans cette zone. Cette solution ne permet pas de générer la différence de fréquences en utilisant des non-linéarités résonantes. En effet, dans ce cas il n'y a pas de recouvrement entre la pompe NIR et les puits quantiques de la zone active.

Il est difficile de savoir de manière précise quelle quantité de lumière est couplée dans le guide d'onde décrit plus haut. Cette quantité est importante pour déterminer l'efficacité du mélange de fréquences ($I_{\text{diff}}/I_{\text{NIR}}$). Pour évaluer le couplage, on se place dans le domaine de transparence de la région active. On compare la puissance en sortie de l'objectif de collection avec et sans LCQ (cela permet de soustraire les pertes dues aux objectifs). On peut ainsi déterminer l'efficacité de couplage à 20 %. De ce fait, pour les mesures présentées plus bas seul 20 µW des 100 µW de la pompe sont couplés dans le ruban. Cette méthode ne nous permet pas de savoir si une partie du faisceau incident est couplée dans le substrat du LCQ. Si tel est le cas, alors le couplage est surestimé et cela conduira à une sous-estimation de l'efficacité du mélange de fréquences.

3.1.1.3 Caractérisation électrique du LCQ

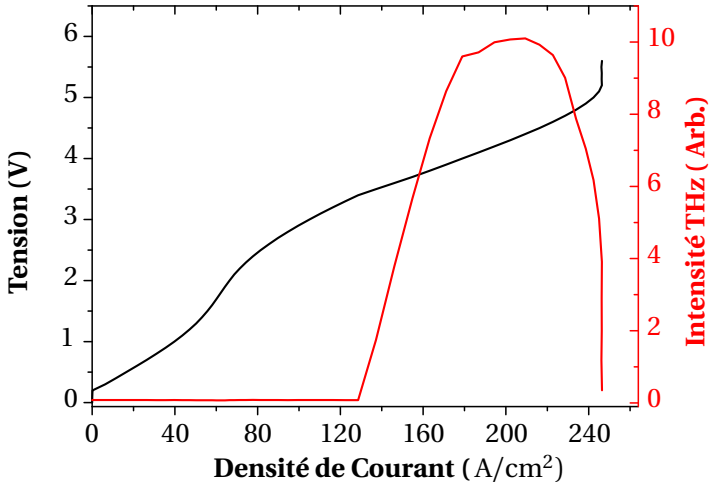


FIGURE 3.7 – Caractéristique Lumière-tension-courant de l'échantillon V193 à 10 K. Un ruban de 1.5 mm de long et de 250 µm est alimenté en continu. Le seuil laser est atteint pour une densité de courant de 128 A/cm^2.

Pour cette première mise en évidence, nous avons utilisé un LCQ basé sur un dessin bound-to-continuum émettant à 2.8 THz. La croissance de ce laser a été réalisée à l'université de Cambridge et la fabrication du ruban au laboratoire MPQ de l'université Paris VII. Cet échantillon, nommé V193, est décrit dans l'article [Barbieri 2004]. L'intérêt de ce laser est qu'il ne consomme pas beaucoup de puissance électrique et qu'il fonctionne en régime continu. Il n'y a donc pas besoin de synchroniser le modulateur acousto-optique avec les impulsions électriques. Comme la génération de différence de fréquences se fait en permanence, les temps d'acquisition de la caméra CCD sont relativement courts (1.5 s) tout en gardant un bon niveau de signal.

La caractéristique lumière-tension-courant (LVI en anglais) de l'échantillon à 10 K est présentée sur la figure 3.7. La puissance THz est mesurée avec un détecteur pyroélectrique (voir figure 3.3). Le ruban

est long de 1.5 mm et fait 200 µm de large. Cette caractéristique a été réalisée sans excitation proche-IR. Comme nous le verrons pour un autre échantillon dans le paragraphe 3.1.3, l'excitation du faisceau incident modifie peu ce comportement.

3.1.1.4 Résultats

La figure 3.8 présente deux spectres en transmission du LCQ obtenus dans le proche-IR à partir de la caméra CCD. En noir le LCQ est éteint et n'émet pas de THz. La raie à E_{NIR} (1.528 eV $\sim$ 811.5 nm) correspond à l'énergie de pompe et provient du faisceau pompe qui n'est pas couplé dans le ruban. En effet les pertes infligées à la pompe proche-IR quand celle-ci est au-dessus du gap sont de l'ordre de 1000 cm^{-1}. Après 1.5 mm de propagation, les 20 µW de puissance couplés dans le ruban seraient trop atténués pour pouvoir être détectés par la caméra.

Lorsque le LCQ est alimenté au-dessus du seuil laser, alors une bande latérale apparaît (courbe en rouge), beaucoup plus intense que le parasite qui représente la pompe.

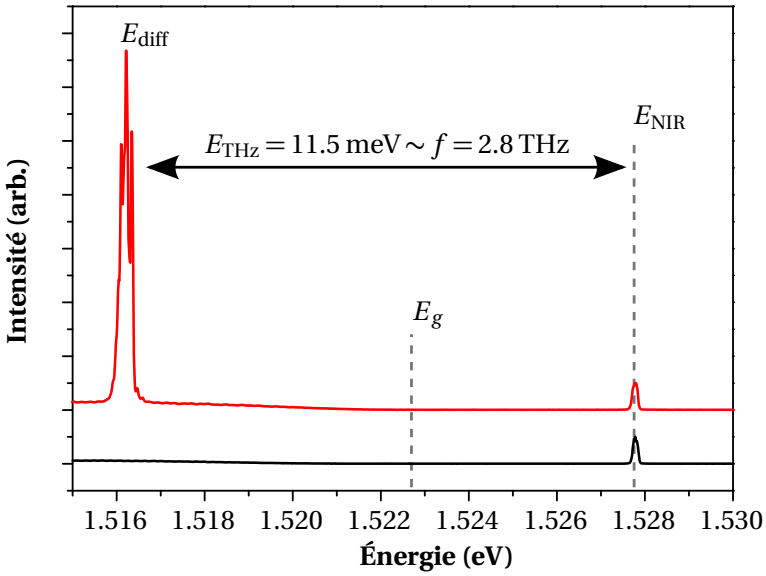


FIGURE 3.8 – Spectre du faisceau transmis dans le LCQ éteint (en noir) et allumé en continu (en rouge). Réseau de 1200 l/mm avec un temps de pose de 1.52 s.

On remarque ainsi que la longueur d'onde de la porteuse optique a été décalée d'une énergie correspondant au photon THz ($E_{\mathrm{diff}} = E_{\mathrm{NIR}} - E_{\mathrm{THz}}$). La différence de fréquences générée est émise sous le gap du matériau (E_g) et peut se propager presque sans pertes. Ce décalage est réalisé uniquement de manière optique (en utilisant les propriétés d'optique non-linéaire) ce qui a des intérêts applicatifs comme on l'a vu dans le chapitre précédent.

Il est intéressant d'évaluer l'efficacité du mélange de fréquences : $\eta = P_{\mathrm{diff}}/P_{\mathrm{in}}$. Cela permet d'une part de comparer notre système avec la littérature et d'autre part d'avoir un ordre de grandeur de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 de ce système interbande/intrabande. Pour prendre en compte l'absorption et l'efficacité de couplage, on se place dans le domaine où la pompe est à une énergie inférieure à la bande interdite de la région active. C'est cette valeur transmise que nous utiliserons pour P_{in}. En

procédant ainsi, nous obtenons une efficacité de 0.13 % ce qui est du même ordre de grandeur que les efficacités obtenues avec un laser à électron libre [Carter 2004]. La valeur de P_{in} peut être surestimée car elle prend en compte la partie du faisceau couplée dans le substrat qui ne participe pas au mélange d'ondes et dont la valeur nous est inconnue. De cette manière, l'efficacité calculée constitue une limite basse.

En utilisant cette valeur de l'efficacité, on peut en déduire la susceptibilité, $\chi^{(2)}$, de notre système en prenant la formule pour le mélange à trois ondes avec absorption (eq. 2.11). Lors des mesures expérimentales, nous avons accès à la puissance optique qui est l'intégrale de la densité optique sur la surface du faisceau. On utilise donc le rapport des puissances pour caractériser l'efficacité du mélange de fréquences. Comme les faisceaux dans le proche-IR sont tous les deux guidés de la même manière dans notre expérience, alors le rapport des puissances est le même que celui des densités optiques. Il convient seulement d'introduire la puissance P_{THz} du champ THz intracavité et de diviser le terme de droite dans l'expression 2.8 par la surface, S, du faisceau THz :

$$\eta_{\text{diff}} \approx \frac{32\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 P_{\text{THz}}}{\epsilon_0 n_{\text{NIR}} n_{\text{diff}} n_{\text{THz}} c \lambda_{\text{diff}}^2 S} \frac{1}{\alpha_p^2} \,. \tag{3.1}$$

En prenant des pertes de $1000\,\text{cm}^{-1}$ [Rosencher 2002], on obtient une susceptibilité de $\chi^{(2)} \sim 10^4$ pm/V. Cette valeur est dans la moyenne haute de la littérature (10^2 à 10^4 pm/V) [Khurgin 1988, Shimizu 1992]. Cela vient du fait que l'énergie du photon THz est faible devant l'excitation proche-infrarouge et que le faisceau généré est proche en énergie d'une résonance avec des niveaux réels de la matière. Les valeurs de susceptibilité pour les systèmes résonants interbandes/intersousbandes sont toutefois plus faibles que pour les systèmes uniquement intersousbandes [Sirtori 1994, Belkin 2007], car au lieu d'avoir trois dipôles géants venant des transitions intersousbandes, il n'y a qu'un seul dipôle intersousbande dans notre cas.

Grâce à l'excitation résonante des puits quantiques du LCQ, la susceptibilité $\chi^{(2)}$ est exaltée par rapport au GaAs massif ($\chi^{(2)}{}_{\text{GaAs}} = 100$ pm/V) ce qui permet d'avoir l'efficacité obtenue.

3.1.2 Application à la caractérisation des LCQ

La génération de la différence de fréquences peut être vue comme une *THz up-conversion*. C'est-à-dire que l'émission THz est convertie dans le proche-IR qui est un domaine de fréquences où les technologies de détection sont beaucoup plus matures que dans le THz.

Si on refait l'expérience décrite dans le paragraphe précédent avec un réseau plus dispersif (1800 l/mm), centré sur la génération de la différence, on peut obtenir une meilleure résolution spectrale (voir figure 3.9). On observe les modes Fabry-Pérot longitudinaux du LCQ. L'écart entre les modes est de 29 GHz ce qui correspond à l'intervalle spectral libre de la cavité du LCQ :

$$\Delta f = \frac{c}{2 n_{\text{eff}} L} = 28.6\,\text{GHz} \,,$$

avec $n_{\text{eff}} = 3.5$, l'indice effectif du faisceau généré dans le guide d'onde constitué par le LCQ. L'écart avec la mesure provient de l'incertitude sur l'indice du faisceau issu de la différence de fréquences quand

il est guidé dans la région active.

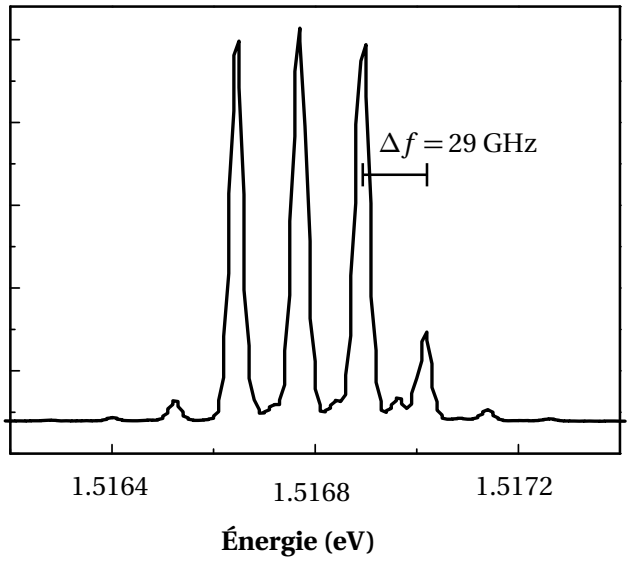


FIGURE 3.9 – Spectre du faisceau généré par la différence de fréquences. Réseau de 1800 l/mm avec un temps de pose de 1.52 s.

L'acquisition de spectres de hautes résolutions pour les LCQ peut être très utile car on obtient des spectres équivalents à ceux obtenus avec des interféromètres par transformée de Fourier infrarouge (ou FTIR en anglais). L'avantage de notre technique est le temps d'acquisition qui est très court (de l'ordre de la seconde) par rapport aux FTIR (de l'ordre de la minute pour avoir une bonne résolution de ~ 0.2 cm^{-1}), une résolution supérieure (0.15 cm^{-1}) et l'absence de déplacement mécanique (chariotage).

Nous avons utilisé cette technique d'acquisition au laboratoire pour étudier le spectre d'un LCQ modulé avec un signal hyperfréquence (GHz) [3]. La modulation GHz du LCQ permet de commuter son gain à une fréquence (~ 13 GHz) correspondant à l'aller-retour (*round trip*, RT) du THz dans la cavité [Freeman 2012]. La modulation du mode principal à cette fréquence donne naissance à des modes latéraux séparés par la fréquence de modulation. La figure 3.10 présente des résultats obtenus avec cette technique pour obtenir les spectres. On peut voir sur ces graphiques que le nombre de modes augmente avec la modulation GHz. Cette expérience montre que notre dispositif expérimental permet bien de caractériser les LCQ dans le domaine fréquentiel grâce à des techniques de détection du proche-IR.

3.1.3 Effet non-linéaire d'ordre 2 - Dépendance avec la puissance des faisceaux incidents

Nous nous proposons dans cette section d'étudier l'intensité du faisceau généré en fonction des puissances incidentes. Cela permet de justifier le type de non-linéarités intervenant dans le mélange de fréquences. En effet, une des caractéristiques d'un processus non-linéaire du deuxième ordre est la relation de puissance entre le faisceau généré et les faisceaux incidents. D'après l'équation 2.11, il y a une dépendance linéaire avec la puissance de la pompe et du LCQ, soit : $P_{\text{diff}} \propto |\chi^{(2)}|^2 P_{\text{NIR}} P_{\text{LCQ}}$. Nous présentons des expériences réalisées sur un autre échantillon (L773), présenté plus en détails dans la section

3. La raison de cette modulation du gain dépasse le cadre de ce chapitre. Le principe de base est de moduler le LCQ à la fréquence d'aller-retour dans la cavité pour générer des impulsions courtes en sortie du laser. L'article [Freeman 2012] où a été publié cette figure donne plus de détails.

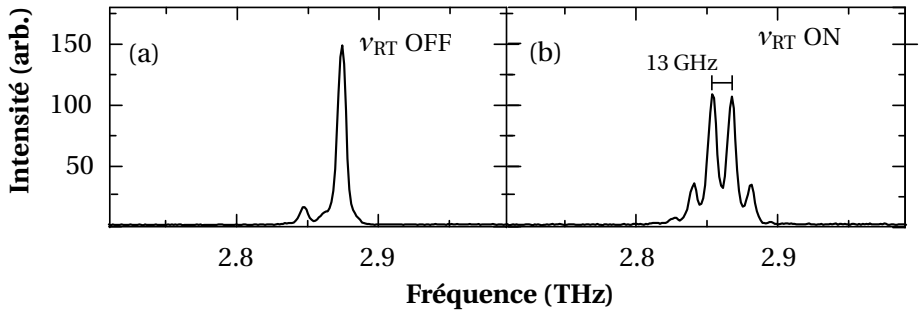


FIGURE 3.10 – Spectre du faisceau généré par la différence de fréquences du même LCQ mais alimenté en pulsé (450 A/cm^2) sans (a) et avec (b) la modulation GHz. Excitation NIR à 811.83 nm. L'énergie correspondante à cette excitation est soustraite au spectre initial pour avoir directement le spectre en fréquence dans le domaine THz. Réseau de 1800 l/mm avec un temps de pose de 1.52 s.

3.3 sur la génération des ordres supérieurs. Cela permettra de comparer directement les comportements en fonction de la puissance des faisceaux incidents pour les non-linéarités des différents ordres. Ces résultats sont généraux pour la génération d'une raie latérale du premier ordre et les résultats présentés ont aussi été obtenus avec l'échantillon V193.

Dans cette section nous présenterons d'abord les caractéristiques électriques de l'échantillon L773 en montrant que la puissance de pompe NIR couplée dans le ruban n'influe pas ou peu sur les propriétés du LCQ dans le THz, puis nous étudierons la dépendance de l'efficacité du mélange d'ondes d'abord avec la puissance NIR puis avec la puissance THz.

Caractéristique LVI en fonction de la puissance de pompe

Il est important qu'on puisse augmenter la puissance de pompe indépendamment de la puissance THz or il n'est pas trivial que la pompe ne perturbe pas le fonctionnement du LCQ car des porteurs sont créés lors de l'excitation. Nous avons vu dans la section 3.1.1.1 que nous pouvions mesurer simultanément la puissance THz tout en observant le mélange d'ondes. L'observation de la raie latérale garantit que la pompe NIR est bien couplée dans le LCQ. La caractéristique LVI est d'abord mesurée sans illumination (figure 3.11), puis le faisceau pompe est couplé dans le LCQ. Les caractéristiques LVI sont obtenues pour différentes puissances de pompe.

La caractéristique dans l'obscurité montre une comportement linéaire de la puissance THz en fonction de la densité de courant jusqu'au maximum d'émission (250 A/cm^2). Dans la suite du manuscrit, nous nous servirons de cette dépendance linéaire pour étudier les variations de la génération de différence de fréquences en fonction de la puissance THz. La présence du faisceau pompe dans la cavité du LCQ change à peine son comportement et nous pourrons négliger cette perturbation. Les résultats sont présentés sur la figure 3.12.

Néanmoins, en regardant attentivement, on peut noter sur la caractéristique Tension-Courant un léger décalage avec la puissance qui est due à la génération d'un photocourant dans la structure. Ce photocourant est issu de l'excitation résonante qui génère des porteurs dans la bande de conduction.

Sur la caractéristique Lumière-Courant (fig. 3.12), on pourra observer une faible augmentation du

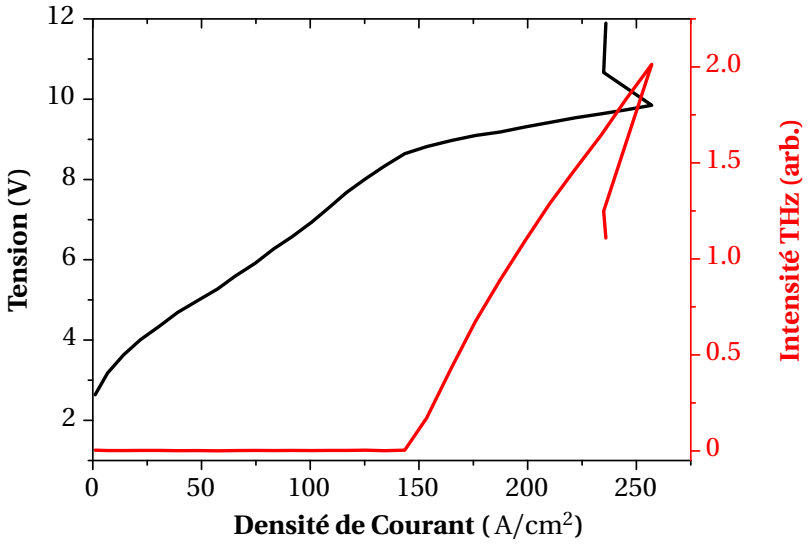


FIGURE 3.11 – Caractéristique lumière-tension-courant de l'échantillon L773. Un ruban de 1.5 mm de long et large de 100 µm est alimenté par des impulsions de 25 µs avec un taux de répétition de 50 kHz. Le seuil laser est atteint pour une densité de courant de 143 A/cm^2.

courant de seuil avec la puissance de pompe. Les porteurs générés proches de la facette d'entrée augmentent les pertes de la cavité donc son courant de seuil. L'excitation maximale (51 mW) correspond à une augmentation des pertes de 1.6 % ce qui justifie qu'on néglige cette perturbation car lors des expériences, la puissance du faisceau proche-IR incident est inférieure à 1 mW.

Étude du mélange d'ondes en fonction de la puissance proche-IR

Le paragraphe précédent montre qu'on peut augmenter la puissance de pompe sans que la puissance THz soit changée. On peut vérifier que la puissance de la différence de fréquences générée varie linéairement avec la puissance NIR. On représente sur la figure 3.13 l'intégrale du pic correspondant à la différence de fréquences en fonction de la puissance de pompe. On observe en réalité deux régimes différents sur cette courbe : à basse puissance, il y a comportement linéaire (voir encadré) puis à partir d'une dizaine de mW, une saturation de la génération de la différence de fréquences apparaît. Lorsque l'échantillon est pompé trop fortement par le faisceau NIR, la densité de photons THz n'est plus suffisante (relativement à la puissance NIR) pour pouvoir stimuler la génération de la bande latérale. D'autre part les charges photo-excitées qui se concentrent dans les premiers microns du ruban induisent des pertes au champ THz ce qui est défavorable pour le mélange d'ondes. Ces pertes sont concentrées sur une section courte du LCQ ce qui explique que nous n'observons pas une chute de la puissance sur les caractéristiques LIV. L'existence de ces porteurs photo-générés se traduit par un fond de photoluminescence à basse énergie sur la caméra CCD, provenant de la recombinaison interbande de ces porteurs.

Étude du mélange d'ondes en fonction de la puissance THz

De manière similaire à l'expérience du paragraphe précédent, on fait varier la puissance THz en changeant la densité de courant (voir figure 3.14) avec une faible puissance de pompe ($\sim$ 500 µW). On obtient une dépendance linéaire également, sans phénomène de saturation. Cette absence de saturation montre qu'il n'y a pas de limitation pour la puissance THz dans la gamme des puissances auxquelles

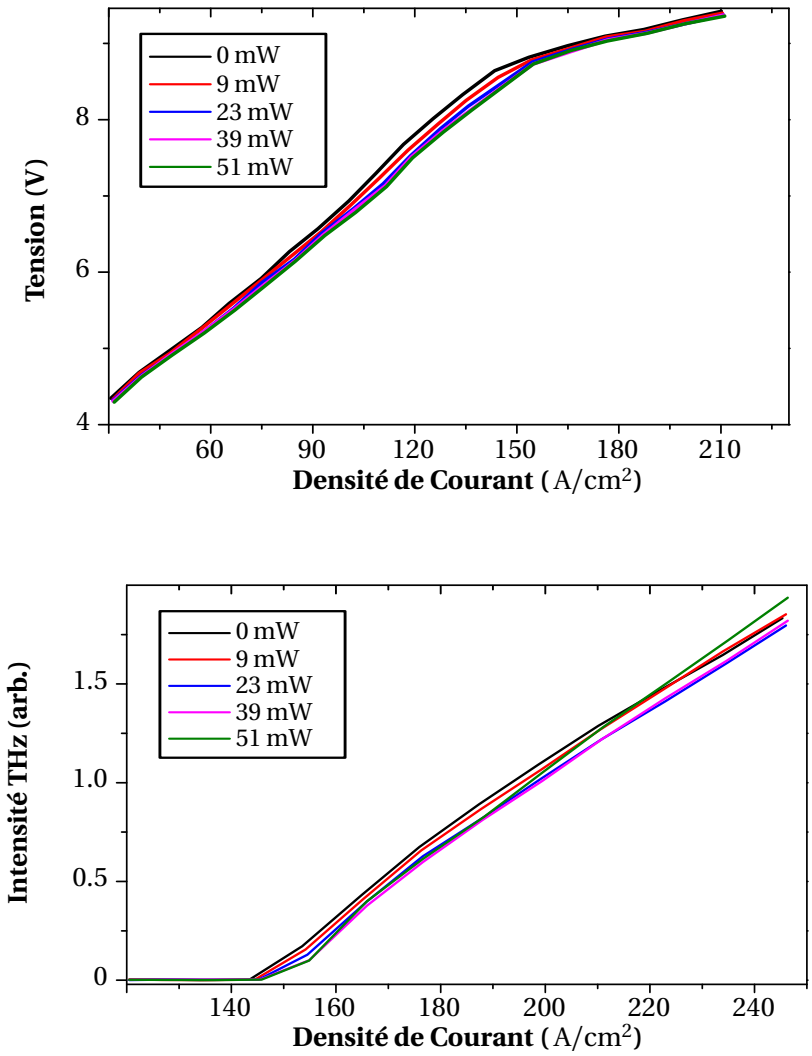


FIGURE 3.12 – Caractéristiques tension-courant (a) et lumière-courant (b) de l'échantillon L773 sous différentes puissances de pompe en entrée. Le reste de la caractéristique est identique.

nous avons accès pour l'instant. De ce fait plus le LCQ délivrera de la puissance, meilleure sera l'efficacité du mélange de fréquences.

Ces deux dépendances linéaires confirment qu'on a affaire à un mécanisme d'ordre deux comme la formule 2.7 de l'efficacité le prévoit. Nous verrons dans la section 3.3 que ce n'est plus le cas pour la génération des ordres supérieurs.

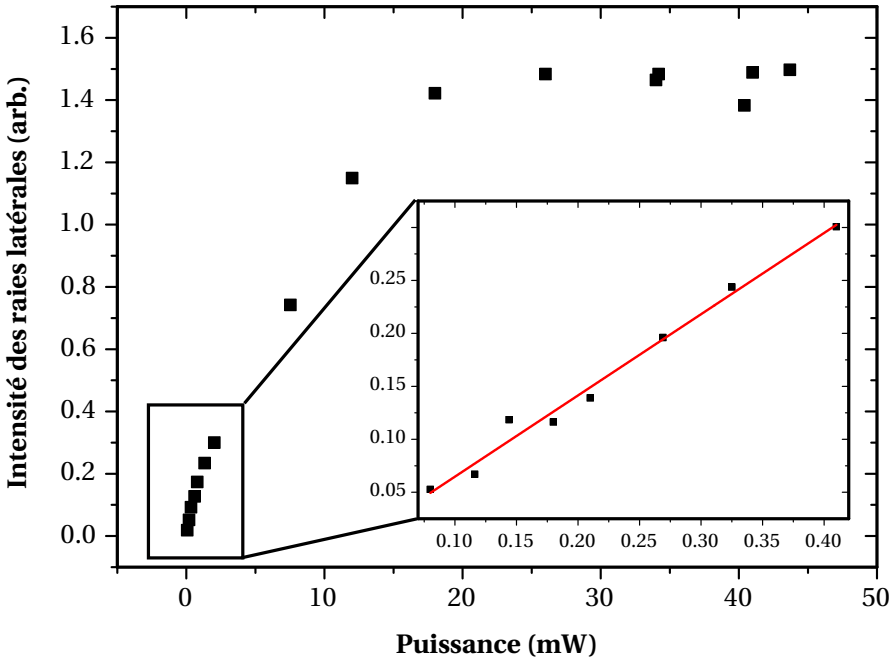


FIGURE 3.13 – Spectre intégré de la raie latérale en fonction de la puissance de pompe NIR. L'encadré est un zoom du comportement à basse puissance. Dans cette zone, le comportement est linéaire comme le montre l'ajustement en rouge.

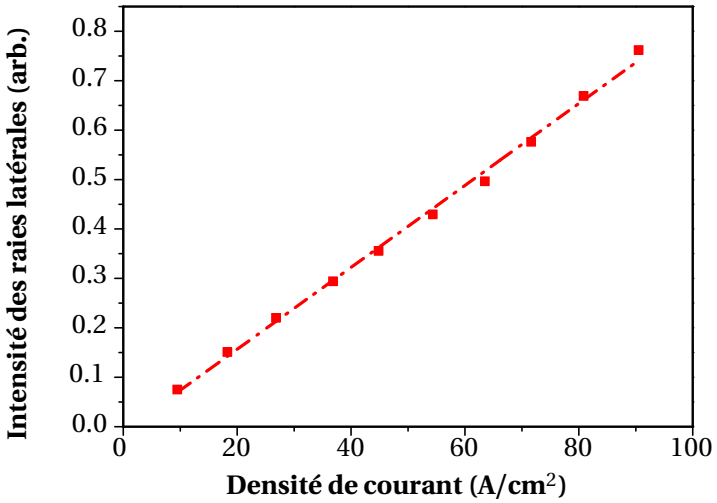


FIGURE 3.14 – Spectre intégré de la raie latérale en fonction de la densité de courant du LCQ (le courant de seuil a été soustrait pour plus de clarté), en ligne pointillée l'ajustement linéaire.

3.1.4 Étude du mécanisme résonant du mélange d'ondes

Nous venons de démontrer la possibilité de la génération de différence de fréquences à l'intérieur de la cavité d'un LCQ. Nous avons également montré qu'elle portait la signature d'un mécanisme en $\chi^{(2)}$. Étudions maintenant les mécanismes résonants entrant en jeu dans cette conversion de fréquences. On se propose dans cette section de démontrer le caractère résonant annoncé en début de chapitre. Pour cela nous faisons varier l'énergie d'excitation de la pompe proche-IR et mesurons l'intensité de la bande latérale générée. Nous comparerons ensuite cette dépendance à des mesures de micro-photoluminescence et à des simulations de la structure de bande pour clarifier l'origine de cette interaction.

3.1.4.1 Dépendance avec l'énergie d'excitation - Interaction résonante

Nous faisons donc varier l'énergie de pompe pour cet échantillon de 1.524 eV (814.7 nm) à 1.533 eV (808 nm). La figure 3.15 rassemble l'ensemble des spectres pour ces différentes excitations. La gamme sur laquelle nous observons le mélange d'ondes est bornée vers le rouge par le domaine de transparence de la pompe et vers le bleu par l'absorption de la bande latérale générée.

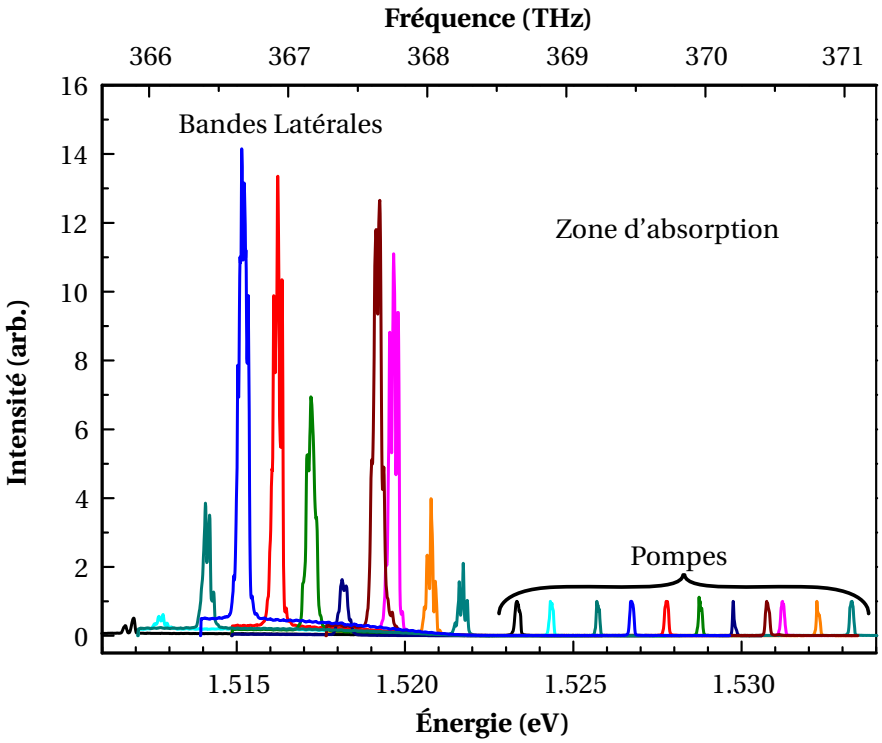


FIGURE 3.15 – Spectres de génération de différence de fréquences pour plusieurs énergies de pompe. La zone en rose correspond à la zone d'absorption de l'échantillon. L'intensité des spectres est normalisée au pic de la pompe.

Lorsque la pompe est trop basse en énergie, elle n'est plus résonante avec la bande interdite et le mélange de fréquences est moins efficace. En effet, si la pompe n'est plus résonante alors la susceptibilité non-linéaire est beaucoup plus faible. La différence de fréquences peut être observée au-delà (vers le rouge) des spectres présentés sur la figure 3.15, mais le signal est alors faible et très bruité. Il devient alors difficilement comparable aux mesures prises lorsque la pompe est résonante. (Du côté expérimental, le

LCQ ne filtre plus par absorption la pompe qui éblouit alors beaucoup le détecteur.)

La borne supérieure en énergie est fixée par l'absorption du faisceau généré (voir figure 3.16.b). Si la raie latérale a une énergie supérieure au gap effectif du matériau, alors elle subira de grandes pertes et ne pourra pas se propager dans le domaine de transparence. Elle ne sera pas détectée à la sortie du LCQ.

La largeur d'énergie d'excitation sur laquelle nous voyons la conversion de fréquences est donc de l'ordre de la fréquence d'émission du LCQ (voir le schéma de la figure 3.16). La largeur à mi-hauteur dépend elle de l'élargissement de la transition interbande (Γ_{gap}). Comme on l'a vu dans le chapitre précédent, la susceptibilité dépend du désaccord entre la pompe et la transition interbande : $\chi^{(2)} \propto 1/(E_{NIR} - \Delta E_{gap} - i\Gamma_{gap})$. Quand on prend le module de la susceptibilité, l'élargissement des niveaux joue un rôle important lorsqu'on est à la résonance. Dès que le désaccord est important par rapport à l'élargissement des niveaux, la susceptibilité diminue fortement. C'est pourquoi la largeur à mi-hauteur des résonances dépend du paramètre Γ_{gap}.

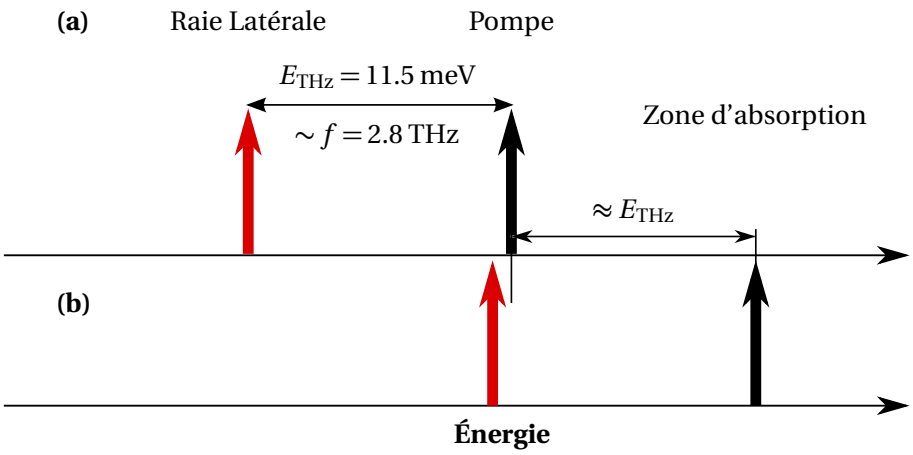


FIGURE 3.16 – Schéma des configurations extrémales où le mélange d'ondes est résonant. (a) La pompe commence à être absorbée. Dans la configuration (b) la raie latérale est émise juste sous le gap effectif de la région active

Les mesures présentées sur la figure 3.15 ont été faites avec une polarisation TM de sorte que le THz et le NIR ont même polarisation. On peut faire la même série de mesures en prenant une polarisation TE pour l'excitation NIR (le champ THz dans un LCQ étant toujours polarisé TM). L'efficacité du mélange de fréquences est reportée en fonction de l'énergie de pompe pour les deux polarisations sur la figure 3.17. Deux résonances sont observées dans les deux cas mais pas aux mêmes énergies. Il y a un écart de 2 meV qui est dû aux règles de sélections des transitions interbandes vues dans le chapitre 1. Pour une polarisation TM, seuls les trous légers sont excités. En polarisation TE, les trous lourds sont excités majoritairement par rapport aux trous légers. Comme le confinement des trous lourds est plus important, alors la résonance optique se situe à une énergie plus basse dans la polarisation TE.

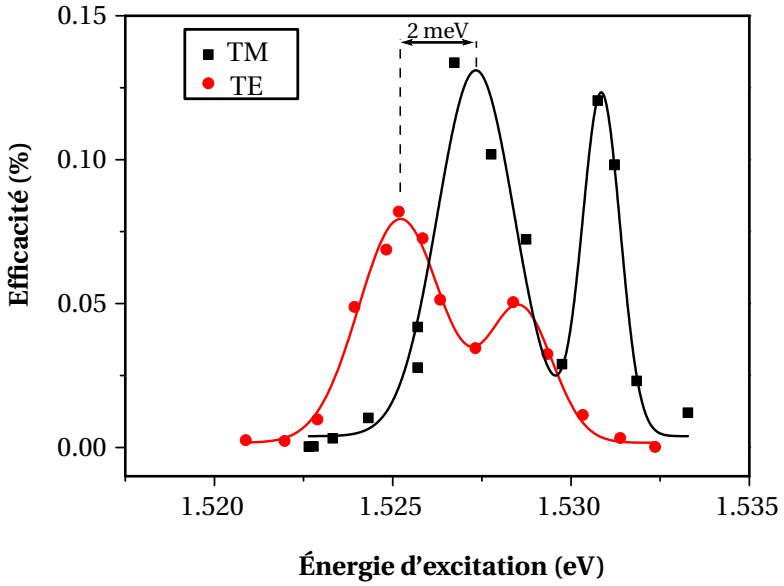


FIGURE 3.17 – Efficacité de conversion en fonction de l'énergie de l'excitation proche-IR pour les deux polarisations de la pompe (TM en noir et TE en rouge). Les pertes de la pompe sont prises en compte dans le calcul de l'efficacité. Les courbes en traits pleins sont des ajustements gaussiens.

3.1.4.2 Comparaison avec les simulations et les expériences de photoluminescence

Pour déterminer les états mis en jeu lors de l'interaction optique résonante, nous réalisons des expériences de micro-photoluminescence (micro-PL). Le montage est décrit sur le schéma de la figure 3.5.

Nous observons sur la caméra la luminescence provenant de la recombinaison électron-trou des porteurs photo-générés par la pompe. Les trous relaxent dans l'état le plus confiné du puits, qui est un état de trou lourd. Ainsi quelle que soit la polarisation de l'excitation, on observera une recombinaison interbande très majoritairement polarisée TE. Chaque pic de la courbe de photoluminescence est proportionnel aux populations électroniques des sousbandes et au carré du recouvrement entre les fonctions d'ondes électroniques et celles des états de trou [Freeman 2011, Vitiello 2005].

Sur la figure 3.18, nous avons regroupé les mesures de photoluminescence avec les efficacités en polarisation TE. L'efficacité est tracée en fonction de l'énergie de pompe (carrés rouges) et de l'énergie de la bande latérale (points verts). Il s'agit donc du même ensemble de points, translatés de l'énergie du photon THz. On remarque plusieurs choses : tout d'abord il n'y a pas de pics (donc pas d'états) aux énergies correspondant à l'émission de la bande latérale (aux alentours de 1.515 eV). Ceci confirme que le mélange à trois ondes est simplement résonant et que l'émission s'effectue à partir d'un état virtuel sous le gap. On peut noter une petite épaule large centrée sur 1.519 eV. Cela correspond à la luminescence du substrat. Ensuite, nous remarquons qu'aux niveaux des deux résonances de l'efficacité (à 1.525 eV et 1.527 eV) il y a des pics dans la courbe de photoluminescence.

Pour identifier quels états contribuent aux pics de la PL et par conséquent quelles transitions sont responsables du mélange de fréquences résonant, nous avons simulé la structure de bande du LCQ. Nous calculons ensuite les recouvrements des fonctions d'onde des bandes de valence et de conduction. L'énergie des simulations correspondant aux recouvrements est décalée de 3.5 meV car pour les mesures

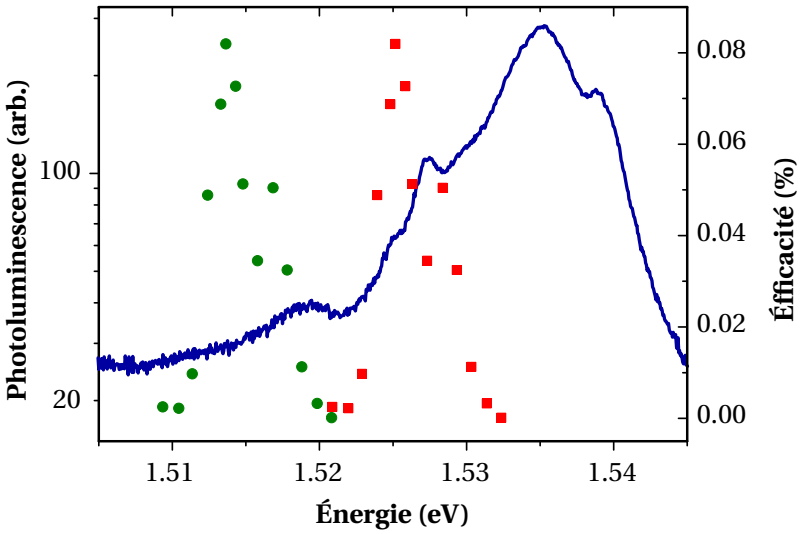


FIGURE 3.18 – Spectre de photoluminescence du LCQ alimenté au-dessus de son seuil (courbe bleu) et efficacité de conversion pour une excitation proche-IR polarisée TE en fonction de l'énergie de la raie générée (rond vert) et de l'énergie de pompe (carré rouge).

de PL l'énergie est décalée vers le rouge à cause de la chaleur dissipée par effet Joule [Vitiello 2005]. Les résultats des simulations sont présentés sur la figure 3.19 et comparés avec les mesures de photoluminescences. Les états impliqués dans les résonances du mélange de fréquences sont indiqués sur la figure. Leurs recouvrements sont assez élevés, les pics de PL correspondants ne sont pas les plus importants car ils ont pour origine la relaxation d'électrons à partir de l'état bas du LCQ, qui par définition n'a pas une grande population. Ils correspondent à la transition entre les états bas de la mini-bande et les premiers états de trous lourds de la zone active (là où a lieu la transition laser du LCQ dans la bande de conduction).

Plus précisément la résonance à 1.525 eV provient de la transition entre l'état de trou noté $|H2\rangle$ et les deux états du bas de la mini-bande $|E1\rangle$ et $|E2\rangle$. Le dessin *bound-to-continuum* de ce LCQ rend la structure de bande complexe, avec notamment de nombreux états dans les mini-bandes. De ce fait la courbe de PL est difficile à interpréter et par exemple, il est difficile d'attribuer une transition interbande particulière pour le pic correspondant à la seconde résonance de la courbe d'efficacité. Nous verrons un plus loin (section 3.3), que l'on peut réaliser ces expériences sur des échantillons basés sur des dessins dits *LO-phonon* où il y a moins de puits par période donc moins d'états.

Lorsque le faisceau pompe proche-IR est polarisée TM, il excite les transitions $|\mathrm{LH}\rangle \rightarrow |\mathrm{E}\rangle$. Comme expliqué plus haut, les expériences de PL ne peuvent pas être utilisées pour identifier ces transitions. Nous pouvons cependant simuler les fonctions d'ondes des trous légers (la structure de bande pour les trous légers est présentée sur la figure 3.21). La figure 3.20 est l'analogue de la figure 3.19 mais en prenant en compte les trous légers et l'efficacité en polarisation TM. L'énergie des simulations est décalée de la même façon que pour les trous lourds. On peut voir que les deux résonances correspondent à des recouvrements significatifs. La première résonance est due à la transition entre le premier état de trou léger (L_1) qui s'étend sur les trois puits de la région active avec les deux états électroniques E_1 et E_2. La deuxième résonance se partage entre la transition entre ce même état de trou léger avec l'état E_3 et

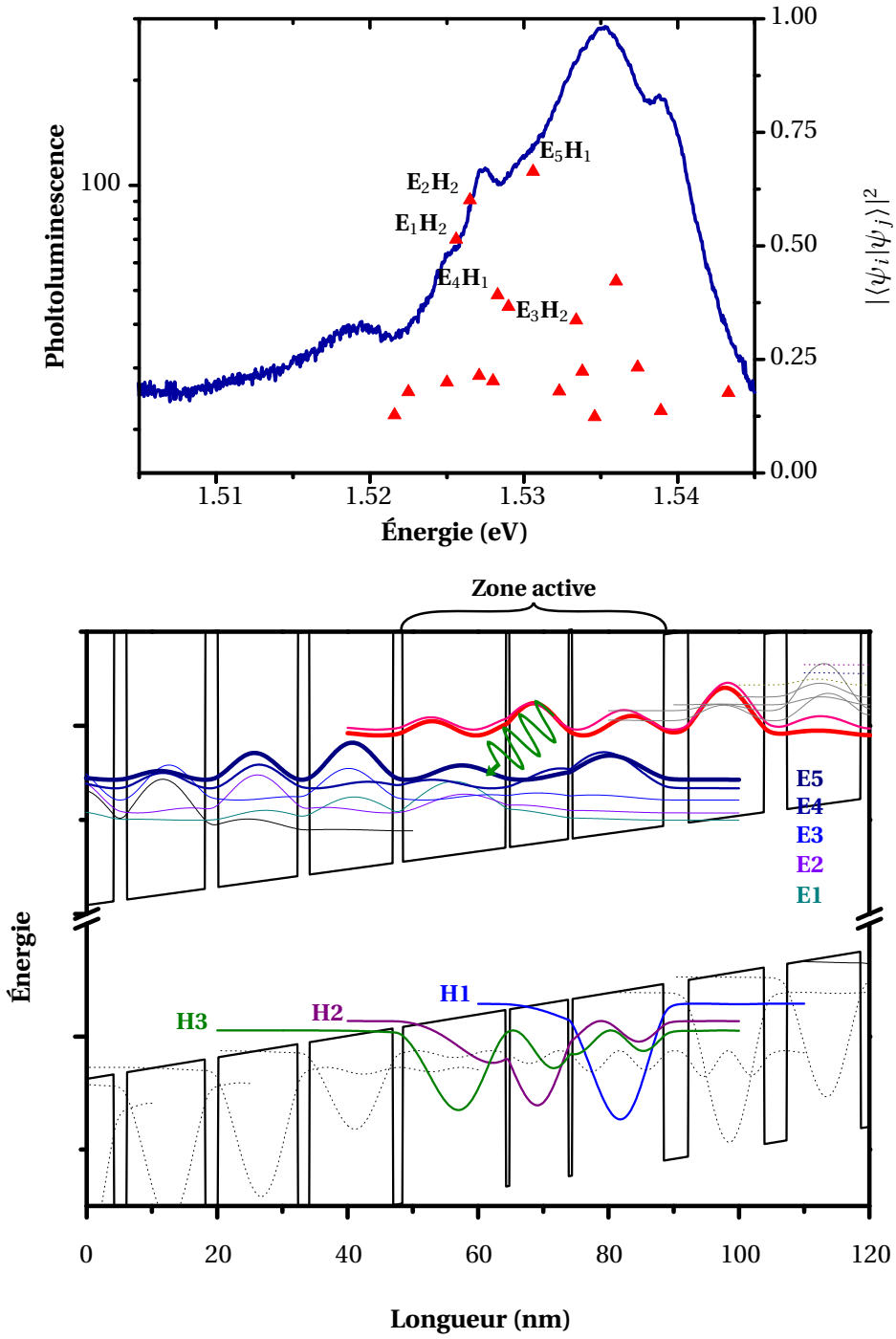


FIGURE 3.19 – Spectre de la PL (courbe bleue en trait plein) lorsque le LCQ est polarisé au-dessus du seuil laser. Module carré des recouvrements (triangle rouge) entre les trois états de trous lourds H1, H2, H3 et les cinq états électroniques de la mini-bande de la bande de conduction représentés sur la structure de bande simulée pour un champ de 2.1 kV/cm. De droite à gauche et commençant par la barrière d'injection, le dessin des barrières d'$Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ (en gras) et des puits est le suivant (en nm) : **3.8**/14.0/**0.6**/9.0/**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 puits munis d'un astérisque sont dopés n à hauteur de 1.6×10^{16} cm^{-1} (dopage non-pris en compte pour la simulation).

le deuxième état de trou léger (L_2) avec les deux états électroniques cités précédemment. Plus haut en énergie, il y a des recouvrements plus élevés mais cela correspond à une zone où la différence générée serait absorbée au cours de sa propagation.

Pour résumer, le mélange de fréquences est efficace lorsque le faisceau de pompe proche-IR est résonant avec les premières transitions interbandes disponibles dans la zone active (là où a lieu la transition THz). Ceci confirme le mécanisme proposé sur le diagramme de la figure 3.2.

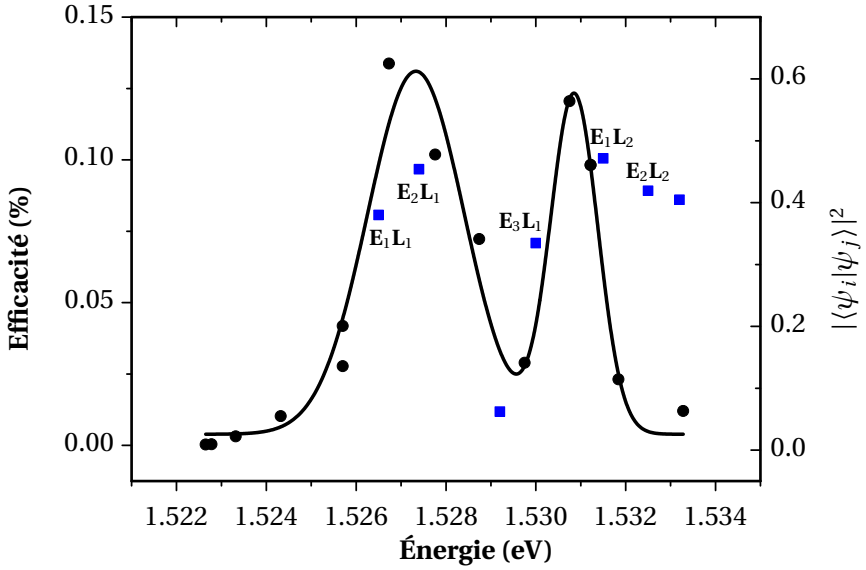


FIGURE 3.20 – Efficacité de conversion pour une excitation proche-IR polarisée TM en fonction de l'énergie de pompe (rond noir) avec son ajustement gaussien et modules carrés des recouvrements entre les trous légers et les états électroniques (carré bleu).

Nous avons démontré dans cette partie qu'on peut effectuer de la conversion de fréquences dans un laser à cascade à quantique THz grâce à un mécanisme simplement résonant d'une pompe proche-IR avec une transition interbande. Nous obtenons des efficacités de 0.13 %, *c'est-à-dire du même ordre de grandeur que les expériences réalisées avec un FEL [Carter 2004]. La caractérisation du mélange d'ondes en fonction de l'énergie d'excitation a montré un processus simplement résonant. Les démonstrations de conversions de fréquences dans des systèmes de multi-puits quantiques (dopés ou non) montrent des efficacités maximales lorsque la génération de différence de fréquences se fait à partir d'un niveau réel [Carter 2005, Zaks 2013]. Dans ce cas là, le processus est doublement résonant : résonances interbandes pour les deux faisceaux NIR. Ces systèmes ont des épaisseurs très faibles ce qui limite l'absorption du faisceau généré. Nous avons vu que l'absorption jouait un rôle primordial dans notre géométrie colinéaire quand nous augmentions l'énergie de pompe, ce qui empêche l'interaction d'être doublement résonante. Dans la section suivante, nous allons voir une nouvelle géométrie en réflexion pour observer le mélange de fréquences sur une gamme plus large.*

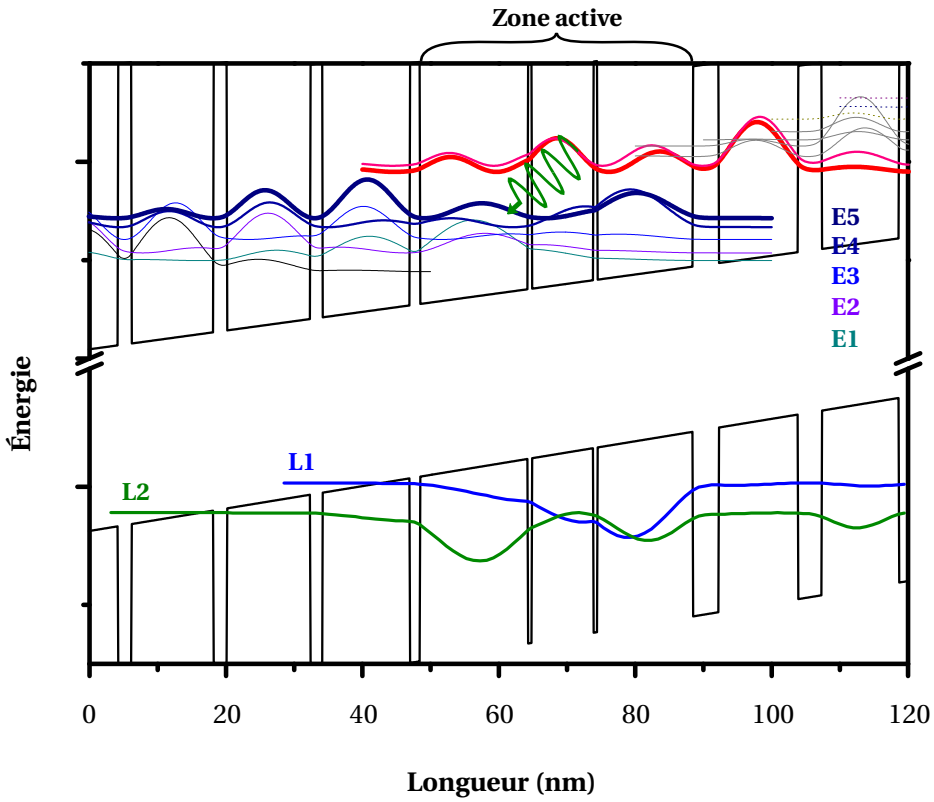


FIGURE 3.21 – Structure de bande de l'échantillon V193 sous un champ appliqué de 2 kV/cm avec les états de trous légers intervenant dans les transitions interbandes.

3.2 Mélange de fréquences doublement résonant - Géométrie en réflexion

Dans cette section nous présentons une nouvelle géométrie pour la génération doublement résonante de la différence et la somme de fréquences. Contrairement aux parties précédentes, nous traiterons les deux cas et pourrons voir par cette occasion que les mécanismes sont analogues. Cette étude est une première démonstration et comme nous pourrons le voir en conclusion de cette section, de nombreuses optimisations de l'échantillon sont possibles pour obtenir de meilleures efficacités et observer une interaction doublement résonante.

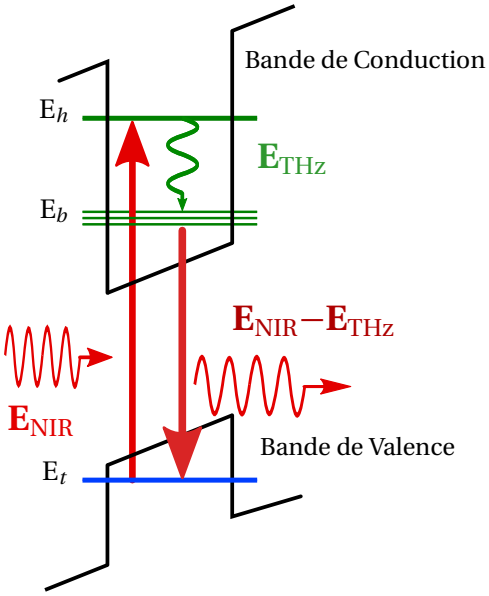


FIGURE 3.22 – Diagramme schématique des états mis en jeu dans la génération de mélange de fréquences doublement résonante (simplifiée à un seul puits). Le faisceau d'excitation proche-IR excite un état de trou (E_t) de la bande de valence et est résonant avec l'état haut (E_h) du laser THz. L'émission de la différence de fréquences se fait à partir de l'état bas (E_b) du LCQ.

Le but final est de pouvoir générer le mélange de fréquences selon un processus doublement résonant tel que présenté sur la figure 3.22. Dans cette configuration, le faisceau pompe proche-IR est résonant avec la transition entre un état de trou de la bande de valence et l'état haut de la transition laser dans la bande de conduction. L'émission de la différence de fréquences s'effectue à partir de l'état bas de la transition THz par conservation de l'énergie. Le mélange de fréquences sera d'autant plus efficace si le photon issu de la différence de fréquences est émis à partir d'un niveau avec un temps de vie long. Le temps de vie du niveau bas du laser est minimisé pour réaliser l'inversion de population dans la structure à cascade. Cependant le temps de vie d'un niveau réel (~ 0.5 ps pour le niveau bas du LCQ [Köhler 2002]) reste toujours grand devant le temps de vie d'un état virtuel (~ 50 fs, [Boitier 2010]).

Pour un processus doublement résonant, la susceptibilité non-linéaire s'écrit sous la forme suivante (en ne conservant que le terme résonant) [Belkin 2007] :

$$\chi^{(2)}(-\omega_{\text{diff}};\omega_{\text{NIR}},-\omega_{\text{THz}}) \approx \frac{e^3}{2\epsilon_0}\frac{z_{tb}z_{bh}z_{ht}}{\hbar\omega_{\text{diff}}-E_{bt}+i\hbar\Gamma_{\text{NIR}}}\left(\frac{N_h-N_t}{\hbar\omega_{\text{NIR}}-E_{ht}+i\hbar\Gamma_{\text{NIR}}}+\frac{N_h-N_b}{\hbar\omega_{\text{THz}}-E_{hb}+i\hbar\Gamma_{\text{THz}}}\right), \tag{3.2}$$

où N_i est la densité électronique du niveau i considéré, e la charge élémentaire, z_{ij} l'élément de matrice

dipolaire $\langle i|z|j\rangle$ et Γ_i les largeurs de raie. Nous voyons d'après cette expression que la susceptibilité non-linéaire est exaltée dans le cas où la pompe proche-IR et la différence de fréquences sont à résonance. Il en résulte une meilleure efficacité pour la génération du mélange d'ondes.

Nous avons vu que l'absorption jouait un rôle important pour le mélange de fréquences avec la géométrie colinéaire présentée précédemment. Un processus doublement résonant génère un faisceau qui est très absorbé par le matériau et qui ne peut pas être détecté à la sortie du LCQ. Pour une absorption de 1000 cm^{-1}, la longueur caractéristique est de l'ordre de la dizaine de microns. Il est nécessaire d'avoir une longueur d'interaction non-linéaire du même ordre de grandeur. Il n'est pas possible d'avoir un laser aussi court car le gain serait trop faible par rapport aux pertes des facettes et du guide. Nous pourrions utiliser un milieu non-linéaire dissocié de la source THz mais l'avantage du champ intense intracavité serait perdu ainsi que la compacité du montage. Pour résoudre les problèmes d'absorption, on se propose d'utiliser un échantillon à deux sections : une courte pour le mélange d'ondes et une plus longue pour la génération du THz (voir figure 3.23). L'interaction sera effectuée dans une section courte d'une dizaine de microns soit la longueur caractéristique de l'absorption. Cette géométrie optimise donc la taille nécessaire à l'interaction non-linéaire résonante.

Dans le premier paragraphe nous décrirons la géométrie de l'échantillon utilisé puis nous montrerons les résultats obtenus en réflexion. Enfin, nous les comparerons avec les résultats de la génération en transmission mesurés sur le même échantillon.

3.2.1 Principe de la cavité à double section

Le principe est d'avoir deux sections/cavités couplées optiquement dans le THz. Les deux sections sont de tailles très différentes : une relativement longue (1.5 mm) de sorte qu'elle garde toujours le fonctionnement laser et une très courte d'environ 50 µm. C'est dans cette section courte qu'a lieu l'interaction non-linéaire. Cette section est pompée optiquement par un faisceau NIR et également dans le THz par la seconde section, qui constitue un LCQ THz. Les deux cavités sont par contre découplées électriquement ainsi le champ appliqué sur la section où a lieu le mélange de fréquences peut être indépendant de la puissance du faisceau THz délivrée par l'autre section. Pour réaliser ce type d'échantillon, un procédé classique est effectué pour avoir un ruban laser et avant la dernière métallisation, la région active est gravée par réaction ionique pour obtenir les deux sections. Ces étapes de fabrication sont réalisées au laboratoire Matériaux et Phénomène Quantique de l'université Paris VII. La figure 3.23 donne une vision schématique de l'échantillon obtenu.

La géométrie utilisée est très proche de celle utilisée dans les références [Burghoff 2011, Martl 2011, Maysonnave 2012a] pour l'étude des LCQ en spectroscopie THz dans le domaine temporel. Dans ces articles, la section courte avait un rôle d'émetteur d'impulsions THz et permettait de coupler dans un LCQ à guide double-métal pour faire l'étude de son gain. Nous reviendrons plus en détails sur cette technique dans le chapitre 6 sur l'injection des LCQ.

Notre approche ici est en quelque sorte inversée. Il s'agit d'étudier les non-linéarités optiques de la section courte en couplant le THz généré par la section longue. Dans les deux cas, l'avantage du dispositif est le couplage du THz entre les deux sections qui forment un seul milieu de propagation car l'espace gravé est de seulement 3 μm ce qui est faible devant la longueur d'onde d'émission du LCQ ($\sim$ 30 µm dans le GaAs). La cavité THz est donc formée des deux sections et le champ THz dans la section courte

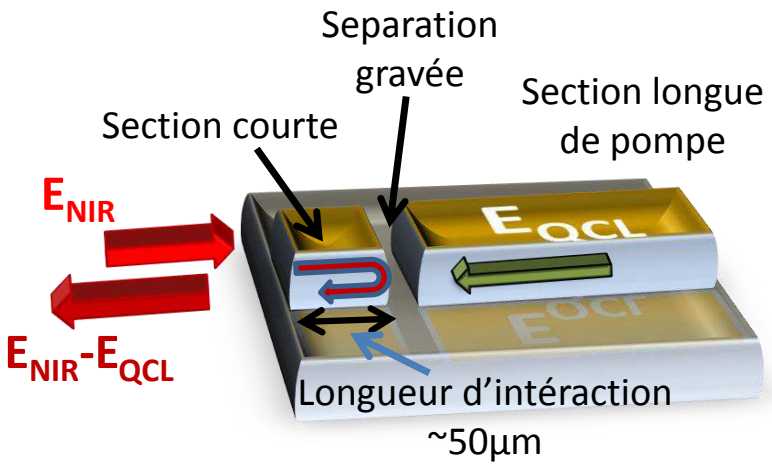


FIGURE 3.23 – Schéma de la génération de mélange d'ondes double résonant en réflexion. La section longue de droite mesure dans notre cas 1.5 mm.

est beaucoup plus intense que si nous utilisions une source THz externe. Les simulations [Martl 2011] montrent un facteur de couplage élevé de 0.6 pour une séparation de 3 µm.

3.2.2 Dispositif expérimental

Le montage expérimental est le même que celui utilisé pour les mesures de la photoluminescence du LCQ (illustré figure 3.5). La seule différence est que l'excitation est résonante contrairement aux mesures de PL où l'excitation se situe très au-dessus du gap. Le faisceau de pompe est couplé dans la petite section. Le faisceau issu du mélange de fréquences sera alors généré dans cette section puis réfléchi par l'interface entre les deux sections (de même que la pompe). Le faisceau généré est collecté par le même objectif servant au couplage (géométrie confocale).

Une des difficultés expérimentales dans ce cas est de s'affranchir de la forte luminosité de la pompe réfléchie sur la facette d'entrée. Cela est réalisé en utilisant le réseau du spectromètre le plus dispersif. Néanmoins des ordres parasites du réseau perturbent la mesure ce qui a pour conséquence d'abaisser le rapport signal sur bruit. Le signal du mélange d'ondes étant un peu plus faible qu'en transmission, la puissance optique moyenne utilisée est légèrement supérieure ($\sim$ 1 mW).

Pour coupler le faisceau de pompe dans la région active du LCQ, on se place temporairement dans la géométrie en transmission car il est plus aisé de voir le couplage dans le ruban de cette façon. Par la suite, nous mesurons l'émission du faisceau généré par différence de fréquences à partir de la facette d'entrée dans le schéma du montage en réflexion. L'émission de photoluminescence de la région active peut également être utilisée pour aligner le chemin optique en réflexion.

L'échantillon utilisé est issu d'un dessin *bound-to-continuum* (croissance L747 réalisée à l'université de Leeds, voir la structure de bande sur la figure 3.24) émettant à 2.2 THz ($\sim$ 9 meV). Il a été fabriqué avec un guide double-métal. La section qui sert de LCQ fait 1.5 mm de long et 100 µm de large. La caractéristique lumière-tension-courant à basse température (10 K) est représentée sur la figure 3.25. La densité de courant est de 96 A/cm^2 au seuil laser. La longue section est alimentée avec une tension mo-

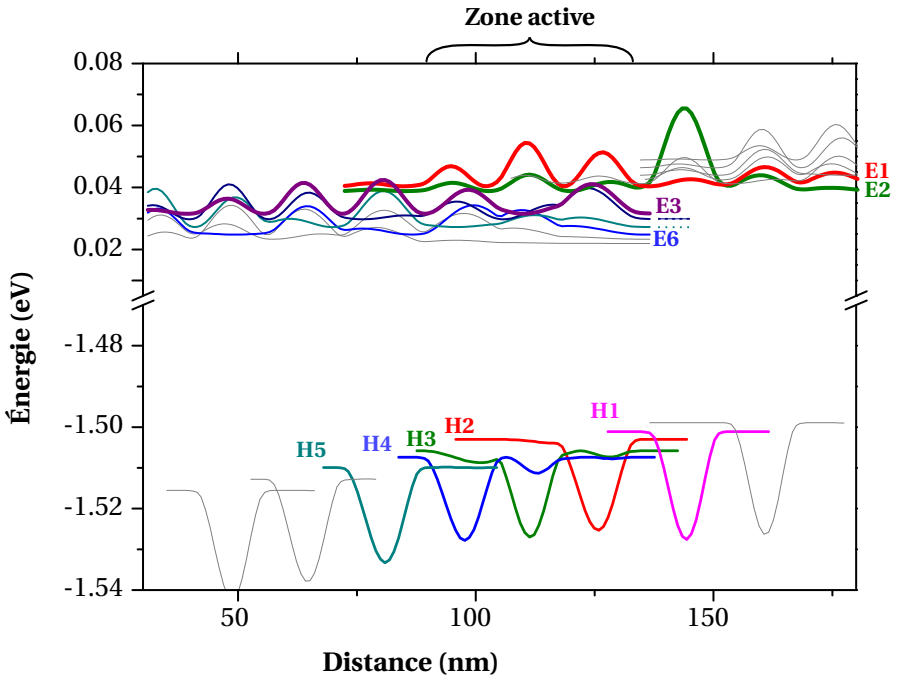


FIGURE 3.24 – Structure de bandes simulée de la croissance L747 avec un champ de 1.8 kV/cm. Seul les modules carrés des fonctions d'ondes des trous lourds sont représentés dans la bande de valence.

dulée à 10 kHz avec un rapport cyclique de 50 %. La section courte est quant à elle alimentée en continu. Pour l'excitation optique proche-IR, les impulsions lumineuses sont légèrement plus courtes que les impulsions électriques appliquées aux LCQ (10 kHz à 40 %). Cela garantit que le LCQ est toujours en fonctionnement quand il y a l'excitation proche-IR.

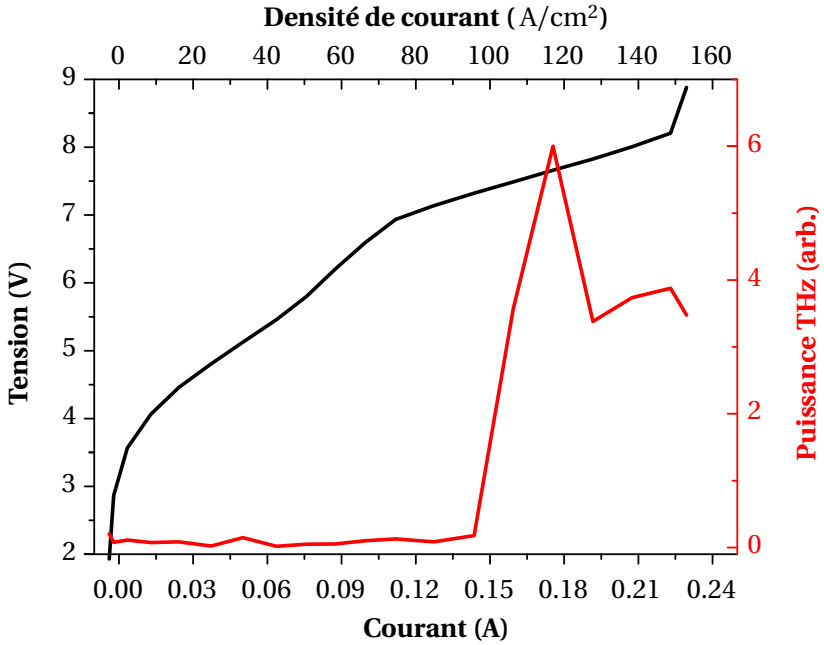


FIGURE 3.25 – Caractéristique lumière-tension-courant de l'échantillon L747 à 10 K. Un ruban de 1.5 mm de long et de 100 µm de large est alimenté à 10 kHz. Le seuil laser est atteint pour un courant de 144 mA. La petite section n'est pas connectée

3.2.3 Mise en évidence du mélange de fréquences en réflexion

La figure 3.26 montre les spectres de la somme et la différence de fréquences pour une même énergie de pompe ($E_{\text{pompe}} = 1.521$ eV). Les spectres de ces deux raies latérales sont mesurés séparément car entre les deux énergies, la réflexion de la pompe sur la facette d'entrée sature largement la caméra CCD. Le fond de luminescence est très différent entre les deux ordres car la luminescence ne peut pas être émise à partir d'énergies plus élevées que la pompe excitatrice.

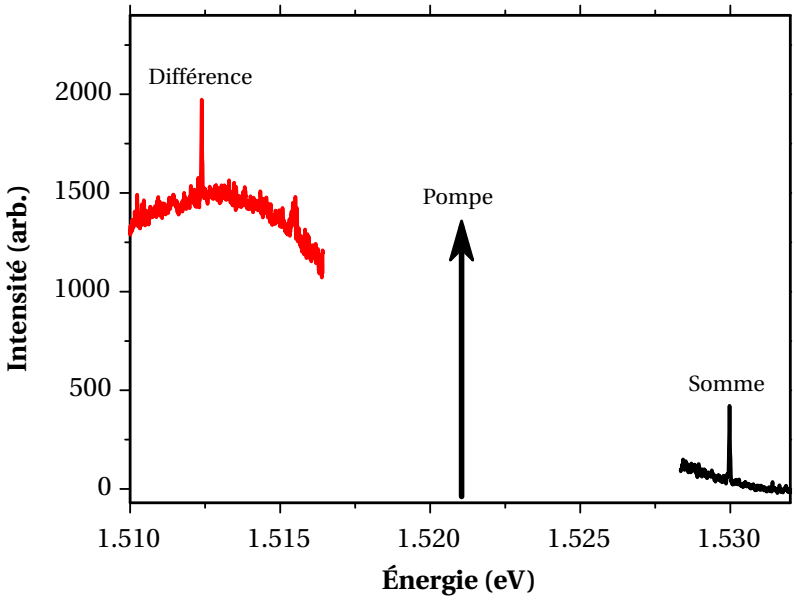


FIGURE 3.26 – Spectre des faisceaux générés en réflexion par la somme (noir) et différence (rouge) de fréquences. La pompe est représentée par une flèche. La section longue est polarisée à son courant optimal ($j_{\text{max}} = 175$ mA).

On observe la génération de la somme et de la différence de fréquences en réflexion uniquement lorsque les deux sections sont portées au-dessus du seuil du LCQ. Cet effet de seuil s'explique naturellement pour la longue section au vu des résultats précédents avec la géométrie colinéaire. Concernant la section courte, cela est plus surprenant car cette partie du ruban ne génère pas de THz et joue seulement le rôle de milieu non-linéaire. Une tension faible devant le champ correspondant à l'alignement (~ 1.5 kV/cm) pour polariser la structure devrait être suffisante pour briser la symétrie et avoir ainsi des non-linéarités du second ordre [Carter 2005].

Pour mieux comprendre ce comportement, on trace les caractéristiques tension-lumière-courant (fig. 3.27) en fonction de la tension en continu sur la section courte, pour une tension fixe sur la section LCQ (correspondante au maximum d'émission). On mesure la puissance THz issue de la facette de la section courte. Comme la surface est beaucoup plus faible, le courant injecté est d'autant plus faible. On remarque cependant que la densité de courant est comparable et la tension au seuil reste la même. C'est pourquoi dans la suite, on utilisera souvent la tension pour comparer la polarisation respective des deux sections. Comme la section longue est polarisée au-dessus du seuil laser, on détecte de l'émission THz même à faible courant sur la section courte. On observe qu'il y a une large augmentation quand on atteint une tension/densité de courant légèrement supérieure à celle du seuil du LCQ. Quand les deux

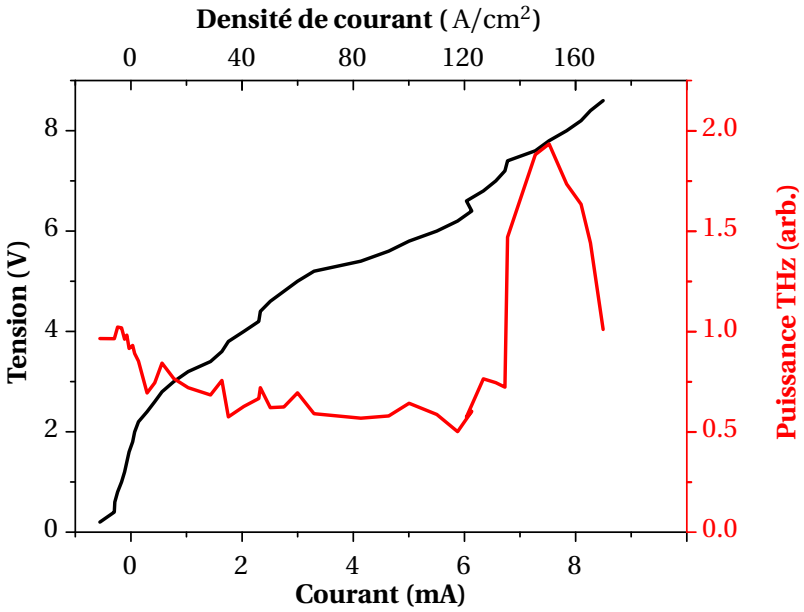


FIGURE 3.27 – Caractéristique lumière-tension-courant en continu de la section courte L747. La section longue est polarisée à son courant optimal ($j_{max} = 175$ mA).

sections sont bien alignées, il y a plus de puissance THz en sortie de la section courte car il y a du gain dans cette dernière ce qui favorise l'extraction du THz vers cette facette. Quand l'alignement n'est pas bon, des pertes par absorption limitent l'intensité du champ dans cette cavité.

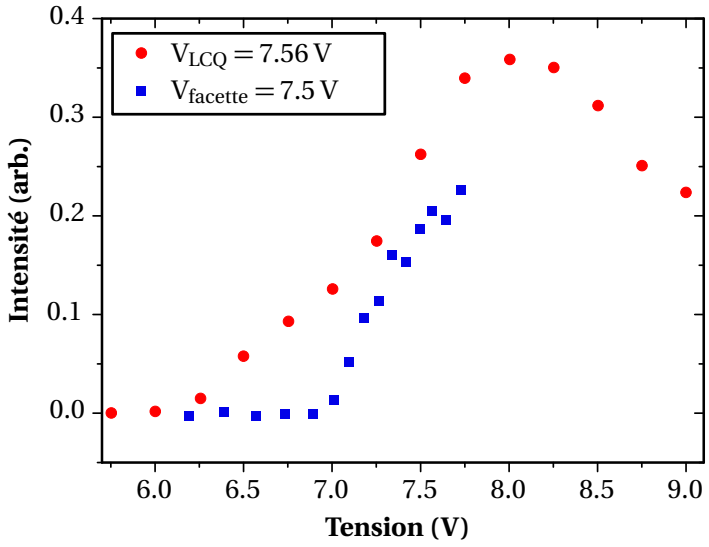


FIGURE 3.28 – Intensité de la génération de la différence de fréquences en fonction de la tension de la section courte (carré bleu) et de la longue section (rond rouge). Excitation proche-infra rouge à 1.524 eV.

On trace sur la figure 3.28 l'intensité de la raie latérale de la différence de fréquences (points rouges) en fonction de la tension sur la section courte pour une tension fixe sur le LCQ (le LCQ est polarisé au-dessus du seuil laser). On trace la courbe "réciproque" où la tension est fixe sur la section courte et varie pour l'autre section (carrés bleus). Comme précédemment, on note la dépendance linéaire avec un effet de seuil lorsque la tension aux bornes du LCQ varie.

Deux comportements différents sont observés lorsqu'on augmente la tension sur la section courte. D'abord il y a un effet de seuil à une tension plus faible que pour le LCQ. Cette tension correspond à une brisure de symétrie de la structure et à un alignement dans la structure de bande de la section courte où les pertes diminuent significativement. Dans un deuxième temps, pour une tension similaire à la tension de seuil (7 V), nous observons un changement de pente dans la courbe d'efficacité. Ce changement de pente correspond à l'augmentation de la puissance THz sur la figure 3.27. A partir de ce point, il y a du gain dans la petite section, donc le champ THz intra-cavité sera plus intense ce qui provoque une augmentation de l'efficacité (d'après l'équation 2.12).

Les pertes pour le THz sont trop grandes quand la petite section n'est pas polarisée, c'est pourquoi nous n'observons pas le mélange d'ondes dans ces conditions.

Dépendance avec l'énergie d'excitation

Pour mettre en évidence le caractère doublement résonant, il faut étudier l'efficacité du mélange d'ondes en fonction de l'énergie d'excitation. La figure 3.29 présente l'intensité du mélange d'ondes en fonction de l'énergie de pompe. La polarisation de la pompe est transverse électrique (TE) pour pouvoir comparer les résultats d'efficacité avec le spectre de photoluminescence également représenté sur la figure (ce spectre de photoluminescence est comparé plus tard avec les simulations de la structure de bande sur la figure 3.30).

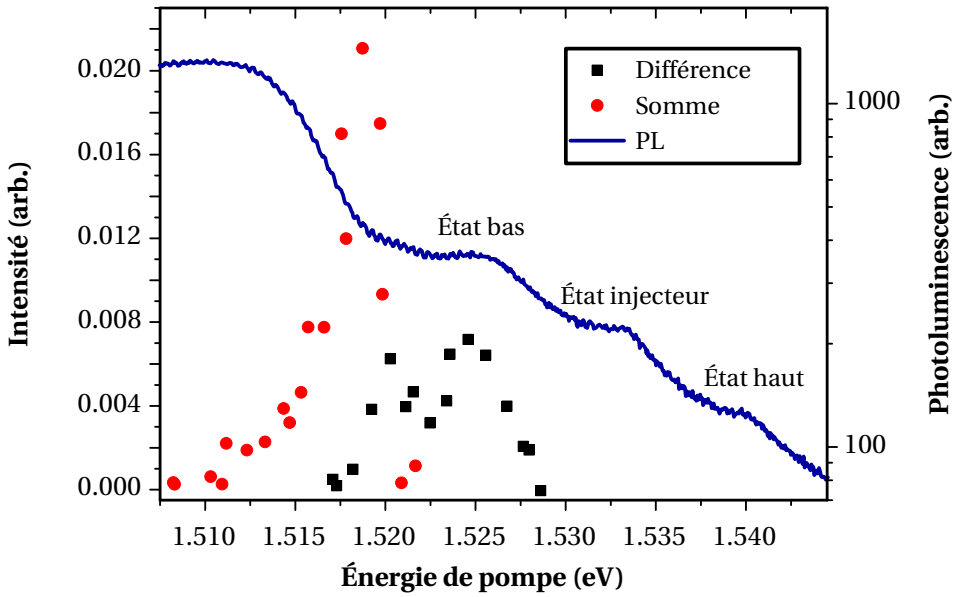


FIGURE 3.29 – Spectres intégrés des bandes latérales issus de la différence et de la somme de fréquences en fonction de l'énergie de pompe NIR polarisée en TE et spectre de la photoluminescence de la section courte (trait plein bleu).

On observe un seul maximum pour la génération de la somme et un double maximum [4] pour la différence de fréquences. Ces observations montrent que le processus n'est pas doublement résonant.

4. Les deux pics correspondent à deux mécanismes simplement résonants interbandes avec deux transitions distinctes comme on le verra plus tard.

En effet lorsqu'il y a un maximum dû à un processus doublement résonant, une deuxième résonance séparée de l'énergie du photon THz doit apparaitre également [Zaks 2013]. Cette deuxième résonance, moins intense, correspond au cas simplement résonant.

Les deux maxima de la somme et de la différence de fréquences sont séparés de l'énergie du photon THz. Les processus pour la génération de la différence et de la somme de fréquences sont analogues et font intervenir les mêmes états mais les deux transitions dans le proche-IR sont inversées (émission à la place d'absorption et réciproquement, voir sur la figure 3.30). D'après la figure 3.30.a, l'excitation NIR dans le cas d'un processus simplement résonant pour la génération de différence de fréquences correspond à l'excitation d'un mécanisme doublement résonant pour la génération de la somme (figure 3.30.b). Il devrait donc avoir un recouvrement en énergie plus important entre les courbes d'efficacité de la somme et de la différence de fréquences.

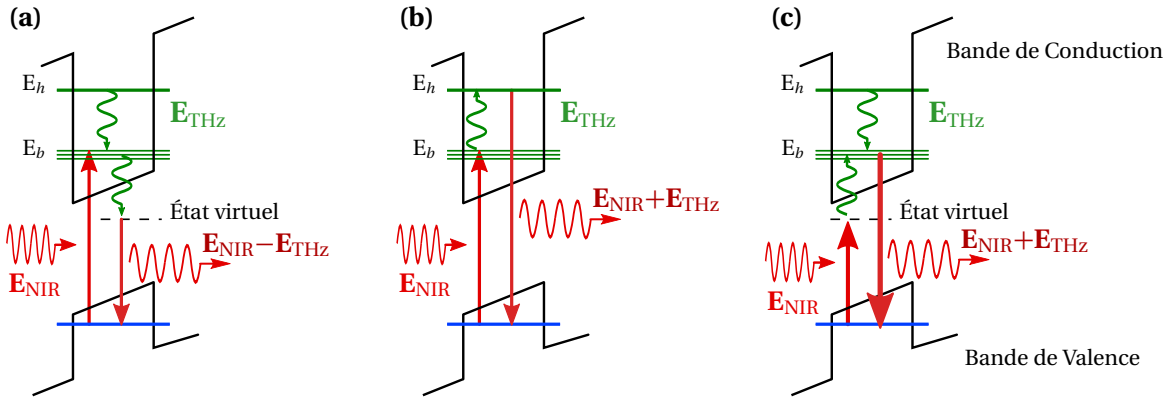


FIGURE 3.30 – Diagrammes représentant le mélange de fréquences pour : la génération de la différence dans le cadre d'un mécanisme simplement résonant (a) et de la somme pour le mécanisme doublement (b) et simplement (c) résonant.

Comparaison avec le spectre de photoluminescence

Le spectre de PL présenté sur la figure 3.29 permet de mieux comprendre les résonances en présence. Avant de le commenter, il faut noter une large bande intense à basse énergie. Elle se situe en dessous de l'énergie de la bande interdite. Il serait plus approprié de parler d'électroluminescence que de photoluminescence car cette bande est présente en l'absence d'excitation optique. Elle n'apparaît que lorsqu'un courant passe dans le LCQ mais le courant nécessaire est inférieur au courant de seuil. Cette *électroluminescence* a été observée exclusivement dans des LCQ avec un guide double-métal. L'origine de cette recombinaison interbande s'explique par la formation d'une couche p à proximité des contacts Schottky présents lors d'une fabrication du guide double-métal. Avec le champ électrique, un courant de diffusion de trou apparaît dans la bande de valence de la zone active [Babinski 2001]. La présence de ces trous permet une recombinaison interbande avec les électrons provenant du dopage de la bande de conduction. Cette luminescence n'apporte par d'information sur la structure de bande, elle est malgré tout un bon outil pour aligner correctement le cryostat dans le chemin optique (notamment dans la géométrie en réflexion).

Pour le reste du spectre, on distingue trois pics dont les transitions sont attribuées grâce à la simulation de la structure de bande (voir figure 3.24). Le pic le plus bas en énergie (1.525 eV) correspond à la

transition entre l'état bas du LCQ (E_3) avec les trous lourds (H_2 et H_3)de la zone active. Le deuxième pic (1.5397 eV) a pour origine la recombinaison entre l'état électronique de l'injecteur (E_2) du laser avec le trou lourd noté H_1. On observe enfin un pic faible à 1.54 eV. Nous attribuons ce pic à la transition entre l'état haut du laser et les état de trou (H_3 et H_4) de la zone active. L'identification de ce pic est accessoire car cette transition est trop haute en énergie pour intervenir dans les résonances du mélange d'ondes.

En mettant en relation le spectre de PL avec les efficacités de la différence de fréquences en fonction de l'énergie de pompe, on peut conclure que le mécanisme du mélange d'ondes reste simplement résonant (seule l'énergie de la pompe est résonante avec une transition réelle). En effet, comme dans l'échantillon précédent (V193), le pic de PL le plus bas en énergie (1.525 eV) correspond à l'énergie d'excitation de pompe du maximum de l'efficacité.

3.2.4 Comparaison avec la géométrie en transmission

Cet échantillon a également été testé en transmission pour comparer les deux géométries. Dans ce cas on polarise avec la même tension les deux sections pour que le comportement se rapproche d'un LCQ monolithique.

On compare les spectres intégrés (normalisés) pour les deux géométries sur la figure 3.31. On observe un décalage de 3 meV entre les deux configurations pour la génération à hautes énergies d'excitation en faveur de la géométrie en réflexion. Ce décalage ne correspond pas réellement à un changement de mécanisme non-linéaire. Dans les deux cas le processus est simplement résonant. Par contre, l'effet de l'absorption est plus faible pour la géométrie en réflexion car la propagation du faisceau généré dans la zone active est plus courte. Dans ce cas, nous avons donc accès à des énergies plus hautes. C'est pourquoi l'allure de la résonance diffère entre les deux configurations. Dans le cas en transmission, la pente est très brutale vers le bleu alors que la résonance est plus symétrique pour le cas réflectif. Ceci joue également sur la largeur à mi-hauteur de la courbe d'efficacité qui double pour atteindre 4 meV. La largeur de la résonance pour la géométrie colinéaire est limitée par l'absorption alors qu'elle est davantage reliée à l'élargissement des transitions interbandes pour la géométrie en réflexion.

Il est difficile de comparer quantitativement les efficacités du mélange de fréquences dans les deux géométries, car en réflexion la majorité du faisceau de pompe collecté provient de la réflexion sur la facette d'entrée. Néanmoins la puissance de pompe dans la cavité est estimée en mesurant la puissance du faisceau avant le passage dans l'objectif de microscope et en tenant compte de l'efficacité de couplage (~ 20 %, voir paragraphe 3.1.1.2). L'intensité sur la caméra est calibrée par un faisceau de référence de puissance connue ce qui permet de remonter à la puissance de la raie générée et donc de l'efficacité du mélange d'ondes. On obtient ainsi une valeur de 5.10^{-4} % d'efficacité en réflexion soit deux ordres de grandeur plus petit que l'efficacité en transmission. Cela s'explique par le fait que le $\chi^{(2)}$ du système reste similaire (mélange d'ondes toujours simplement résonant) mais que les pertes du faisceau IR ont augmenté. En effet, pour pouvoir détecter en réflexion, le faisceau provenant de la différence de fréquences est réfléchi sur l'interface entre les deux sections, cela provoque des pertes supplémentaires qui expliquent cette efficacité plus faible. De plus la facette d'entrée (et donc de sortie dans la géométrie en réflexion) dans cette géométrie possède une moins bonne qualité de surface car elle n'a pas été clivée mais a été formée par gravure de l'échantillon. Cette différence de qualité de surface inflige des pertes supplémentaires au faisceau généré.

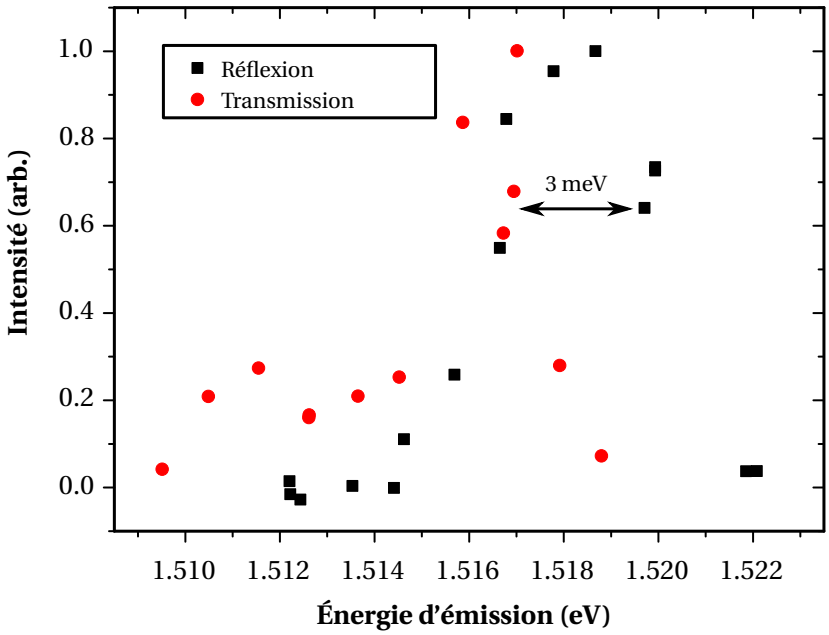


FIGURE 3.31 – Spectres intégrés des bandes latérales issues de la différence de fréquences en fonction de l'énergie de pompe NIR pour les deux configurations : en transmission (point rouge) et en réflexion (carré noir). Les courbes sont normalisées pour simplifier la comparaison

Cette comparaison montre que même si le mécanisme doublement résonant n'est pas accessible avec cet échantillon, cette géométrie est prometteuse pour pouvoir s'affranchir de l'absorption.

3.2.5 Perspectives

Nous avons donc démontré qu'il était possible d'observer le mélange d'ondes en réflexion et l'utilisation de cette géométrie est prometteuse pour voir un processus doublement résonant. Cependant la longueur de la section courte ici utilisée est encore trop grande. Lorsque que le faisceau se propage sur 100 µm (aller-retour dans la section), il subit des pertes de 1000 cm^{-1} telles qu'il est atténué d'un facteur ~ 20000. Ce facteur joue de manière évidente un rôle trop important. Une solution consiste à raccourcir cette longueur à 20 µm ce qui permettrait d'avoir une longueur d'interaction encore suffisante et de diminuer de manière significative les pertes (facteur diminué à ~ 50).

L'autre amélioration envisageable est de déposer une couche antireflet pour le proche-IR sur la facette d'entrée. Cela permettrait d'une part de coupler plus de lumière dans la cavité et d'avoir moins de lumière parasite provenant de la réflexion sur la facette d'entrée. D'autre part, on pourrait également extraire plus de lumière provenant de la raie latérale générée.

Nous venons de montrer dans ces deux premières sections comment de nouvelles fréquences pouvaient être générées avec un processus en $\chi^{(2)}$ (que ce soit simple ou doublement résonant) entre une excitation proche-IR et le champ THz du LCQ. La variation de l'énergie d'excitation de la pompe NIR montre que le mélange d'ondes dans le LCQ avec le champ THz intracavité est exaltée par le caractère résonant de l'interaction non-linéaire. Jusqu'à présent, nous nous sommes intéressés seulement à la génération du premier ordre. Par la suite nous allons démontrer comment on peut générer des ordres supérieurs faisant intervenir plusieurs photons THz avec des processus d'optique non-linéaire d'ordre 3 ou 4. Ces processus à plusieurs

photons demandent une densité optique THz plus importante. Les LCQ à dépopulation par phonon LO émettent plus de puissance, ils sont donc mieux adaptés pour ces expériences. De plus, leur structure de bande est plus simple. Il sera donc plus facile d'interpréter les résonances observées lors du mélange de fréquences.

3.3 Génération d'ordres supérieurs dans un LCQ LO-phonon

La génération de raie latérale d'ordres supérieurs, aux énergies $E_{\mathrm{NIR}} - nE_{\mathrm{LCQ}}$ (avec $n > 1$), démontre le caractère fortement non-linéaire d'un système. Ces raies sont générées, par exemple, dans les systèmes de multi-puits quantiques asymétriques excités par un laser à électron libre [Carter 2004]. Dans cette section, nous démontrons la génération de bandes latérales d'ordre supérieur jusqu'au troisième ordre ($n = 3$). Comme annoncé à la fin de la section précédente, nous utilisons un LCQ dont la dépopulation s'effectue par phonon LO, émettant toujours dans la même gamme de fréquences (2.9 THz $\sim E_{\mathrm{LCQ}} = 12$ meV). La structure de bande de ce type de dessins est plus simple que celle des LCQ BTC car elle contient moins de puits. Cette simplicité limite le nombre de transitions interbandes à considérer ce qui facilite l'interprétation des résonances observées. Ces dessins permettent également d'obtenir plus de puissance THz. L'autre caractéristique qui différencie cet échantillon du précédent est la nature de son guide. La zone active a été placée dans un guide double-métal qui confine plus le champ THz et conduit à une densité de photons plus importante dans la zone active. L'utilisation de ce guide augmente le recouvrement modal entre les deux faisceaux mélangés ce qui est favorable à l'interaction non-linéaire. Nous démontrerons ainsi la possibilité d'émettre des ordres supérieurs à partir de résonances électroniques grâce à ce champ THz plus confiné. Nous étudierons la nature de l'interaction non-linéaire intervenant pour l'ordre 2. Enfin, nous mettrons en relation les résonances interbandes avec les mesures de PL et la simulation de la structure de bande.

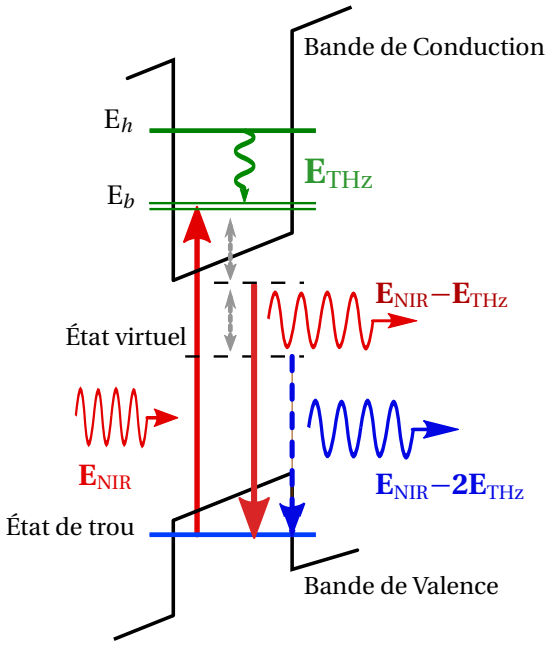


FIGURE 3.32 – Diagramme du processus permettant de générer l'ordre 2 du mélange d'ondes. Les deux niveaux virtuels (représentés en ligne pointillée) sont espacés de l'énergie du photon THz

3.3.1 Caractérisation de l'échantillon L773

L'échantillon L773 a été crû à l'université de Leeds et cette croissance est issue d'un dessin proposé par Amanti et al. [Amanti 2009b]. Ce dessin est plus simple que le V193, il n'a que quatre puits (contre 9 pour l'échantillon V193). Cette réduction du nombre de puits s'accompagne d'un nombre réduit d'états à

considérer pour les transitions interbandes. Le transport d'une période à l'autre s'effectue par l'émission d'un phonon optique longitudinal dans le puits le plus large. La structure de bande sera discutée plus en détails par la suite (voir figure 3.40).

Cet échantillon fonctionne en alimentation continue à 10 K mais pour des raisons de dissipation thermique, nous avons travaillé à une fréquence de 50 kHz avec un rapport cyclique de 25 % (éventuellement 50 %). En effet les LCQ à dépopulation par phonon ont besoin d'une tension plus élevée pour aligner la structure et d'une densité de courant plus importante. La fabrication du ruban dans une géométrie de guide d'onde double-métal a été réalisée à l'Institut d'Électronique Fondamentale de l'université Paris XI. Le ruban a une largeur de 100 µm et une longueur identique aux échantillons précédents (1.5 mm). La relative petite taille de la largeur diminue la stabilité du montage car de plus petites variations de la position du cryostat empêchent la pompe de se coupler au ruban du LCQ. C'est une raison supplémentaire pour travailler en régime impulsionnel pour l'alimentation du LCQ. En continu, les puissances à dissiper varient beaucoup entre le courant de seuil et le courant correspondant à l'émission maximale. Notre cryostat dispose d'un doigt froid dont les variations en longueur peuvent devenir critiques pour l'alignement si la variation des puissances à dissiper est trop grande au cours d'une mesure.

Caractéristique du guide double-métal dans le THz et le NIR

La figure 3.33 montre les modes NIR et THz simulés en résolvant les équations de Maxwell dans le guide double-métal du LCQ L773. On remarque que le mode THz est confiné dans la région active avec un très bon recouvrement (> 98 %). Le mode NIR a également un bon recouvrement avec le faisceau THz et la région active. La particularité du guide double-métal est que l'onde THz est confinée dans un vo-

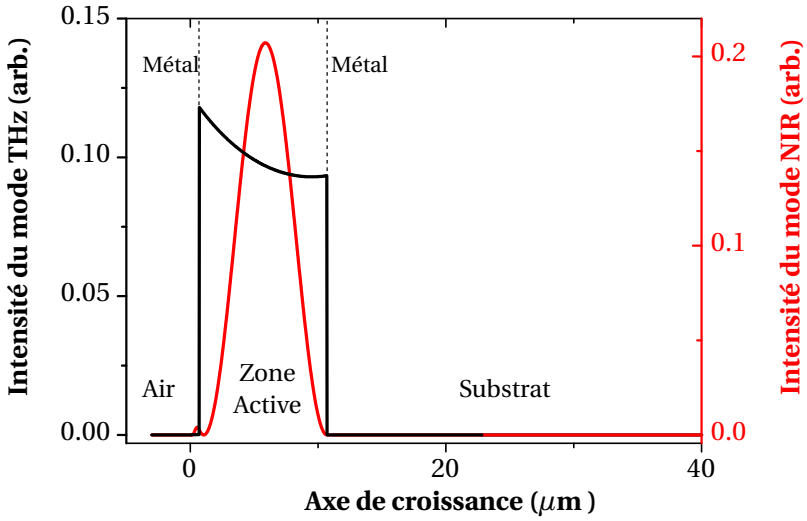


FIGURE 3.33 – Simulation unidimensionnelle de l'intensité modale des faisceaux guidés THz (en noir) et proche-IR (en rouge) dans un guide dit *double-métal*. L'origine est prise au niveau de la couche métallique supérieure. Les faisceaux ont une polarisation transverse magnétique.

lume très sub-longueur d'onde. Le ruban a une épaisseur de 10 µm alors que la longueur d'onde du laser est de l'ordre de 100 µm. Cette caractéristique a deux conséquences néfastes pour le fonctionnement du laser : d'une part le faisceau diffracte dans presque toutes les directions à la facette de sortie [Adam 2006] et d'autre part la réflectivité des facettes est grande, ce qui limite l'extraction du THz. Cependant, ces deux inconvénients n'influent pas sur le mélange d'ondes. En effet lors de l'expérience, le champ loin-

tain de la bande latérale est dans le proche-IR donc il y a peu de diffraction en sortie. De plus le mélange de fréquences se fait à l'intérieur de la cavité donc la réflectivité des facettes est un avantage qui permet d'avoir des puissances à l'intérieur de la cavité de l'ordre de dizaines de kW/cm^2 pour le THz.

3.3.2 Démonstration de l'émission d'ordres supérieurs

Pour la génération de l'ordre deux, la densité de puissance THz ne va plus intervenir de manière linéaire dans l'efficacité du processus mais de façon quadratique ($P_{\text{out}} \propto P_{\text{NIR}} P_{\text{THz}}^2$, voir chapitre 2). Pour faciliter l'apparition de ces ordres, il faut donc augmenter le champ intracavité, pour cela on utilise un LCQ plus puissant (dessin LO-phonon) avec un guide double-métal. Comme le mode THz est plus confiné alors la densité de puissance sera augmentée.

D'un point de vue expérimental, le montage est presque identique à l'observation du premier ordre. Nous orientons simplement le réseau du spectromètre afin de centrer la longueur d'onde d'observation sur la génération du deuxième ordre. L'efficacité du processus non-linéaire de la génération de l'ordre deux ($E_{\text{NIR}} - 2E_{\text{THz}}$) est beaucoup plus faible que le processus en $\chi^{(2)}$ du premier ordre ($E_{\text{NIR}} - E_{\text{THz}}$) [5]. Le temps d'exposition de la caméra CCD doit donc être plus long (environ cinquante fois plus grand que pour le 1$^{\text{er}}$ ordre). Il est alors nécessaire d'observer chaque ordre un à un pour éviter que les ordres inférieurs ou la pompe NIR ne saturent la caméra. Pour cela nous utiliserons exclusivement le réseau 1800 l/mm. La puissance de pompe est légèrement supérieure à celle utilisée précédemment (250 W/cm^2). Cela permet d'avoir un meilleur contraste sur la caméra tout en restant en dessous de la saturation pour la génération du premier ordre.

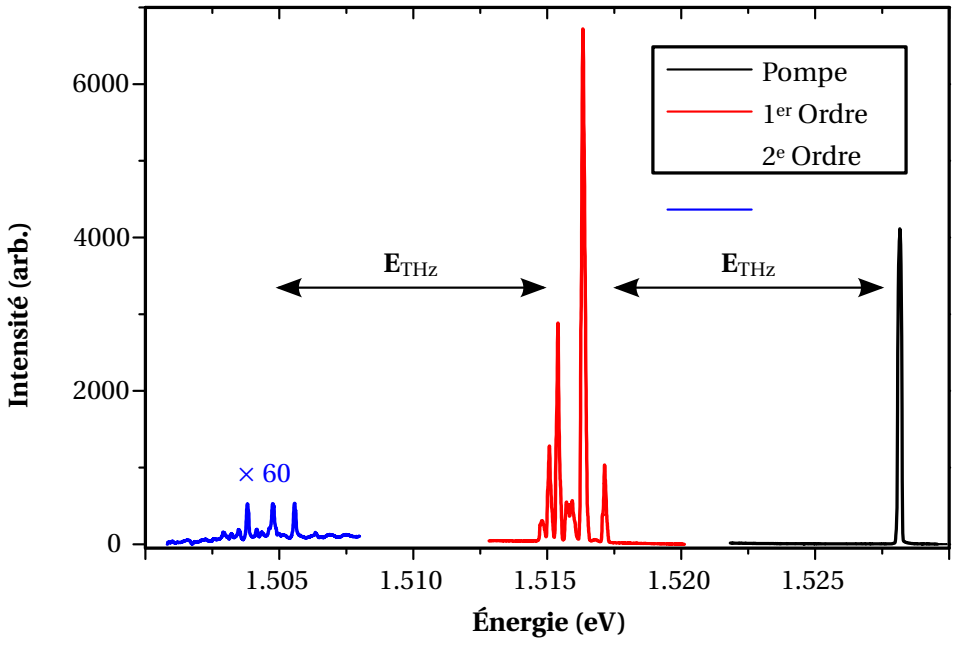


FIGURE 3.34 – Spectres des bandes latérales avec une excitation de pompe à 811.5 nm(1.528 eV) au-dessus du gap effectif du LCQ. Le LCQ est alimenté à une densité de courant de 255 A/cm^2 par des impulsions électriques de 10 µs cadencées à 50 kHz. Les raies sont séparées respectivement de E_{LCQ} et $2E_{\text{LCQ}}$. L'intensité de la raies latérale provenant du second ordre est multipliée par 60.

5. On attire l'attention sur la nomenclature des raies générées qui peut porter à confusion : la génération de la raie du premier ordre à l'énergie $E_{\text{NIR}} - E_{\text{THz}}$, dépend d'un processus non-linéaire en $\chi^{(2)}$ du second ordre.

La figure 3.34 montre les spectres typiques de la raie du premier ordre ($E^{1er} = 1516.3$ meV) et du second ordre ($E^{2nd} = 1504.8$ meV), ainsi que la partie non couplée de la pompe ($E^{pompe} = 1528.2$ meV). L'énergie d'excitation est choisie pour être au-dessus de la bande interdite de la région active et pour que le processus du premier ordre soit optimisé. Le premier et le second ordre sont séparés de la pompe par respectivement E_{LCQ} et $2E_{LCQ}$. La raie du second ordre est beaucoup moins intense que celle du premier ordre. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 3.1.1.4, l'ensemble de pics correspondant au premier ordre est la réplique du spectre THz du LCQ. On peut remarquer que la génération de la bande latérale du second ordre contient plus de *modes*. Cette complexité vient du mélange d'ondes entre les différents modes Fabry-Pérot THz du LCQ [Bengloan 2004]. Les efficacités mesurées pour les deux ordres valent respectivement :

ordre	P^{1er}/P^{NIR}	P^{2nd}/P^{NIR}
Efficacité	2.6×10^{-4}	3.6×10^{-7}

La puissance P^{NIR} est mesurée dans le domaine de transparence comme expliqué dans le paragraphe 3.1.1.4.

La génération du troisième ordre ($E_{NIR} - 3E_{THz}$) est également observée mais lorsque l'excitation est à plus haute énergie ($E_{NIR} = 1.55$ eV) de sorte que la raie du 3ème ordre soit générée juste sous le gap (voir fig. 3.35). Cette énergie d'émission correspond au maximum d'émission des raies du premier et second ordre.

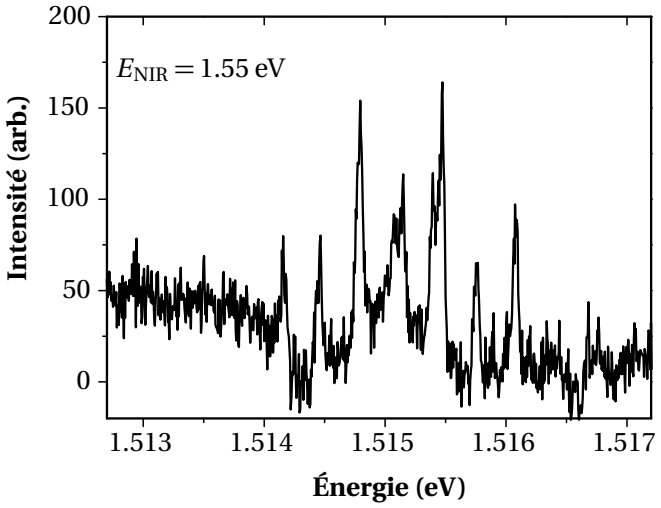


FIGURE 3.35 – Spectre de la bande latérale du 3ème ordre pour une excitation de pompe à 800 nm(1.55 eV). Le LCQ est alimenté à une densité de courant de 255 A/cm^2 par des impulsions électriques de 10 µs cadencées à 50 kHz. La bande est centrée sur l'énergie $E_{NIR} - 3E_{LCQ}$. Le temps d'intégration est de 150 s.

3.3.3 Effet non-linéaire d'ordre 3 - Dépendance avec la puissance THz

Pour étudier le processus mis en jeu lors de la génération d'ordres supérieurs, nous étudions l'intensité des raies générées en fonction de la puissance du faisceau THz. Les raies issues des différents ordres

montrent une dépendance particulière avec la puissance THz (voir fig. 3.36). Nous avons vu dans la section 3.1 que la raie du premier ordre avait une dépendance linéaire avec la densité de courant (donc de la puissance THz). Ce résultat est attendu pour les processus non-linéaire du second ordre qui peuvent être décrits par $P_{1\text{er}} \propto |\chi^{(2)}|^2 P_{\text{NIR}} P_{\text{THz}}$. L'intensité de la raie du second ordre varie de manière quadratique avec la densité de courant comme le montre l'ajustement sur la figure 3.36. Cette dépendance est en accord avec un processus du troisième ordre mettant en jeu deux photons THz, soit $P_{2\text{nd}} \propto |\chi^{(3)}|^2 P_{\text{NIR}} P_{\text{THz}}^2$ avec $\chi^{(3)}$ la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre.

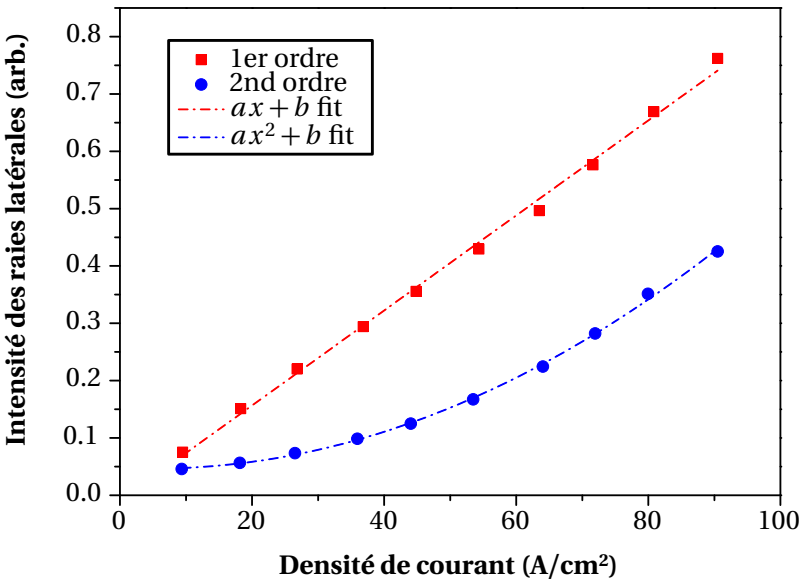


FIGURE 3.36 – Spectre intégré des deux ordres en fonction de la densité de courant. L'énergie de pompe est définie de sorte que les raies des deux ordres émettent à leur maximum (i.e. 1.516 eV). L'intensité du second ordre a été multipliée par 60. Les lignes pointillées sont respectivement l'ajustement linéaire (noir) et quadratique (rouge) des données. La densité de courant de seuil ($\sim 130\,\text{A/cm}^2$) a été soustraite pour plus de clarté pour les ajustements.

La génération du troisième ordre proviendrait d'une susceptibilité de type $\chi^{(4)}$ mettant en jeu trois photons THz. Cependant, nous ne pouvons pas faire d'étude quantitative sur la dépendance de ce mélange à cinq ondes avec la puissance THz à cause du bruit trop important lors des mesures. En effet, ce signal est à la limite de notre capacité de détection soit environ 0.1 pW.

Processus en $\chi^{(3)}$ dans un LCQ

Pour vérifier qu'il s'agit bien d'un processus en $\chi^{(3)}$, il faut vérifier que le LCQ n'émette pas de seconde harmonique à $2E_{\text{LCQ}}$ (~ 24 meV). En effet, la différence de fréquences entre la pompe NIR et ces photons à $2E_{\text{LCQ}}$ par un processus en $\chi^{(2)}$ générerait une raie à la même énergie que le second ordre et avec la même dépendance avec la puissance THz. L'acquisition du spectre avec un FTIR (voir le détail des mesures dans l'annexe B) ne révèle pas de seconde harmonique générée par le LCQ. Ces mesures effectuées au FTIR combinées à la dépendance quadratique confirme que la génération du second ordre est un effet d'ordre 3.

On peut faire une estimation du $\chi^{(3)}$ en s'appuyant sur le formalisme de Sutherland [Suther-

land 2003] :

$$\eta_{2\mathrm{nd}} = \frac{P_{2\mathrm{nd}}}{P_{2\mathrm{nd}}} = \eta_0^{(3)} \, \mathrm{e}^{\alpha_p \frac{L}{2}} \, \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2}) + \sinh^2(\frac{\alpha_p L}{4})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2 + (\frac{\alpha_p L}{4})^2} \,, \tag{3.3}$$

avec

$$\eta_0^{(3)} = \frac{16\pi^2 |\chi^{(3)}|^2 L^2 P_{\mathrm{LCQ}}^2}{\epsilon_0 n_{\mathrm{NIR}} n_{\mathrm{LCQ}}^2 n_{2\mathrm{nd}} c^2 \lambda_{2\mathrm{nd}}^2 S^2 \alpha_p} \,, \tag{3.4}$$

où $P_{2\mathrm{nd}}$ ($n_{2\mathrm{nd}}$), P_{NIR} (n_{NIR}), P_{THz} (n_{THz}) sont respectivement les puissances (indice de réfraction) du faisceau généré, de la pompe NIR, et du LCQ THz. L est la longueur de la cavité du LCQ, $\lambda_{2\mathrm{nd}}$ la longueur d'onde générée, c la vitesse de la lumière, S la surface d'interaction entre les faisceaux, Δk le désaccord de phase et α_p les pertes du proche-IR. De la même manière que pour le calcul de la susceptibilité du second ordre, on considère que les pertes de la pompe ($\sim 1000\,\mathrm{cm}^{-1}$) dominent les effets de désaccord de phase qui peuvent être négligés. On obtient alors une valeur de $\chi^{(3)} \approx 8 \times 10^{-16}(\mathrm{m/V})^2$ ce qui est à peu près deux ordres de grandeurs supérieur aux non-linéarités non-résonantes d'ordre 3 du GaAs massif [Said 1992].

D'après l'équation 3.4, l'efficacité est proportionnelle à $1/S^2$ alors que la dépendance était en $1/S$ pour la génération du premier ordre 3.1. Cette différence explique pourquoi la génération d'harmonique du deuxième ordre est plus efficace dans des guides d'ondes *double-métal* et qu'il est difficile de la voir dans les guides *simple plasmon*. En effet S^2 vaut $\approx 8.1 \times 10^7$ μm^2 pour un guide simple plasmon et $S^2 \approx 0.14 \times 10^7$ μm^2 pour un guide double-métal.

Processus en $\chi^{(3)}$ ou $\chi^{(2)}$ en cascade ?

La dépendance quadratique avec la puissance THz indique qu'il s'agit d'un processus en $\chi^{(3)}$ comme décrit plus haut. Cependant elle peut également s'expliquer par un $\chi^{(3)}$ effectif qui résulte de la cascade d'effet non-linéaire du second ordre notée $\chi^{(2)} \times \chi^{(2)}$ [Khurgin 1997].

Dans ce dernier cas, la raie générée du premier ordre joue à son tour le rôle de pompe NIR et génère une raie latérale par différence de fréquences avec un deuxième photon THz (voir figure 3.37). Pour un tel processus l'intensité de la bande latérale s'écrit $P_{2\mathrm{nd}} \propto P_{1\mathrm{er}} P_{\mathrm{THz}}$. La puissance du 1$^{\mathrm{er}}$ordre, $P_{1\mathrm{er}}$, étant elle-même proportionnelle à la puissance THz, on retrouve la dépendance quadratique obtenue. Cependant, cette possibilité est écartée pour la résonance lorsque la pompe est à 1.528 eV (en polarisation TM). En effet dans cette configuration de pompe, la raie du premier ordre se retrouve dans le domaine de transparence. Or, lorsque l'énergie de pompe est inférieure à la bande interdite, la conversion de fréquences est quasi-nulle. Ainsi la raie du premier ordre ne peut pas engendrer d'effet en cascade pour cette résonance.

Concernant la résonance à plus haute énergie, la raie du premier ordre se trouve alors résonante avec la transition interbande de plus basse énergie. La génération de la raie du second ordre provient d'une contribution du $\chi^{(3)}$ direct et de la cascade $\chi^{(2)} \times \chi^{(2)}$. Ces deux processus donnent des efficacités différentes qu'il est possible de calculer de manière théorique et ainsi lever l'incertitude. Cependant, comme on l'a déjà évoqué, ce problème est difficile en raison des nombreux états intervenant dans la structure de bande.

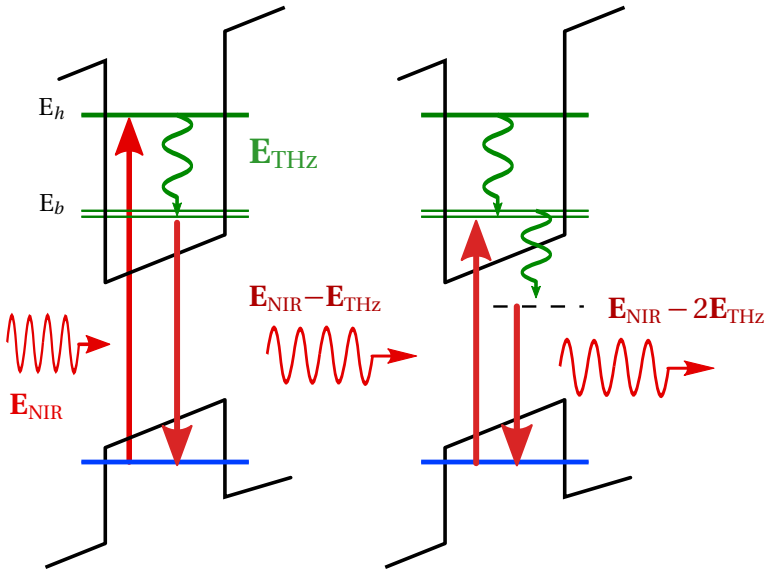


FIGURE 3.37 – Diagramme schématique d'un processus $\chi^{(2)} \times \chi^{(2)}$ pour la génération de l'ordre 2.

3.3.4 Dépendance des ordres supérieurs avec l'énergie d'excitation

L'intensité de la raie du premier et du second ordre ont été étudiées en fonction de l'énergie d'excitation de la pompe, polarisée TM (figure 3.38). Cela permet d'une part de montrer la nature résonante du mélange d'ondes sur un échantillon dont la structure de bande est plus simple et d'autre part d'observer des comportements différents pour les ordres 1 et 2. Le dessin *LO-phonon* de ce LCQ possède en effet moins de puits par période et donc moins d'états. De ce fait, il y a une résonance unique pour le premier ordre (à 1.528 eV) contrairement aux multi-pics observés pour les échantillons bound-to-continuum. Pour l'intensité de la bande du second ordre, on observe deux résonances : une à la même énergie que pour la raie du premier ordre et une seconde à plus haute énergie (1.540 eV). La gamme d'énergies de pompe où il y a génération du second ordre est beaucoup plus grande que pour le premier ordre. Cela s'explique par le fait qu'à haute énergie de pompe, la raie du premier ordre se trouve théoriquement à une énergie supérieure à celle de la bande interdite. Dans cette zone, elle est très absorbée et ne peut donc pas être détectée. Pour ces mêmes énergies d'excitation, la raie du second ordre se trouve toujours en dessous de la bande interdite, dans la zone de transparence du LCQ. On remarque d'ailleurs que les résonances pour les deux ordres à 1.528 eV n'ont pas le même comportement. On observe une résonance symétrique d'une largeur de 4 meV pour la résonance du second ordre alors que pour la même résonance du premier ordre, il y a une chute brutal due à l'absorption. La courbe d'efficacité est limitée aux hautes énergies à cause de l'absorption de la raie latérale.

Pour rendre compte de cet effet de l'absorption, on peut faire un ajustement par partie de la courbe d'efficacité. À basse énergie, on ajuste la courbe du première ordre par une courbe lorentzienne et à partir de l'énergie du gap on modélise l'absorption par une exponentielle décroissante. Pour le second ordre, on ajuste la première résonance par une lorentzienne et le second pic par la même modélisation que pour le premier ordre. Ces ajustements sont présentés en trait plein sur la figure 3.38. Ainsi, pour le second ordre, on note la différence de comportement entre les deux résonances.

De la même manière que dans la section 3.1, nous cherchons à identifier les transitions interbandes

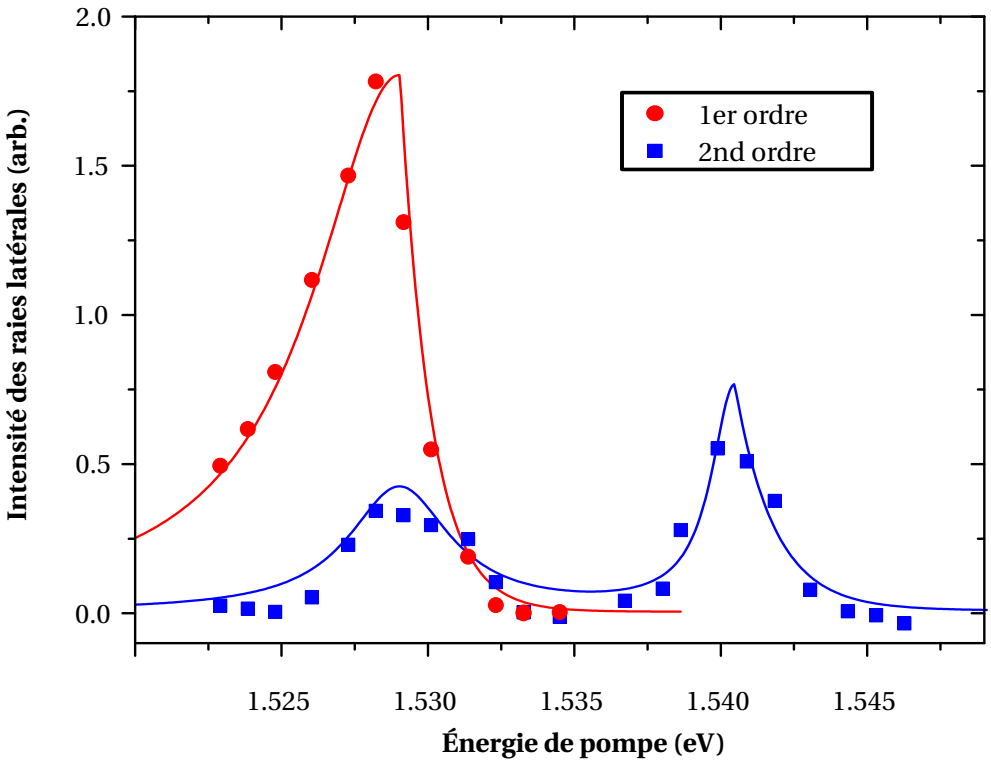


FIGURE 3.38 – Spectres intégrés des bandes latérales du 1er et du 2nd ordre en fonction de l'énergie de pompe NIR polarisée en TM. Le LCQ est alimenté à une densité de courant de 192 A/cm^2 par des impulsions électriques de 5 µs cadencées à 50 kHz. L'intensité du second ordre est multipliée par un facteur 60.

qui sont en résonance avec les énergies d'excitation du mélange de fréquences. Les résonances interbandes observées avec une pompe polarisée TM sont comparées avec le résultat des simulations de la structure de bande des électrons et des trous légers dans l'annexe A. L'efficacité, pour une polarisation proche-IR TE, est comparée avec les spectres de photoluminescences. Nous mettons en relation ces deux courbes avec les recouvrements entre les fonctions d'onde issues de la simulation de la structure de bande (figure 3.39). La structure de bande est présentée sur la figure 3.40. Comme expliqué dans la référence [Vitiello 2005], l'énergie de la PL est décalée vers le rouge à cause du chauffage par effet Joule de l'échantillon (environ 2 W sont appliqués sur une surface de 0.15 mm^2). Pour prendre ce décalage en compte, l'énergie des recouvrements interbandes est décalée de 6 meV pour que le pic principal de PL coïncide avec la transition électronique $E_1 \rightarrow H_1$.

Le spectre de PL montre un pic intense et large à 1.525 eV provenant de la recombinaison entre les états électroniques notés E_1 et E_2 et le premier trou lourd H_1 du puits large. L'état E_1 est l'injecteur de l'état haut (E_2) du LCQ. Ce sont les états où il y a les populations les plus grandes. Cette transition correspond à la première résonance dans la courbe d'intensité. À plus hautes énergie, on observe des épaulements dans le spectre de PL dont les transitions sont identifiées sur la figure 3.39. La transition $E_4 \rightarrow H_3$ est d'après la figure à l'origine de la résonance de la conversion du second ordre à 1.537 eV. La dernière caractéristique à noter du spectre de PL est le fond à basse énergie provenant d'une recombinaison interbande déjà discuté dans la section 3.2.

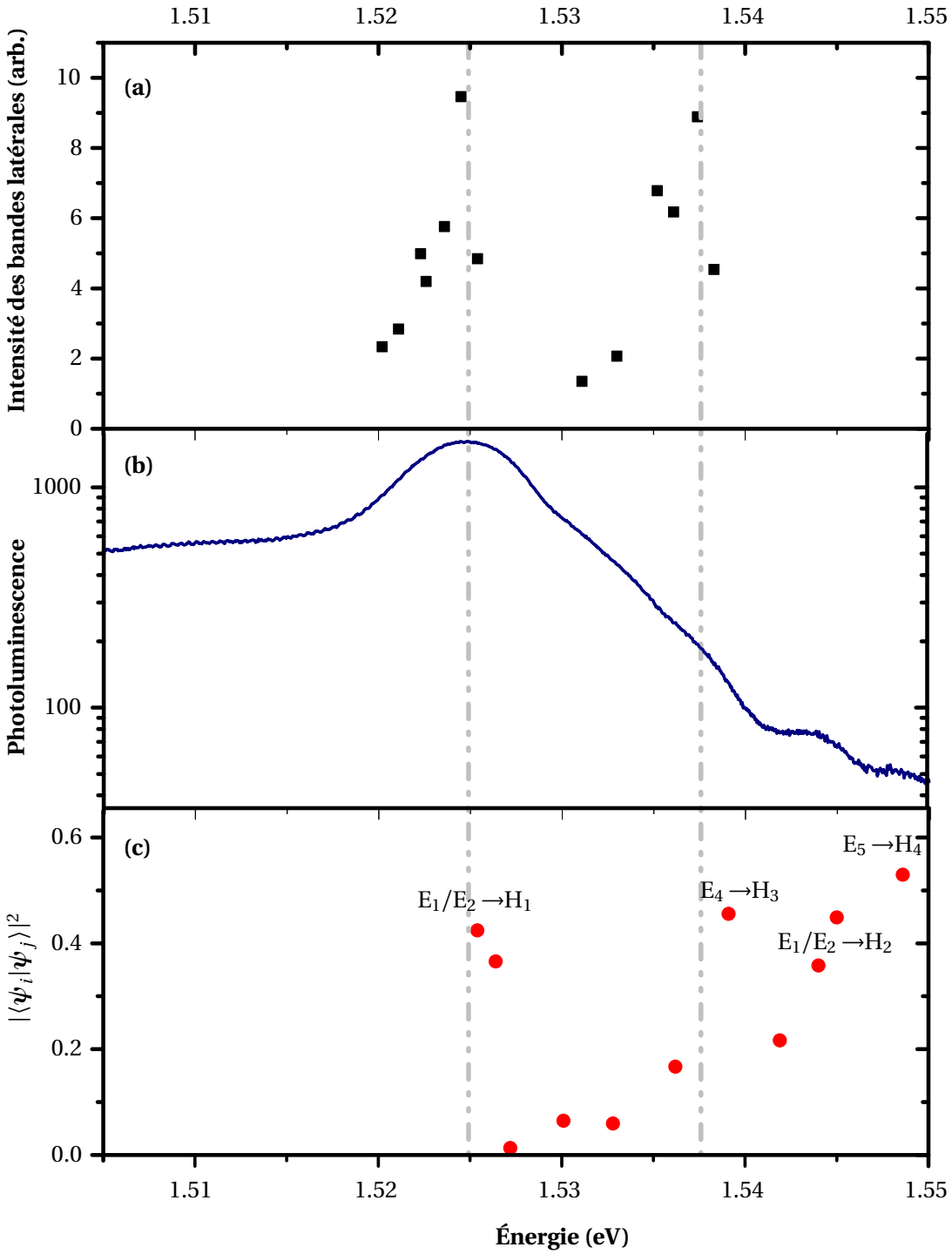


FIGURE 3.39 – **(a)** Intensité intégrée de la raie latérale d'ordre 2 en fonction de l'énergie de pompe. La pompe est polarisée en TE, excitant principalement les états de trou lourd.**(b)** Spectre de photoluminescence du LCQ alimenté au-dessus du courant de seuil. **(c)** Recouvrements élevés au carré des transitions interbandes significatives ($j \rightarrow i$) entre le j^{e} état électronique et le i^{e} état de trou lourd de la structure de bande simulée sur la figure 3.40.

En conclusion, nous avons montré dans cette section la génération d'ordres supérieurs jusqu'à l'ordre 3 pour la différence de fréquences. Ces ordres peuvent être générés car le champ THz est très confiné dans le guide double-métal et le champ intracavité est encore plus important que pour un LCQ à guide simple

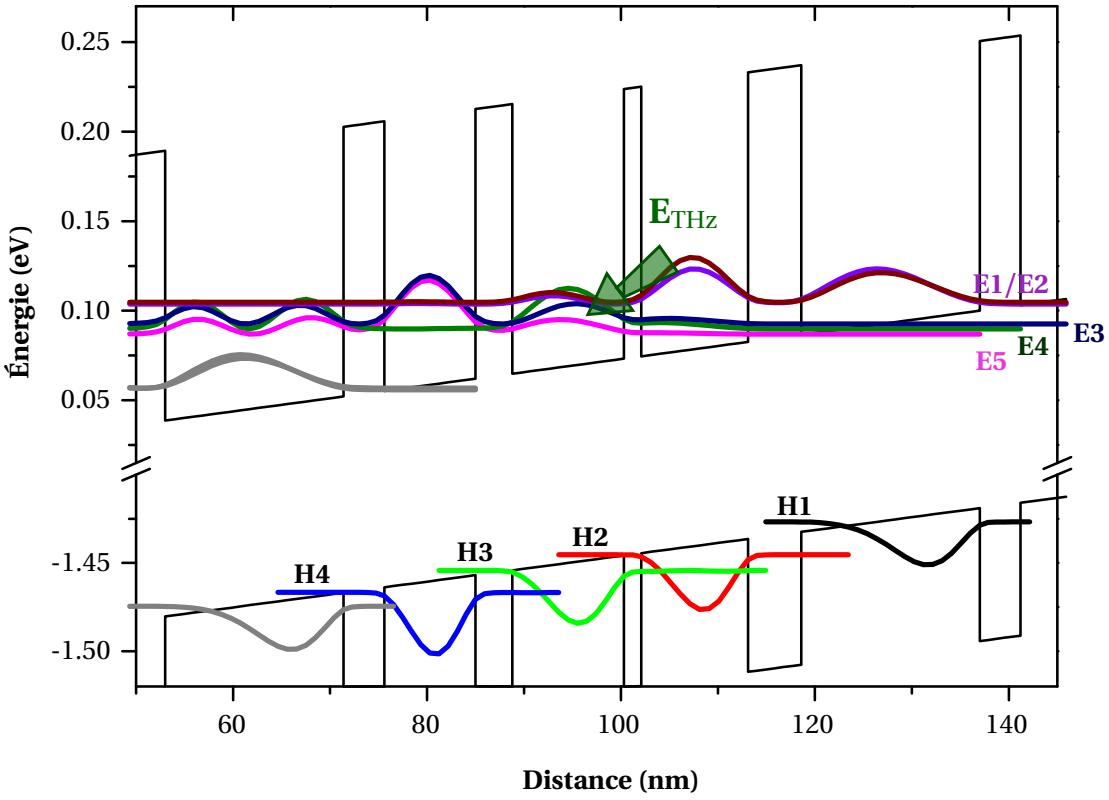


FIGURE 3.40 – Structure de bande simulée de la croissance L773 pour un champ de 7.3 kV/cm. Seul les modules carrés des fonctions d'ondes des trous lourds sont représentés dans la bande de valence. De droite à gauche et commençant par la barrière d'injection, le dessin des barrières d'$Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ (en gras) et des puits en GaAs est le suivant (en nm) : **5.5**/11.0/**1.8**/11.5/**3.8**/9.4/**4.2**/18.4*. Le puits muni d'un astérisque est dopé *n* à hauteur de 2×10^{16} cm^{-1} (dopage non-pris en compte pour la simulation).

plasmon. L'étude de la raie du second ordre en fonction de l'énergie d'excitation a permis de montrer le rôle de l'absorption. En minimisant le rôle de l'absorption (géométrie en réflexion) et en utilisant des LCQ encore plus puissants, des ordres plus élevés devraient être observables. Enfin l'utilisation d'un LCQ à dépopulation par phonon LO permet d'avoir une structure de bande plus simple et de mieux identifier les états impliqués dans le mélange de fréquences.

3.4 Conclusion et perspectives

Nous avons montré dans ce chapitre des interactions non-linéaires entre une excitation résonante et le champ THz d'un LCQ. Ce dispositif réalise un convertisseur tout-optique utilisant un montage compact au moyen d'un LCQ. La zone active du LCQ a servi de milieu non-linéaire pour convertir des photons THz du LCQ sur une porteuse proche-IR externe. Grâce au fort champ intracavité du LCQ et aux non-linéarités résonantes, on obtient des efficacités de 0.13 %, proches des expériences réalisées avec des lasers à électron libre.

La variation de la longueur d'onde d'excitation a permis de montrer que le mécanisme non-linéaire est résonant et que les pertes par absorption du faisceau généré jouaient un rôle de tout premier plan. Une géométrie en réflexion où toute l'interaction se fait dans une section courte permet de limiter les effets de l'absorption.

Enfin, pour la première fois, la génération d'ordres supérieurs a été observée entre le champ d'un LCQ et une pompe proche-IR. Cela a été possible grâce au confinement du THz apporté par le guide double-métal du LCQ et au processus résonant qui a lieu lors de ce mélange de fréquences. Les états résonants ont pu être identifiés grâce à des expériences de micro-photoluminescence. Deux processus sont envisageables pour la génération de ces ordres supérieurs ($\chi^{(3)}$ direct ou cascade de $\chi^{(2)}$). Une étude théorique approfondie pour calculer les deux susceptibilités à partir de la structure de bande permettrait de trancher entre ces deux mécanismes. La génération de ces ordres supérieurs montre encore une fois que le champ THz à l'intérieur de la cavité est très intense et que notre montage expérimental permet de sonder l'interaction d'un champ THz fort avec la matière dans un LCQ.

Perspectives

Deux axes principaux peuvent être envisagés pour les perspectives de ce travail à partir des résultats obtenus : tout d'abord améliorer l'efficacité du mélange de fréquences et ensuite travailler sur des systèmes fonctionnant à température ambiante.

Pour augmenter l'efficacité du mélange d'ondes, il y a plusieurs voies à explorer. Une première stratégie serait de s'affranchir partiellement de l'absorption pour le faisceau généré. Cela permettrait d'avoir un processus doublement résonant plus efficace. Dans la section 3.2, nous avons montré une première étape dans la réalisation d'un mélange de fréquences doublement résonant. Les échantillons ont besoin d'être mieux adaptés à l'expérience comme nous l'avons suggéré. Ces échantillons devraient être particulièrement adaptés pour générer des ordres supérieurs plus élevés.

Nous avons utilisé pour l'instant uniquement des LCQ dessinés pour avoir de bonnes performances pour émettre dans le THz. Il n'y avait pas de dessins spécifiques de la structure de bande pour exalter les résonances interbandes. Il est envisageable de modifier la structure à cascade en ajoutant des puits passifs pour le fonctionnement du LCQ dans le THz mais qui entrent en jeu dans la génération de la différence de fréquences.

Il serait intéressant d'avoir un montage expérimental fibré (mis à part le couplage dans le LCQ). Il serait alors plus facile de filtrer spatialement les fréquences qui nous intéressent. De plus, il existe des lasers fibré à largeur spectrale fine qui permettrait d'exciter plus facilement, en faisant varier la longueur

d'onde, les résonances des non-linéarités optiques.

Un des problèmes majeurs de ce convertisseur est qu'il utilise un LCQ THz en GaAs qui ne fonctionne pour l'instant qu'à température cryogénique. Nous avons observé le mélange de fréquences jusqu'à 125 K, ce qui correspondait à la température maximale du LCQ utilisé. Les températures records des LCQ THz approchent les 200 K ce qui est encore trop bas pour les modules Peltier thermoélectriques. Comme décrit dans la section sur l'état de l'art, des équipes génèrent à température ambiante des puissances intéressantes dans le THz à partir de non-linéarités dans des lasers à cascade moyen infrarouge. On peut envisager d'utiliser ces sources pour faire du mélange d'ondes entre ces photons THz générés et une pompe optique proche-IR.

Les résultats exposés dans ce chapitre montrent que l'interaction non-linéaire résonante est indépendante des conditions d'accord de phase et de l'énergie d'émission du laser à cascade quantique. Partant de ce constat, il est intéressant de transposer les expériences de mélanges d'ondes aux LCQ émettant dans le moyen infrarouge qui sont plus matures dans les dessins et qui fonctionnent à température ambiante. Comme les rubans des LCQ MIR ont une surface d'interaction plus petite, le mode est plus confiné pour ces lasers et l'efficacité de mélange de fréquences entre NIR et MIR devrait être plus grande d'après la formule de l'efficacité de la conversion de fréquences. Nous verrons dans le chapitre suivant qu'on peut réaliser une telle interaction non-linéaire.

CHAPITRE 4

Mélange d'ondes dans un LCQ moyen infrarouge

Les lasers à cascade quantique dans le moyen infrarouge (MIR) bénéficient d'une maturité supplémentaire par rapport aux LCQ THz. C'est dans cette gamme (3 μm − 25 μm) de fréquences qu'ils ont d'abord été mis en évidence [Faist 1994]. De plus en plus, ils sont utilisés pour des applications dans l'industrie et pour la détection de particules chimiques [Curl 2010].

Les développements ont été plus nombreux que pour les LCQ THz et les dispositifs actuels sont capables d'émettre plusieurs centaines de mW à température ambiante [Bai 2010]. Cette propriété fait des LCQ MIR de bons candidats pour réaliser des expériences d'optique non-linéaire à l'intérieur de leur cavité. Les résultats acquis sur les LCQ THz au chapitre 3 peuvent être transposés pour effectuer du mélange d'ondes avec des LCQ moyen infrarouge. L'excitation résonante qui permet d'exalter la susceptibilité $\chi^{(2)}$ peut être adaptée à la structure de bande des LCQ MIR pour avoir un mélange de fréquences efficace. La formule de l'efficacité de la conversion de fréquences est donnée par (voir chapitre 2) :

$$\eta = \frac{P_{\text{out}}}{P_{\text{NIR}}} = \frac{32\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 P_{\text{LCQ}}}{\epsilon_0 n_{\text{NIR}} n_{\text{LCQ}} n_{\text{out}} c \lambda_{\text{out}}^2 S \alpha_p^2} \,. \tag{4.1}$$

Avec la puissance plus importante de ces LCQ (comparés aux LCQ THz) et la section, S, généralement plus petite du ruban, les performances de la conversion de fréquences devraient être meilleures. L'efficacité devrait augmenter d'un ordre de grandeur si on ne considère que la réduction de la surface de la section.

Le mélange de fréquences entre une porteuse proche infrarouge et une onde dans le moyen infrarouge aurait des applications différentes de celles présentées dans le chapitre précédent. En effet l'énergie des photons moyen infrarouges n'est plus négligeable devant l'énergie d'excitation, et la porteuse va changer sensiblement de longueur d'onde. Le mélange d'ondes permettrait de changer de bande de télécommunication, passer par exemple de la bande à 1.55 μm à celle à 1.3 μm en réalisant une somme de fréquences avec un LCQ émettant à 8 μm.

Nous présentons dans ce chapitre, des résultats réalisés à partir d'un LCQ composé de puits GaAs/AlGaAs. Bien que ces LCQ ne soient pas les plus performants (comparés au LCQ sur InP) pour le MIR, ils présentent l'avantage d'avoir à peu près la même bande interdite effective que celle des LCQ

THz utilisés précédemment. Cette similarité simplifie d'une part la réalisation expérimentale et d'autre part la compréhension des phénomènes observés. Nous pourrons mettre en relation les résultats obtenus avec ceux des chapitres précédents. Nous décrirons tout d'abord l'échantillon utilisé, nous verrons comment il faut adapter le guide d'onde des LCQ MIR pour le mélange d'ondes puis nous détaillerons les caractéristiques du laser. Nous présenterons les premiers résultats de conversion de fréquences dans un LCQ MIR et nous les comparerons aux résultats obtenus dans les LCQ THz. Enfin nous terminerons par des perspectives sur l'utilisation de LCQ basés sur d'autres matériaux (alliage InGaAs) pour réaliser un mélange de fréquences efficace à température ambiante.

4.1 Description du laser L964

Les premiers LCQ MIR composés de puits AlGaAs/GaAs ont été réalisés en 1998 [Sirtori 1998]. Les transitions intersousbandes dans le MIR sont plus grandes d'un ordre de grandeur en énergie par rapport au THz. Pour cette raison, les puits sont plus étroits et les champs appliqués plus intenses pour avoir des niveaux plus écartés dans la bande de conduction. Cela a aussi pour effet de plus confiner l'état fondamental des puits. Du fait de ce confinement, les excitations optiques résonantes interbandes seront à des énergies plus élevées. Les spectres de PL illustrent cette différence : l'émission de photoluminescence issue de la zone active est décalée vers le bleu d'une centaine de meV par rapport aux LCQ THz (voir annexe C).

4.1.1 Structure de Bande

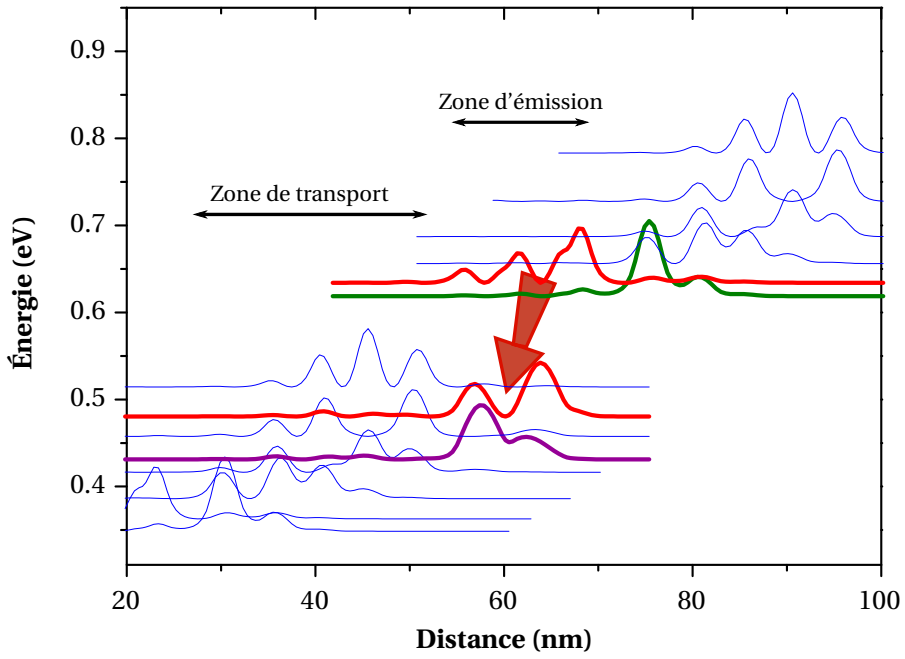


FIGURE 4.1 – Structure de bande simulée de l'échantillon L964. La flèche orange représente la transition laser entre les deux états représentés en rouge ($\lambda = 9.25\,\mu m$), l'état bas est dépeuplé par un phonon résonant sur l'état violet. En vert est représenté l'état d'injection, en bleu les états des mini-bandes.

L'échantillon étudié provient d'un dessin présenté dans la référence [Page 2001] et émet à 9.25 µm. La structure de bande est simulée sur la figure 4.1 où sont représentés les modules carrés des fonctions

d'onde dans le potentiel de la structure. Les barrières de potentiel sont plus hautes que pour les structures dessinées pour le THz, elles ont une fraction en aluminium de 45 %.

On peut diviser le dessin du LCQ en deux parties distinctes : une destinée au transport électronique, constituée de cinq puits quantiques d'environ 3 nm de large et une deuxième où a lieu la transition optique, appelée zone d'émission [1]. Les puits de la région active sont plus larges (5.4 nm et 4.3 nm). C'est à cet endroit que les transitions interbandes sont les plus basses en énergie. Avant ces deux puits larges, un puits étroit de 1.9 nm sert de puits d'injection (état en vert sur la figure 4.1) pour peupler l'état haut du laser (en rouge). L'état bas se dépeuple par l'émission d'un phonon résonant avec un état séparé de 36 meV (état en violet). Le champ utilisé dans la simulation est de 60 kV/cm pour aligner la structure. Pour résumer, la séquence d'une période de la croissance est : **4.6**/1.9/**1.1**/5.4/**1.1**/4.8/**2.8**/3.4/**1.7**/3.0/**1.8***/2.8*/**2.0***/3.0*/**2.6**/3.0 ; avec en gras la taille des barrières et en écriture normale les puits. Les puits et les barrières notés d'une astérisque présentent un dopage par silicium (8×10^{17} cm^{-3} pour les puits, 4.4×10^{17} cm^{-3} pour les barrières). La région active est composée de 30 périodes.

4.1.2 Spécificité et modification du guide d'onde

Une des premières étapes est de s'assurer que le LCQ peut guider le faisceau pompe ainsi que le faisceau généré. Comme on l'a vu dans le chapitre 1, le type de guide d'onde est très différent pour les LCQ THz (guide plasmonique) et MIR (guide diélectrique). Pour une étude complète des guides d'onde pour les LCQ en GaAs dans le MIR, on pourra se reporter à la thèse de Jean-Yves Bengloan [Bengloan 2005]. Pour les LCQ MIR, la longueur d'onde d'émission est suffisamment courte pour pouvoir utiliser des guides renforcés par plasmons (à la différence des guides THz où le guide d'onde est basé sur un plasmon de surface). Le principe est d'utiliser des couches de GaAs très dopées ($\sim 3\times10^{18}$ cm^{-3}) pour confiner le mode optique. Le dopage sert à approcher la fréquence plasma du semiconducteur de la fréquence d'émission du LCQ et ainsi diminuer l'indice de cette couche (notée C1 par la suite). L'inconvénient de ces couches très dopées est qu'elles induisent de fortes pertes provenant de l'absorption par porteurs libres. Pour parer ce problème, une couche de GaAs peu dopée (appelée couche tampon) de quelques microns est ajoutée entre la zone active et la couche dopée. Cela a l'avantage de limiter le recouvrement du mode optique avec les couches où les pertes sont importantes.

Malheureusement, comme nous allons le voir sur les simulations présentées dans le paragraphe suivant, ces guides ne sont pas adaptés pour guider le faisceau d'excitation proche-IR dans la zone active et nécessitent d'être modifiés.

Simulation du guide conventionnel

La figure 4.2 représente les profils d'intensité normalisée des faisceaux guidés dans le domaine MIR (9.3 μm) et proche-IR (900 nm). Concernant le MIR, le mode est bien guidé dans la région active avec un recouvrement de $\Gamma = 32$ % et les pertes sont raisonnables ($\alpha = 15$ cm^{-1}). Ces deux paramètres (recouvrement et pertes) sont primordiaux pour caractériser la qualité d'un guide. Pour les quantifier, on utilise le facteur de mérite défini au chapitre 1 comme le rapport de ces deux quantités : $\chi = \dfrac{\Gamma}{\alpha}$. Pour ce guide conventionnel, on obtient un facteur de mérite de 2.1.

1. On peut aussi parler de région ou zone active mais cela entraine une ambiguïté car ces termes peuvent aussi désigner plus globalement la partie de la croissance où il y a du gain (c'est-à-dire l'ensemble des puits quantiques).

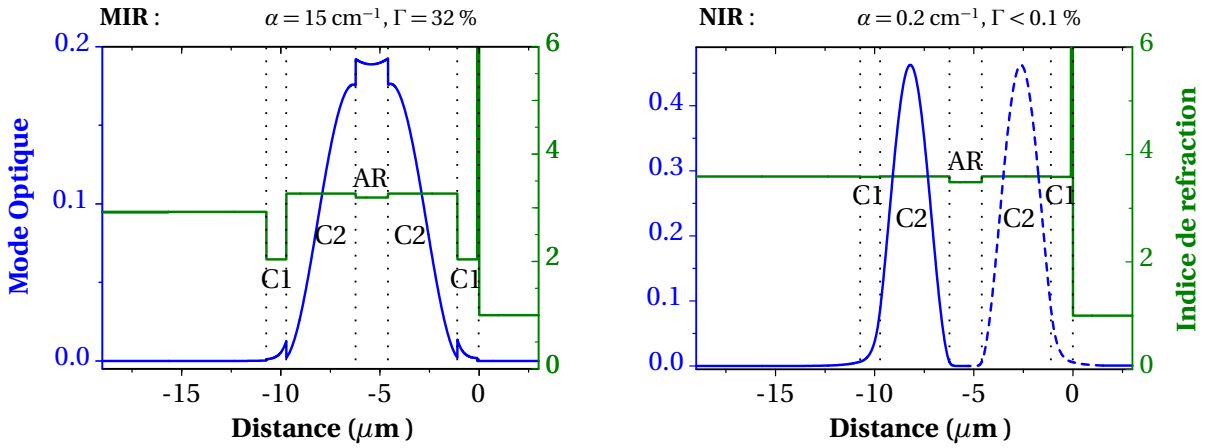


FIGURE 4.2 – Profil d'intensité du mode optique (bleu) et indice de réfraction (vert) dans le domaine du MIR ($\lambda = 9.3$ µm, à gauche) et du NIR ($\lambda = 900$ nm, à droite) d'un guide GaAs classique. Les étiquettes C1 et C2 désignent les différentes gaines et AR montre la région active (plus de détails dans le texte).

Le problème qui apparaît sur le graphique de droite avec ce type de guide est que l'indice optique des zones tampons (notées C2) dans le proche-IR est plus élevé que la région active (AR) qui a une fraction d'aluminium de 17 % en moyenne. Ce sont ces couches qui guideront donc le faisceau de pompe NIR. Le mode proche-IR représenté sur le graphique est la superposition des modes solutions dans chacune des deux couches. Le recouvrement spatial entre la zone active et la zone de confinement est alors nul. Dans ce cas, le mélange de fréquences est impossible [Madéo 2012] car le recouvrement avec les puits quantiques est nul.

Les paramètres utilisés pour la taille des différentes couches sont résumés dans le tableau 4.1.

	C1	C2	AR
épaisseur (μm)	1	3.5	1.63
dopage (cm^{-3})	6e18	8e16	1.4e17
Aluminium (%)	0	0	17

TABLE 4.1 – Composition des différentes couches du guide classique GaAs

Pour éviter ce problème il est donc nécessaire de modifier la géométrie conventionnelle en ajoutant une deuxième zone tampon qui aura pour rôle de confiner le NIR dans la zone active. Cette zone est composée d'un alliage ternaire $Al_{0.25}Ga_{0.75}As$ avec un dopage similaire à la zone active.

Simulation du guide renforcé par une couche d'AlGaAs

Sur la simulation présentée sur la figure 4.3, on peut voir les profils des intensités pour les mêmes longueurs d'onde (9.3 µm et 900 nm) que pour le guide dit "classique". Les couches C1 et C2 ont été rétrécies et une couche (C3) d'AlGaAs a été ajoutée. L'épaisseur totale de la gaine est sensiblement la même (seulement 250 nm supplémentaires de chaque côté) pour que le temps de croissance par EJM ne soit pas trop long.

Dans le MIR, le guidage de la lumière change peu. Le facteur de mérite est même meilleur (2.4) : les

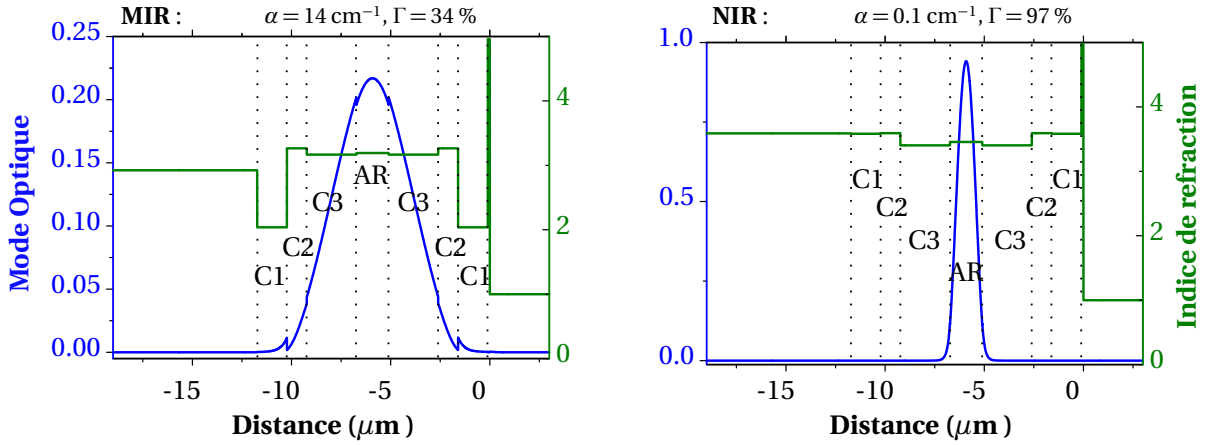


FIGURE 4.3 – Profil d'intensité du mode optique (bleu) et indice de réfraction (vert) dans le domaine du MIR (gauche) et du NIR (droite) d'un guide GaAs classique. Les étiquettes C1, C2 et C3 désignent les différentes gaines et AR montre la région active (plus de détails dans le texte).

pertes sont sensiblement plus faibles (moins de recouvrement avec la couche très dopée) et le recouvrement avec la région active est un peu meilleur (34 %).

C'est pour le faisceau NIR que le changement est radical. Le recouvrement avec la région active est presque total pour le mode fondamental (97 %). Cette région est beaucoup plus fine pour les LCQ MIR que pour les LCQ THz, la surface effective pour la réalisation du mélange de fréquences sera donc également plus faible de plus d'un ordre de grandeur.

De la même manière que pour le guide conventionnel, les paramètres utilisés pour la taille des différentes couches sont résumés dans le tableau 4.2.

	C1	C2	C3	AR
épaisseur (μm)	1.5	1	2.5	1.63
dopage (cm^{-3})	6e18	1e18	1e17	1.4e17
Aluminium (%)	0	0	25	17

TABLE 4.2 – Composition des différentes couches du guide renforcé par AlGaAs

Néanmoins, ces guides possèdent quelques désavantages par rapport aux guides classiques notamment au niveau des propriétés électriques. Comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, les couches en AlGaAs ne conduisent pas très bien le courant à basse température en raison de pièges dans la bande interdite. Ces couches ajoutent des résistances en série à la région active ce qui nécessite des tensions (et des puissances électriques) de travail plus élevées.

Les couches de ces deux guides peuvent être identifiées par des expériences de microphotoluminescence. Les résultats de ces expériences sont présentés dans l'annexe C.

4.1.3 Comparaison des performances des deux guides

Réaliser des croissances de LCQ MIR en GaAs constituaient une nouveauté pour nos collaborateurs de l'université de Leeds. Pour ces premiers essais, il a été choisi de refaire une croissance d'un échan-

tillon de référence fabriqué par Thales [Page 2001] avec un guide classique. Deux clones de cette croissance sont réalisés, l'un avec un guide classique (nommé L966) pour vérifier la qualité de la croissance et l'autre avec un guide d'AlGaAs pour comparer les deux guides. Les rubans des LCQ (10 µm de large et 1 mm de long) ont été réalisés par gravure ionique réactive assistée par un plasma (ICP) à l'université Paris-Diderot. Cette technique de gravure permet d'obtenir des flancs verticaux pour les rubans. Pour cette première fabrication, les contacts n'ont pas été recuits après la métallisation. Cette étape de recuit permet de diminuer la barrière Schottky qui apparait à l'interface GaAs/métal. On compare sur la figure 4.4, les caractéristiques tension-courant et lumière-courant à 77 K de ces trois échantillons (l'échantillon de référence, le clone (L966) de l'échantillon de référence et le clone avec un guide d'AlGaAs (L964)).

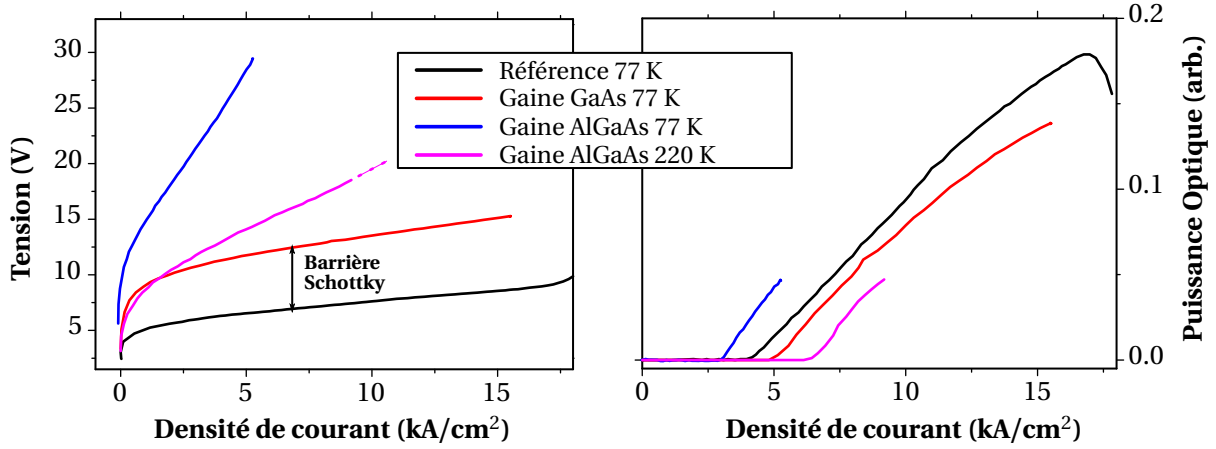


FIGURE 4.4 – Caractéristique Tension-Courant et Intensité-Courant de trois LCQ MIR.

Les lasers MIR présentent une forte résistance à basse tension formant un coude dans la caractéristique tension-courant. Lorsque la structure du LCQ MIR n'est pas alignée, à basse tension, le courant est faible car les niveaux d'un puits à l'autre sont trop éloignés en énergie pour qu'il y ait un couplage tunnel. D'autre part, la présence d'une barrière Schottky au niveau des contacts ajoute une tension supplémentaire à appliquer sur la structure. Cette tension a été diminuée sur l'échantillon de référence où un recuit des contacts a été effectué ; c'est pourquoi il y a un décalage de tension avec l'échantillon L966 (mais les pentes sont les mêmes à plus forts courants). Sur la courbe d'intensité lumineuse, on voit que les performances du nouvel échantillon sont un petit peu moindres car la densité seuil de courant est plus importante de 17 % (la puissance optique entre les lasers est arbitraire et difficilement comparable (détecteurs différents) et la largeur des rubans n'est pas exactement la même entre nos échantillons (10 µm) et la référence (14 µm).). Pour l'échantillon L964 avec les couches d'AlGaAs, on remarque que la résistance différentielle est très grande après le coude. En conséquence, il est nécessaire d'appliquer de fortes puissances électriques sur le LCQ, augmentant ainsi les risques de destruction de l'échantillon. À basse température, la conductivité de la gaine d'AlGaAs n'est pas bonne car l'alliage possède de nombreux pièges [Sirtori 1998]. Ces pièges s'ionisent à plus haute température ce qui diminue la résistance différentielle. Cela apparaît clairement en comparant les caractéristiques à 77 K et 220 K. C'est pourquoi, la température de fonctionnement sera fixé au minimum à 210 K pour la suite des expériences, même si le courant de seuil est un peu plus élevé. À 77 K, le seuil du laser L964 est 22 % plus faible que celui de l'échantillon de référence. Cela est dû au facteur de mérite plus grand du guide avec les couches en alliage AlGaAs.

La densité de courant étant importante, les rapports cycliques utilisés sont très faibles (de l'ordre du pourcent) pour éviter que la structure ne chauffe trop et soit endommagée. Pour diminuer la résistance différentielle, le dessin peut être modifié en augmentant le dopage de la couche d'AlGaAs pour avoir une meilleure mobilité dans cette couche, en contrepartie, les pertes du guide seront un peu plus grandes. On peut également changer l'interface entre la zone active et la gaine d'AlGaAs en faisant un gradient de concentration d'aluminium pour que l'interface soit moins abrupte.

4.1.4 Caractéristique Lumière-Tension-Courant

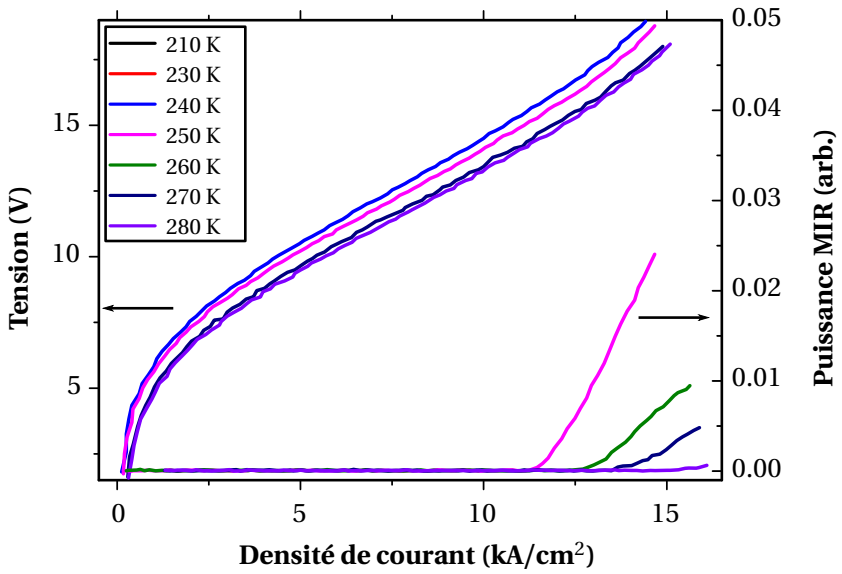


FIGURE 4.5 – Caractéristique LVI de l'échantillon L964 pour différentes températures de fonctionnement. Un ruban de 10 µm de large et d' 1 mm de long est alimenté par des impulsions de 500 ns.

La figure 4.5 représente la caractéristique LVI pour différentes températures. Ces caractéristiques sont mesurées pour des rapports cycliques faibles de 1 % à 20 kHz (impulsions de 500 ns). La durée des impulsions électriques est limitée car la puissance électrique appliquée est importante. En effet, cela implique un échauffement rapide de l'échantillon et une dégradation des performances du LCQ à la fin de l'impulsion si cette dernière est trop longue. Nous verrons plus tard que cette courte durée des impulsions complique le dispositif expérimental car il faut bien synchroniser les impulsions lumineuses de la pompe proche-IR et les impulsions de l'alimentation du LCQ.

Lorsqu'on élève la température, la densité de courant de seuil augmente car l'inversion de population est plus difficile à maintenir. D'une part, le niveau bas du laser est plus difficile à vider car il y a un repeuplement thermique à partir de niveaux plus bas en énergie. D'autre part, des électrons du niveau haut peuvent absorber des phonons et aller vers le continuum. On observe un effet laser jusqu'à 280 K. La résistance différentielle diminue avec la température, ce qui permet d'atteindre des courants plus élevés sans risquer d'endommager l'échantillon. Comme expliqué précédemment, l'augmentation de la température augmente la mobilité dans les couches d'AlGaAs car les pièges sont moins efficaces à plus haute température ce qui a pour effet de diminuer la résistance.

La durée des impulsions électriques utilisées pour ces caractéristiques constitue un optimum pour le fonctionnement du laser et pour les expériences de mélange d'ondes. Les impulsions sont suffisam-

ment courtes pour qu'il n'y ait pas trop d'échauffement de l'échantillon et assez longues pour que la synchronisation entre les impulsions lumineuse et électrique soit réalisable facilement (voir chapitre 3).

4.2 Mélange de fréquences dans le domaine moyen-infrarouge

Dans cette section, nous ferons une description des premiers résultats obtenus avec un LCQ MIR. Dans la section suivante, nous nous appuierons sur la comparaison avec les mesures obtenues pour le THz pour expliquer ces résultats.

Le montage expérimental est rigoureusement le même que dans le chapitre précédent. La seule différence pratique est le faible rapport cyclique de l'alimentation du LCQ et la courte durée des impulsions électriques utilisées (~ 500 ns). Du fait de ces deux contraintes, il faut synchroniser avec précision le modulateur acousto-optique et le générateur servant à alimenter le LCQ. Les impulsions lumineuses doivent être couplées dans le LCQ quand ce dernier est alimenté. De plus, comme le rapport cyclique est faible, il faudra intégrer longtemps sur la caméra CCD (150 s dans le cas général, parfois un peu plus si on désire un rapport signal à bruit meilleur. Dans le meilleur des cas, le signal est observé en intégrant moins de 2 secondes). Comme le signal est encore difficile à observer (nécessité d'intégrer longtemps), les résultats présentés restent assez qualitatifs.

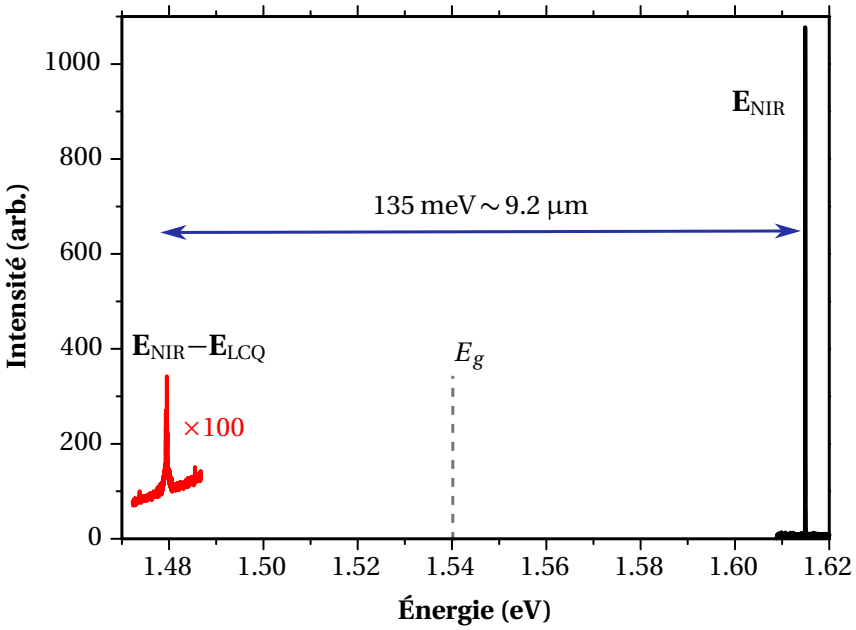


FIGURE 4.6 – Spectre de la raie latérale et du faisceau de pompe à $E_{NIR} = 1.615$ eV ($T = 210$ K). Le LCQ est alimenté avec une densité de courant de 13 kA/cm^2. La bande latérale est séparée de 135 meV, ce qui correspond à la longueur d'onde d'émission du LCQ.

La figure 4.6 représente un spectre typique à 210 K, obtenu quand le LCQ est porté au dessus du seuil. Le spectre de la raie latérale est intégré 100 fois plus longtemps que celui de la pompe. Du fait de ce temps de pose plus important, on détecte un fond lumineux qui provient d'une faible diffusion du faisceau dans le spectromètre et de la luminescence interbande des différentes couches de la croissance (région active et autres gaines, voir annexe C). La luminescence détectée augmente s'il y a une mauvaise

synchronisation entre les impulsions électrique et lumineuse, c'est-à-dire si le faisceau pompe excite l'échantillon quand celui-ci n'a pas de champ électrique appliqué à ces contacts. Pour limiter ce fond, la pompe est polarisée en TM et un polariseur est placé devant le spectromètre afin de filtrer la majeure partie de la luminescence qui est polarisée TE.

Les observations sont similaires aux résultats obtenus avec les LCQ THz. Quand le LCQ MIR fonctionne, une raie latérale est générée vers le rouge et est séparée du faisceau pompe de l'énergie du photon du LCQ (135 meV). Les deux faisceaux sont donc assez éloignés spectralement et on ne peut pas observer en même temps les deux énergies avec les réseaux à notre disposition. La température de fonctionnement a été grandement augmentée par rapport aux expériences avec les LCQ THz. En effet, les spectres présentés ont été mesurés à une température de 210 K contre 10 K pour le mélange d'ondes dans le THz.

L'efficacité est évaluée à $\eta \simeq \frac{P_{\text{diff}}}{P_{\text{NIR}}} \simeq 10^{-5}$ % en mesurant la transmission de la pompe dans le domaine de transparence. Cette valeur est relativement faible et nous reviendrons dans la section suivante sur l'origine de cette faible efficacité par rapport aux efficacités de conversion obtenues dans le domaine THz. La transmission de la pompe est déterminée avec une plus grande incertitude que dans le chapitre précédent. En effet, il est difficile de garder le même alignement pour la pompe quand celle ci est en résonance (lors du mélange) et lorsqu'elle est dans le domaine de transparence. Cela vient du modulateur acousto-optique, dont la déviation du premier ordre varie légèrement avec la longueur d'onde. L'alignement varie donc quand la longueur d'onde du faisceau de pompe change. Cette variation était négligeable pour les expériences dans le THz car la longueur d'onde du faisceau pompe variait au maximum d'une vingtaine de nanomètres. Dans le cas du MIR, il y a plus de 70 nm entre la pompe et le faisceau généré dans le domaine de transparence, et l'alignement ne sera pas le même entre ces deux longueurs d'onde (à résonance et en transparence). La puissance de ces LCQ en GaAs n'est pas très grande ($\sim$ 30 mW à l'intérieur de la cavité à 210 K) ce qui limite également l'efficacité, de même que les faibles rapports cycliques qui compliquent l'optimisation des mesures expérimentales.

A partir de cette valeur d'efficacité, on déduit que la susceptibilité du système vaut $\chi^{(2)} \sim 300$ pm/V en considérant des pertes de 1000 cm^{-1} et une condition d'accord de phase ($\Delta k = 0$, voir expression 2.12). Nous retrouvons une valeur un peu supérieure à la susceptibilité du GaAs massif. On s'attend à une valeur plus grande car le mélange d'ondes est effectué de manière résonante. En effet, nous montrerons en étudiant la dépendance de l'efficacité avec l'énergie d'excitation qu'il y a résonance entre le faisceau de pompe et les transitions interbandes. Ces mesures sont les premières réalisées sur des LCQ MIR et demandent d'être optimisées pour pouvoir confirmer cette valeur de la susceptibilité non-linéaire.

Comme expliqué en introduction, les applications liées au mélange de fréquences ne sont plus tout à fait les mêmes que pour le décalage de fréquence démontré avec les LCQ THz. Cependant la technique d'*up-conversion* est toujours utile pour réaliser le spectre du laser MIR grâce aux techniques matures du proche-IR. En effectuant un zoom sur la bande latérale, on peut observer les modes longitudinaux du LCQ MIR (voir figure 4.7). L'écart entre deux modes ($\sim$ 0.2 meV) correspond à l'espacement obtenu lors de l'acquisition des spectres par un FTIR commercial.

4.2.1 Effet non-linéaire d'ordre 2 - Dépendance avec la puissance MIR

De la même manière qu'au chapitre 3, nous étudions la variation de l'intensité du faisceau généré en fonction de la puissance du faisceau MIR. Pour un effet non-linéaire du second ordre, la raie latérale a

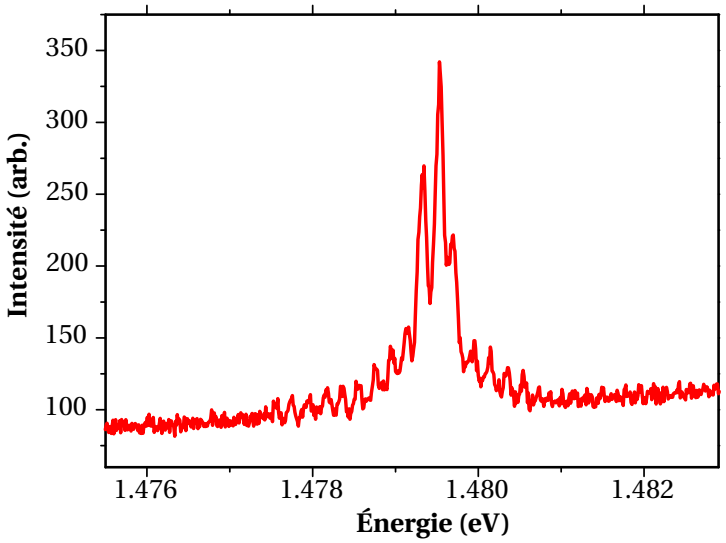


FIGURE 4.7 – Zoom du spectre de la raie latérale présentée sur la figure 4.6. Les modes sont séparés de 0.17 meV soit 48 GHz

une intensité proportionnelle à la puissance du LCQ (voir équation 2.11) et donc à la densité de courant appliquée. La figure 4.8 représente le spectre de la raie latérale pour différents courants appliqués. La raie générée par le mélange de fréquences commence à devenir visible avec un rapport signal à bruit correct pour une densité de courant d'environ 8 kA/cm^2. Cette densité de courant est légèrement supérieure à la densité seuil. Comme l'efficacité du mélange d'ondes est relativement faible, notre système est à la limite de détection pour des puissances optiques trop faibles du LCQ et nous ne pouvons détecter les photons générés (intégrer plus longtemps n'est pas forcément une solution car la stabilité mécanique de notre montage dans le temps est limitée). Lorsque la densité de courant augmente, l'intensité de la raie générée augmente comme attendu et nous observons des modes supplémentaires. Ces modes apparaissent car le gain s'élargit et donne naissance à l'émission de fréquences latérales pour lesquelles le gain peut saturer aux pertes.

L'intensité intégrée des spectres en fonction de la densité de courant est tracée sur la figure 4.9. Comme attendu pour un processus d'optique non-linéaire du second ordre, l'intensité varie linéairement avec la puissance du laser MIR. Cette dépendance n'est pas parfaite sur notre mesure. On observe deux sauts dans la courbe à 11.5 kA/cm^2 et 13 kA/cm^2. Ces sauts sont dus à la modification de l'alignement du cryostat au cours de la mesure. Pour garder une constance entre les différents courants, les mesures sont prises les unes après les autres sans ré-alignement. Il est difficile de garder une stabilité du cryostat pour une durée aussi longue ($\sim$ 25 minutes). La dépendance linéaire de la raie latérale avec le faisceau MIR montre la similitude des mécanismes du mélange d'ondes résonant pour le THz et le MIR.

4.2.2 Étude en température

À des températures plus élevées, on a vu au paragraphe 4.1.4, que la puissance optique du LCQ était plus faible et que le courant de seuil était plus élevé. Pour mesurer la génération de différence de fréquences à des températures plus hautes, il faudra donc alimenter le LCQ avec des courants plus intenses et intégrer plus longtemps sur la caméra CCD. Pour ces expériences en température, nous utiliserons un

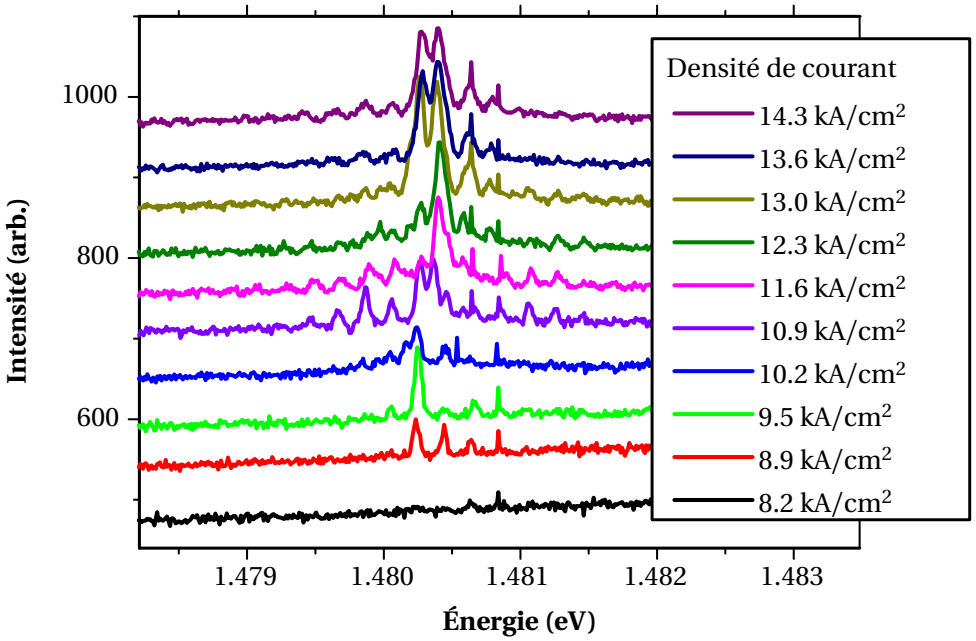


FIGURE 4.8 – Spectres de la raie latérale pour différentes densités de courant.

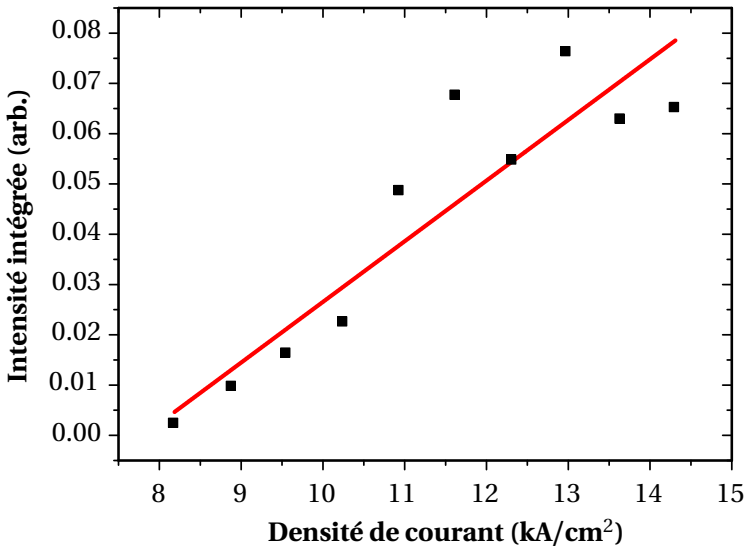


FIGURE 4.9 – Spectres intégrés de la raie latérale en fonction de la densité de courant,en rouge l'ajustement linéaire.

échantillon issu de la même croissance avec les mêmes procédés de fabrication mais avec un ruban deux fois plus long soit 2 mm (la largeur reste la même). Cet échantillon est plus puissant et permet d'avoir une action laser jusqu'à 285 K [2].

Avec la température, l'énergie de la bande interdite diminue. Pour garder la même résonance interbande, il faut augmenter légèrement la longueur d'onde du faisceau de pompe en suivant la même

2. Ce laser demande plus de courant pour fonctionner : il faut par exemple fournir un courant de 3 A à 285 K, ce qui est limitant avec notre source électrique usuelle. C'est pourquoi un LCQ plus court a été utilisé pour toutes les autres mesures.

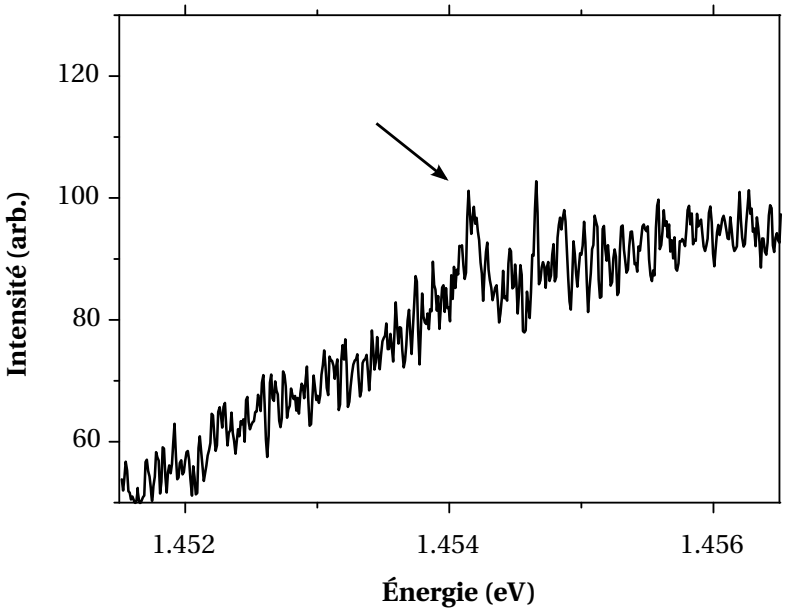


FIGURE 4.10 – Spectres de la raie latérale pour la température maximale (275 K) avec une excitation à $E_{\mathrm{NIR}} = 1.589$ eV. Le LCQ est alimenté à 15 kA/cm^2. Le spectre est intégré sur 152 secondes.

loi empirique qui donne l'énergie du gap du GaAs en fonction de la température ($E_g = 1.519 - 5.405 \times 10^{-4} T^2/(T+204)$ avec T la température) [Blakemore 1982]. À 275 K, Le signal détecté sur la caméra est faible par rapport au bruit (voir figure 4.10). Cependant le pic détecté se situe exactement à l'énergie attendue et disparaît lors de l'extinction du LCQ, il correspond donc à la génération du mélange de fréquences. Il manque donc encore une vingtaine de degrés pour atteindre la génération du mélange d'ondes à température ambiante. Les progrès majeurs pour y arriver sont à chercher du côté de l'optimisation du LCQ MIR car comme le montre ce résultat, le processus non-linéaire ne semble pas dépendre de la température autrement que par la puissance du LCQ.

Une des motivations pour réaliser le mélange de fréquences dans les LCQ MIR était de pouvoir travailler à température ambiante. De légères modifications du guide (gradient de la portion d'aluminium dans les couches de la gaine par exemple), un recuit des contacts lors de la mise en forme des rubans laser et un nombre de périodes plus important devraient permettre de faire fonctionner les lasers sans avoir recours à un cryostat. Le refroidissement par des modules Peltier de l'échantillon permettrait d'envisager une monture plus stable pour le LCQ. Ceci serait bénéfique car la petite taille de la section du ruban laser rend la stabilité de l'alignement critique.

4.2.3 Mélange d'ondes résonant - Dépendance en longueur d'onde d'excitation

On fait varier la longueur d'onde du faisceau pompe pour étudier les processus résonants d'optique non-linéaire. Les résultats des spectres obtenus pour différentes énergies d'excitation sont présentés sur la figure 4.11. Le graphique est difficile à lire en raison de la luminescence parasite provenant du substrat des couches du guide d'onde. Cette luminescence varie sur la plage que l'on décrit et s'ajoute à la raie latérale générée. Une vision plus synthétique est représentée plus loin sur la figure 4.12, où l'aire des spectres (à laquelle a été soustrait le fond de luminescence) est tracée en fonction de l'énergie de la pompe excitatrice. L'aire des spectres est proportionnelle à l'efficacité du mélange d'ondes. La raie

latérale est détectée sur une plage d'excitation de l'ordre de 100 meV soit une gamme beaucoup plus large que pour les expériences réalisées avec un LCQ THz. Comme on l'a vu au chapitre précédent, la largeur de cette plage est de l'ordre de l'énergie des photons émis par le LCQ. Les énergies d'excitation les plus basses pour lesquelles nous observons le mélange d'ondes, correspondent à l'énergie d'émission de photoluminescence (voir annexe C), c'est-à-dire au début de l'absorption interbande. La figure 4.13

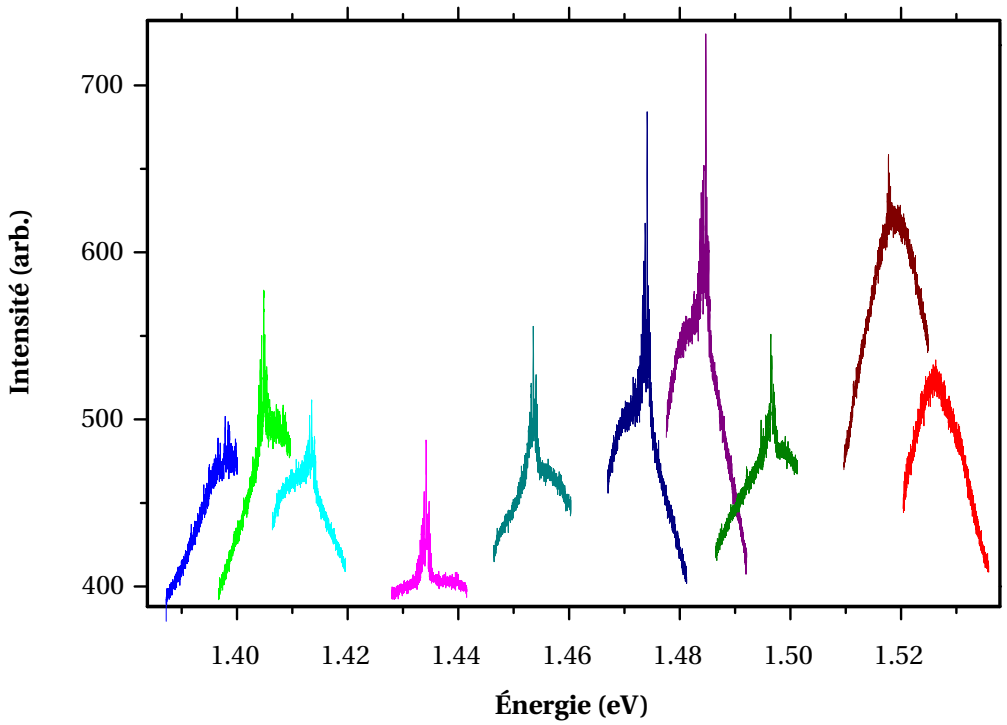


FIGURE 4.11 – Spectres de la raie latérale pour différentes énergies de pompe avec la même puissance d'entrée (2 mW crête). La température est de 210 K. Le LCQ est alimenté à 12.4 kA/cm^2.

présente la structure de bande de l'échantillon L964 avec en plus les états de trous légers de la bande de valence. Le maximum de la courbe d'efficacité correspond à l'énergie de transition interbande entre les trous légers (LH1 et LH2) et les états électroniques (E1 et E2) dans la bande de conduction pour les puits larges de la zone d'émission (en trait gras sur la figure 4.13). Les recouvrements entre ces états sont significatifs (voir figure 4.12) par rapport aux autres transitions.

On peut ajuster les intensités de la raie latérale par une courbe montrant la résonance de l'interaction. L'ajustement de ces points par une courbe lorentzienne centrée sur le maximum à 1.62 eV ne convient pas tout à fait car les variations ne sont pas symétriques de part et d'autre de ce point. En effet, lorsque l'énergie d'excitation est supérieure à 1.62 eV, la raie latérale commence à être absorbée par la région active. Pour prendre en compte cette absorption, nous ajustons les valeurs de l'intensité par une courbe en deux parties. Aux basses énergies, les valeurs sont ajustées par une courbe lorentzienne et à haute énergie par une exponentielle décroissante. Cela traduit deux comportements distincts et illustre l'importance de l'absorption dans le mélange d'ondes résonant en transmission. Pour les faibles énergies, où la différence de fréquences est dans un domaine de transparence de la région active, seule la résonance du faisceau de pompe avec les transitions interbandes compte et cela donne une courbe en cloche pour l'efficacité. Lorsque la raie générée se rapproche de l'énergie de la bande interdite, alors l'absorption devient importante pour la propagation de ce faisceau et il devient nécessaire de la prendre en compte, d'où un ajustement par une courbe exponentielle décroissante. Nous reviendrons sur les para-

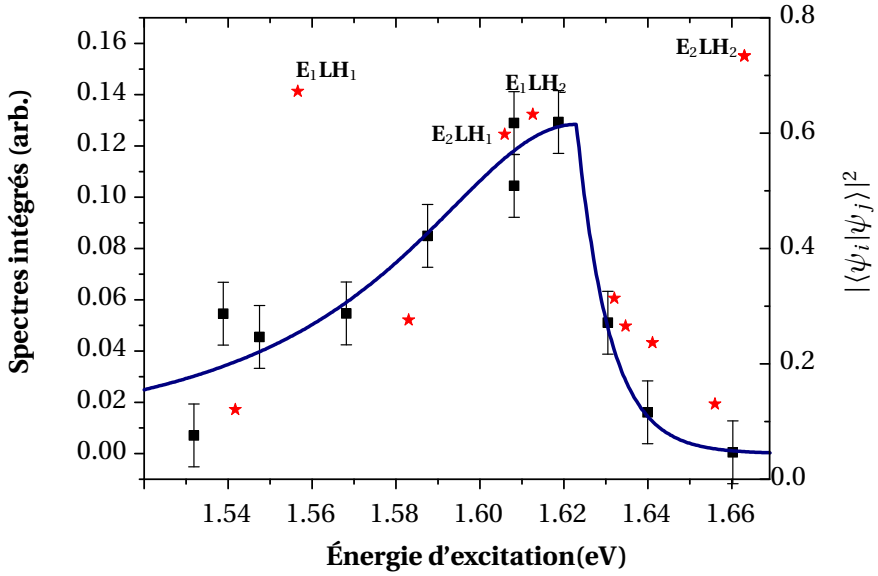


FIGURE 4.12 – Spectres intégrés de la raie latérale en fonction de l'énergie d'excitation (carré noir, les barres d'erreurs correspondent à la variation standard) et recouvrement entre les fonctions d'onde des états de la bande de conduction et des trous légers de la bande de valence (étoiles rouges). Le trait plein bleu est un ajustement lorentzien à basse énergie et exponentiel décroissant à haute énergie.

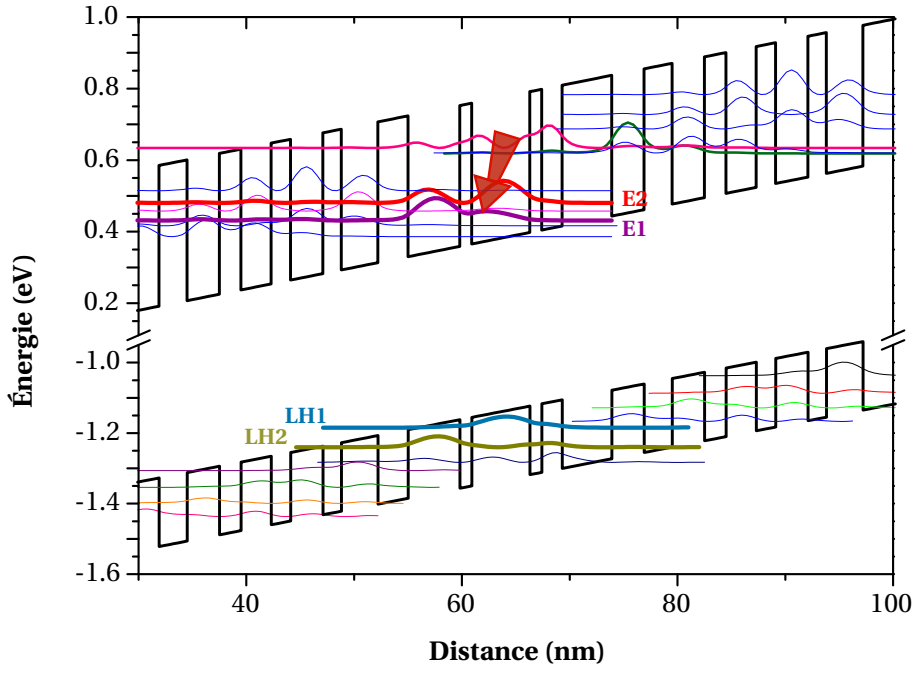


FIGURE 4.13 – Structure de bande simulée de l'échantillon L964 pour un champ appliqué de 60 kV/cm. Seules les fonctions d'onde des trous légers sont représentées dans la bande de valence. En gras sont représentés les états dont les transitions interbandes ont les recouvrements les plus grands.

mètres de cet ajustement dans la section suivante sur la comparaison des mélanges de fréquences dans les domaines THz et MIR.

4.3 Comparaison avec le mélange de fréquences dans le domaine THz

Nous avons vu dans ce chapitre, que le mécanisme résonant d'optique non-linéaire était semblable pour les expériences dans les LCQ THz et MIR (caractère résonant avec la bande interdite effective de la région active, dépendance linéaire avec le courant appliqué au LCQ ...). Cependant, au-delà de ces considérations qualitatives, les valeurs d'efficacités ou de largeurs de résonance diffèrent largement entre les deux cas.

4.3.1 Efficacité

Bien que les mesures ne soient pas complètement optimisées, la valeur de l'efficacité pour le mélange entre un photon moyen-IR et un photon proche-IR est plus faible que pour le mélange THz/NIR. Dans les deux cas, l'interaction non-linéaire est issue d'un processus simplement résonant. Cependant, comme l'énergie du photon est beaucoup plus petite dans le THz que dans le MIR, le faisceau généré est plus proche d'un processus doublement résonant dans le cas THz. On parle alors de quasi-double résonance dans le cas du domaine THz, car le désaccord entre l'énergie du faisceau de la différence de fréquences (E_{diff}) et l'énergie des transitions interbandes (E_{IB}) est faible (de l'ordre du photon du LCQ). Ce faible désaccord dans le domaine THz conduit à une susceptibilité résonante plus grande d'après l'expression 2.9. Dans le cas simplement résonant, en partant de cette équation et en faisant l'approximation que les dipôles interbandes et intersousbandes sont du même ordre de grandeur pour les deux domaines, le rapport du module carré des susceptibilités $\chi^{(2)}$ s'écrit :

$$\frac{|\chi^{(2)}{}_{\text{MIR}}|^2}{|\chi^{(2)}{}_{\text{THz}}|^2} \approx \frac{E_{\text{MIR}}^2 + (\hbar\Gamma)^2}{E_{\text{THz}}^2 + (\hbar\Gamma)^2} \,. \tag{4.2}$$

L'élargissement Γ de la transition interbande est inférieur aux énergies des photons du LCQ dans les deux domaines (E_{THz} et E_{MIR}). De ce fait, le rapport des efficacités pour l'interaction non-linéaire varie comme le carré du rapport des énergies. Comme il y a environ un ordre de grandeur entre les énergies dans le MIR et le THz, alors l'efficacité est cent fois plus importante dans le domaine des THz (en ne considérant que le changement de la susceptibilité). Ce facteur permet de comprendre en partie la différence des efficacités de conversion.

Cette explication de quasi-double résonance peut se retrouver en faisant l'analogie de ce mécanisme avec les phénomènes d'absorption à deux photons [Fishman 2011]. L'absorption à deux photons est un processus non-linéaire faisant intervenir un niveau intermédiaire virtuel dans la bande interdite. Pour ce processus dans les semiconducteurs massifs, plus l'écart en énergie est grand entre les photons, plus l'absorption non-linéaire à deux photons est grande. Cela vient du fait que lorsque les photons sont extrêmement dégénérés, alors le photon de petite énergie est résonant avec les transitions intrabandes et le photon de grande énergie est quasi-résonant avec la transition interbande [Cirloganu 2011].

L'écart entre les deux valeurs ne peut pas s'expliquer uniquement pas la différence en énergie des photon. Une autre explication réside dans l'estimation de la valeur de l'efficacité pour les deux domaines de fréquences. Lors du calcul de l'efficacité, On considère que toute la puissance du faisceau de pompe est couplé dans le mode fondamental du guide NIR que forme le LCQ. Or une partie de la puissance peut se coupler aux ordres deux et trois. Ces ordres n'ont pas un recouvrement parfait avec la région active et ont plus de pertes car il bavent dans les couches de GaAs. Ces modes participent donc au mélange

d'ondes mais sont moins efficaces que le mode fondamental. En ne considérant donc que le mode fondamental, l'efficacité est sous-estimée. Ce paramètre n'a pas été quantifié, pour le faire, il faut imager la sortie du faisceau couplé afin de mesurer la puissance couplée dans chaque mode.

4.3.2 Largeur de raie

Pour comparer les largeurs de résonance et le rôle de l'absorption dans les deux domaines, on peut réaliser le même ajustement (lorentzienne et exponentielle décroissante) pour les courbes d'efficacité du mélange de fréquences dans le THz. La figure 4.14 représente l'efficacité pour le premier ordre de l'échantillon L773 présenté précédemment avec cet ajustement (voir paragraphe 3.3.4). Trois paramètres caractérisent principalement la fonction : l'énergie de coupure (E_c) à laquelle change le comportement, la largeur (γ_{eff}) de la partie lorentzienne et le taux de décroissance (b) de la partie exponentielle. Ces trois paramètres pour le THz et le MIR sont résumés dans le tableau 4.3.

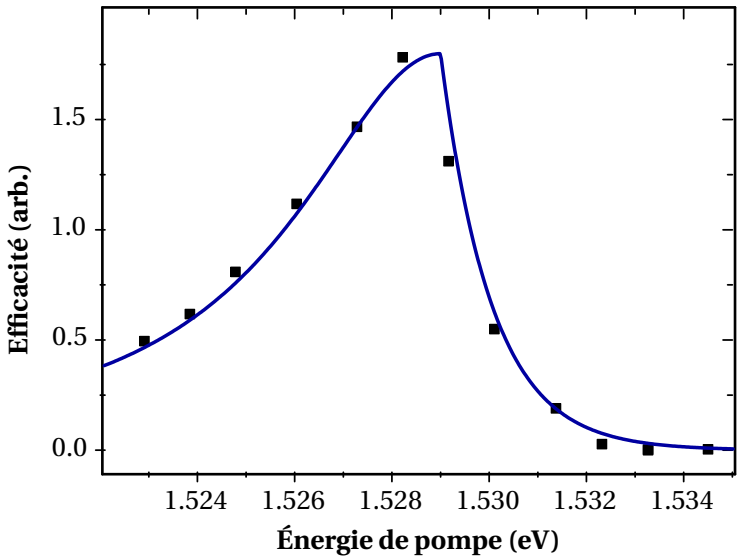


FIGURE 4.14 – Efficacité (unité arbitraire) du mélange de fréquences dans le LCQ THz (L773) en fonction de l'énergie de pompe et ajustement lorentzien et exponentiel décroissant (bleu).

	THz : $E_{\text{LCQ}} = 12$ meV	MIR : $E_{\text{LCQ}} = 135$ meV
E_c (eV)	1.529	1.623
γ_{eff} (meV)	7.2	101
b (meV)	1.1	7.8

TABLE 4.3 – Paramètre d'ajustement des efficacités dans le THz et le MIR

Les résultats des ajustements confirment les observations faites auparavant :

- L'énergie de coupure correspond à l'énergie d'émission du pic de photoluminescence et traduit le caractère résonant de l'interaction non-linéaire dans les deux régions du spectre. Cette énergie diffère car la transition interbande est plus grande en énergie pour le LCQ MIR à cause du confinement plus important des électrons (resp. des trous) dans la bande de conduction (resp. de valence).
- La largeur de la gamme sur laquelle le mélange de fréquences est possible est de l'ordre de grandeur du photon du LCQ (pour pouvoir émettre dans le domaine de transparence, voir chapitre 3), la largeur γ est donc plus grande pour les LCQ MIR.

– Le dernier coefficient rend compte du côté abrupt de l'absorption de la raie générée par le LCQ. Le champ électrique appliqué est plus important pour les LCQ MIR. La pente de l'absorption s'adoucit avec un champ électrique perpendiculaire au plan des puits [Miller 1985], c'est pourquoi le paramètre b est plus grand pour l'expérience de mélange d'ondes sur le LCQ MIR.

4.3.3 Accord de phase

Même si la susceptibilité $\chi^{(2)}$ est exaltée par l'excitation proche-IR résonante, la condition d'accord de phase peut jouer un rôle si le désaccord est plus important que l'absorption du faisceau pompe dans le matériau (c'est-à-dire que $\Delta k \gg \alpha_p$). Dans les deux domaines, le faisceau proche-IR est très absorbé car résonant et toute l'interaction s'effectue sur une épaisseur d'une dizaine de micron. Cependant, la longueur de cohérence ($L_c = \frac{\pi}{\Delta k}$) diffère pour le THz et le MIR comme nous le verrons par la suite. En effet, l'indice de réfraction du GaAs augmente de manière significative entre les domaines MIR et THz (notamment à cause des phonons optiques dont l'énergie se situe à peu près à la séparation entre les deux domaines). De ce fait les conditions d'accord de phase varient selon qu'on utilise des LCQ MIR ou THz.

Dans le chapitre précédent, nous avons vu qu'on pouvait tirer parti de la dispersion divergente de l'indice aux abords de la bande d'absorption phononique [Dhillon 2007] ou de la dispersion au niveau de la bande d'absorption (voir les informations supplémentaires de la référence [Madéo 2012]) pour être dans les conditions d'accord de phase. Dans les deux cas, l'indice de réfraction dans le domaine THz est plus élevé que dans le proche ou le moyen infrarouge, c'est cette propriété de la courbe de dispersion qui rend l'accord de phase possible.

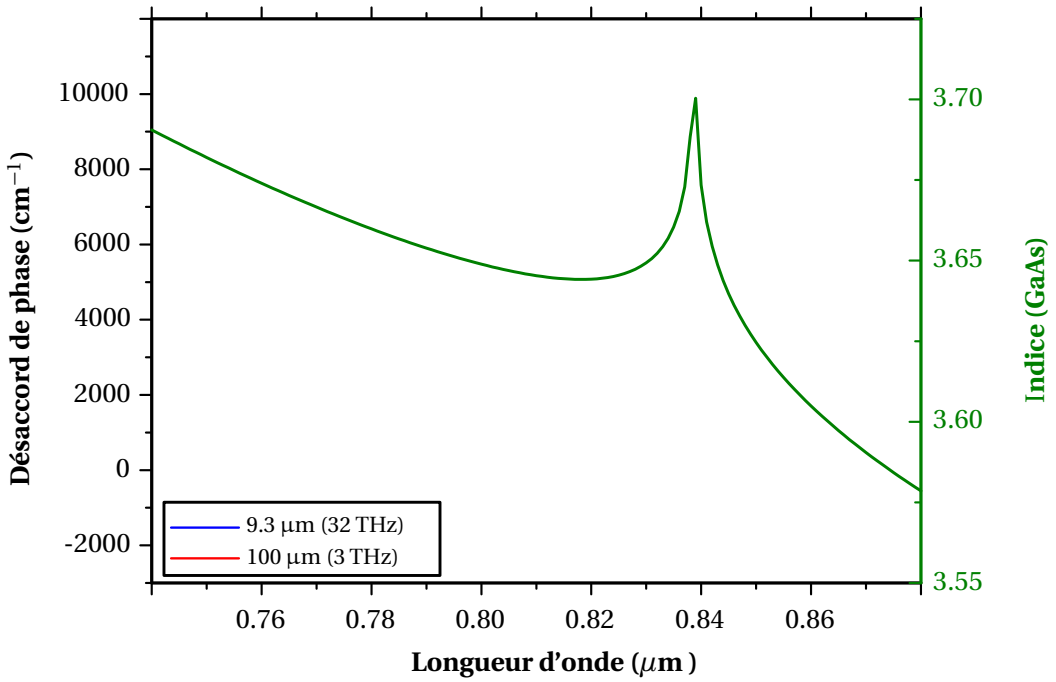


FIGURE 4.15 – Simulation de l'indice (vert, axe de droite) et du désaccord de phase en fonction de la longueur d'onde du faisceau de pompe pour un LCQ MIR (bleu) et THz (rouge).

La figure 4.15 représente une simulation de l'indice dans le GaAs en fonction de la longueur

d'onde d'excitation [Afromowitz 1974, Blakemore 1982, Palik 1998]. Le désaccord de phase, $\Delta k = 2\pi\left(\frac{n_{\text{NIR}}}{\lambda_{\text{NIR}}} - \frac{n_{\text{diff}}}{\lambda_{\text{diff}}} - \frac{n_{\text{LCQ}}}{\lambda_{\text{LCQ}}}\right)$, est également représenté pour deux longueurs d'onde d'émission (dans le MIR et le THz). Dans cette simulation on considère que l'indice dans le guide varie peu par rapport au matériau massif. On remarque que l'accord de phase est possible pour le THz pour une longueur d'onde excitation proche-IR vers 810 nm ce qui correspond à la région du maximum d'efficacité du mélange de fréquences avec les LCQ THz. Concernant le moyen infrarouge, la valeur du désaccord de phase n'est jamais inférieure à 2000 cm^{-1}. Cette forte valeur du désaccord de phase est à comparer à la valeur de l'absorption de la pompe dans la région active ($\sim 1000\,\text{cm}^{-1}$). Dans la partie sur le mélange de fréquences dans le domaine THz, même si l'énergie d'excitation s'écarte un peu de la condition d'accord de phase, le désaccord restait faible devant la valeur de l'absorption. Ce n'est plus le cas dans le MIR, et ceci explique en partie que l'efficacité du mélange de fréquences est beaucoup plus faible dans ce domaine du spectre électromagnétique.

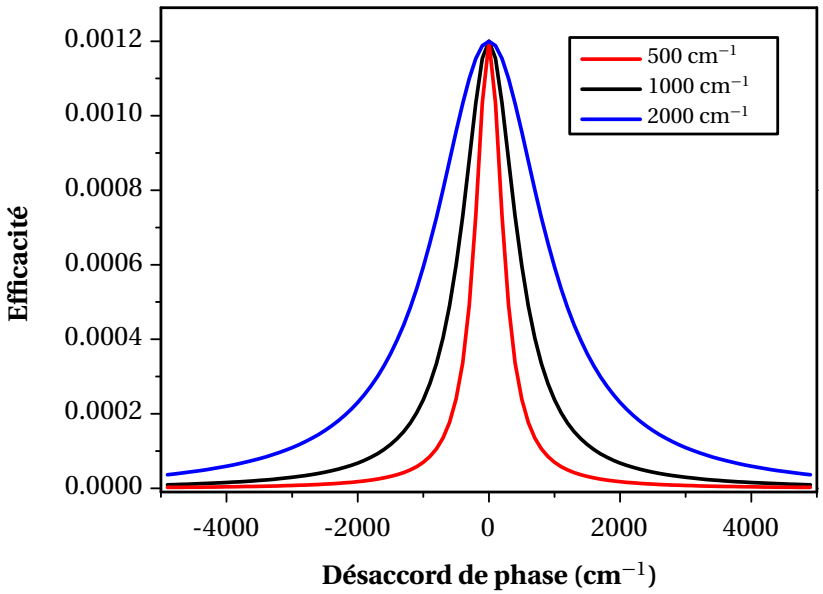


FIGURE 4.16 – Simulation de l'efficacité en fonction du désaccord de phase pour trois valeurs de pertes différentes (500 cm^{-1}, 1000 cm^{-1} et 2000 cm^{-1}).

La figure 4.16 rend compte de l'importance du désaccord de phase pour différentes valeurs de pertes par absorption. On calcule l'efficacité en fonction du désaccord de phase pour des pertes égales à 500 cm^{-1}, 1000 cm^{-1} et 2000 cm^{-1}. Le maximum est normalisé à l'efficacité du mélange d'ondes dans le THz. Lorsqu'on s'éloigne de la condition d'accord de phase, l'efficacité diminue rapidement. Par exemple, dans le cas de pertes de 1000 cm^{-1}, il y a une diminution d'un facteur vingt pour le désaccord de phase minimal calculé sur la figure 4.15 (i.e. 2000 cm^{-1}). Lorsque l'absorption augmentent, on remarque que la condition d'accord de phase est moins importante car l'efficacité décroit moins vite. Pour favoriser l'accord de phase dans le domaine MIR et ainsi augmenter l'efficacité, il est nécessaire de jouer sur le guide pour diminuer l'indice de réfraction dans le proche-IR et/ou dans le même temps augmenter celui du moyen-IR. Cela peut être fait en changeant le dopage des gaines ou leur concentration en alliage d'AlGaAs.

4.4 Perspectives : Vers d'autres matériaux

Nous avons montré la possibilité de générer de manière résonante la différence de fréquences entre un faisceau proche-IR et le champ intracavité d'un LCQ MIR. On peut améliorer les performances des LCQ présentés dans ce chapitre en utilisant des échantillons avec plus de périodes (donc plus de puissance optique) et/ou en modifiant les interfaces entre la zone active et la gaine d'AlGaAs pour diminuer les pertes du guides. Cela permettra d'avoir plus de puissance dans la cavité et d'augmenter l'efficacité. Cependant, les LCQ en GaAs atteignent leur limite quand il s'agit d'avoir un fonctionnement avec de grands rapports cycliques et à température ambiante. Leur avantage principal, pour notre expérience, était que leurs transitions interbandes étaient dans la même gamme d'énergie que celles des LCQ THz.

Aujourd'hui, l'intérêt se porte sur des lasers dont les performances en terme de température de fonctionnement et d'efficacité à la prise sont supérieures. Ces LCQ sont bâtis sur d'autres substrats comme les LCQ composés de puits InGaAs/InAlAs sur substrat d'InP. De plus la bande interdite de ces matériaux se trouve aux alentours de la bande de télécommunication à 1.55 µm. Travailler dans cette bande de longueurs d'onde permet de profiter de la technologie développée pour les applications de télécommunication optique.

4.4.1 les LCQ InGaAs/InAlAs

Les lasers à cascade quantique les plus efficaces pour le moyen infrarouge sont constitués de puits InGaAs/InAlAs qu'on fait croître sur un substrat d'InP [Beck 2002]. Ces lasers fonctionnent à température ambiante et en continu avec une bonne efficacité à la prise [Liu 2010, Bai 2010]. Les LCQ les plus performants émettent jusqu'à 6 W en continu à 30 K ($\sim$ 4 W à 80 K) [Liu 2010], et jusqu'à 10 W en impulsionnel (5 % de rapport cyclique avec des impulsions de 200 ns) [Bai 2010]. Ces puissances dépassent de plusieurs ordres de grandeur la puissance du LCQ en GaAs utilisé pour notre montage ($\sim$ 20 mW à 1 % de rapport cyclique à 210 K). En transposant simplement le gain de puissance, des efficacités de 2.5×10^{-3} % seraient atteintes. [3]

Comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, le montage expérimental a besoin d'être modifié avant d'envisager de faire de la conversion de fréquences dans un LCQ InP. Cependant, nous avons déjà pu caractériser électriquement un LCQ à 300 K et faire des expériences de photoluminescence sur un montage adapté pour anticiper les résonances interbandes entrant en jeu pour ces lasers. Nous présentons un échantillon qui a été crû par une technique de MOCVD (*Metalorganic Chemical Vapour Deposition*, épitaxie en phase vapeur aux organométalliques) au laboratoire de Photonique et Nanostructure. L'avantage principal par rapport à l'EJM est sa vitesse de croissance. La fabrication du ruban a été effectuée au laboratoire MPQ de l'université Paris VII.

Caractéristique LVI

La caractéristique LVI à 300 K est présentée sur la figure 4.18. Elle est semblable aux lasers GaAs. On observe une forte résistance à bas courant, la tension augmente rapidement pour aligner la structure. Le courant de seuil est néanmoins plus faible pour les lasers InP ce qui permet d'avoir une meilleure efficacité à la prise. Cette caractéristique a été prise avec un rapport cyclique de seulement 5 % pour être

3. Dans cette prévision, nous ne prenons pas en compte les propriétés non-linéaires différentes des puits InGaAs/InAlAs et GaAs/AlGaAs [Park 1999].

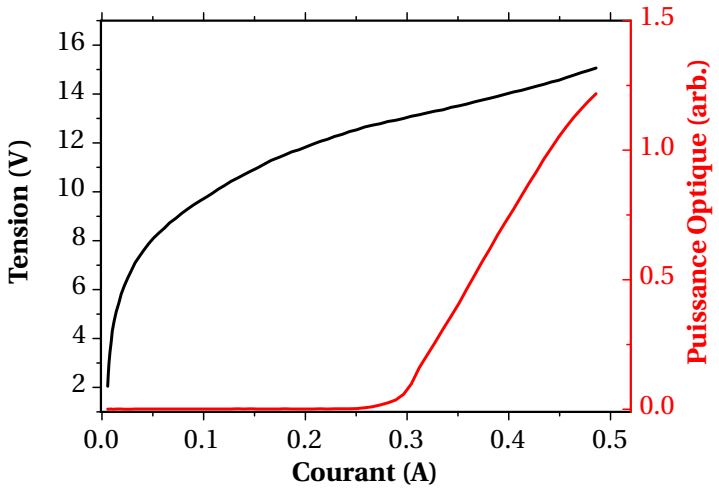


FIGURE 4.17 – Caractéristique Lumière-Tension-Courant d'un LCQ InGaAs/InAlAs prise à 300 K à un rapport cyclique de 5 %.

sûr de ne pas endommager l'échantillon (ce qui est déjà plus important que les taux utilisés dans nos expériences) mais il est possible de travailler à des rapports plus élevés ce qui facilite la mise en œuvre expérimentale.

Cet échantillon fonctionne parfaitement de 10 K à 300 K. Travailler sur une plage aussi grande de températures permettrait d'observer de manière plus quantitative le rôle joué par la température sur l'interaction non-linéaire (autrement que via la dégradation des performances du laser). Par exemple, comme nous le verrons dans le paragraphe suivant, la valeur de la bande interdite change de manière significative entre ces températures et cette énergie joue un rôle dans le mélange d'ondes par l'intermédiaire des temps de vie des niveaux virtuels [Fishman 2011].

Caractérisation par micro-photoluminescence

La figure 4.18 présente les spectres de photoluminescence pour les deux températures extrémales (10 K et 300 K). Tout d'abord, on remarque que le gap effectif dans ces structures est plus faible que pour les LCQ précédemment étudiés pour lesquels le pic de photoluminescence se situait aux alentours de 820 nm. À basse température (10 K), on observe un pic central à 1.35 µm ∼ 0.92 eV. À température ambiante, le pic principal est moins intense et décalé vers le rouge 1.47 µm ∼ 0.84 eV. On observe également l'émergence d'un pic à plus haute énergie (1.42 µm ∼ 0.87 eV) provenant du peuplement par activation thermique de sous-bandes supérieures.

Cette bande interdite plus faible en énergie est a priori bénéfique pour le mélange d'ondes car le temps de vie relatif au principe d'Heisenberg ($\hbar/E_g$) augmente. Ce résultat se retrouve pour l'absorption à deux photons qui est plus efficace pour les semiconducteurs à petit gap [Fishman 2011].

Le LCQ étudié ici émet à 7.5 µm soit 165 meV. L'énergie du photon émis par le LCQ représente une fraction non-négligeable du gap de la région active. Nous avons vu que cela était défavorable pour le mélange d'ondes d'avoir un photon de plus grande énergie, mais ce désavantage est compensé par le gap plus faible de l'InGaAs.

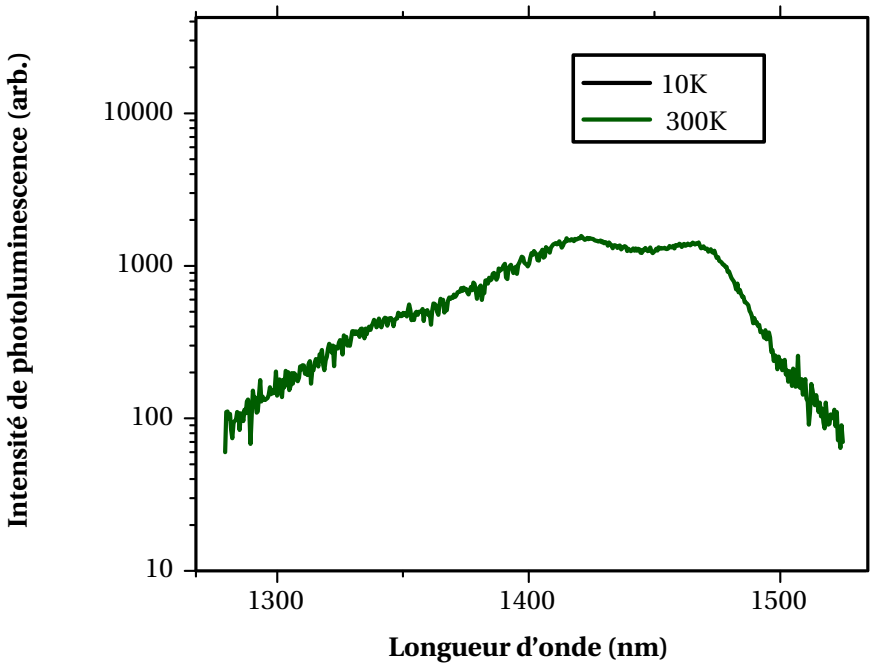


FIGURE 4.18 – Spectres de photoluminescence d'un LCQ InGaAs/InAlAs prise à 10 K (noir) et 300 K (vert) sans champ électrique.

4.4.2 Travaux futurs sur les LCQ InGaAs/InAlAs

Adaptation du montage

Les mesures de photoluminescence effectuées confirment que ni notre source ni notre caméra ne sont adaptées à l'utilisation de ces LCQ performants. Le laser Ti :Saphire ne peut émettre au-delà de 950 nm et le détecteur de la caméra à base de silicium n'absorbe plus les photons au-delà du micron.

L'énergie d'excitation résonante varie de plusieurs dizaines de meV lorsque la température varie. Il est nécessaire pour la source qu'elle soit très accordable autour de 1.4 µm pour pouvoir sonder le LCQ sous différentes températures. Un laser émettant entre 1.3 µm et 1.5 µm constitue une bonne source pour exciter de manière résonante ces LCQ.

Le développement d'une caméra en InGaAs est en cours de réalisation au laboratoire. Les puces d'InGaAs sont sensibles de manière conventionnelle jusqu'à 1.7 µm. La configuration la plus favorable pour générer la différence de fréquences correspond à l'émission de ce faisceau à des énergies légèrement inférieures au pic de PL pour approcher les conditions de double-résonance. À 300 K, d'après les transitions interbandes mesurées, la génération résonante de différence de fréquences se situerait à 1.5 µm. Cela correspond à une pompe située à 1.25 µm pour un LCQ émettant à 7.5 µm. Cette longueur d'onde est légèrement trop courte pour les sources conventionnelles de télécommunication optique. Le mélange d'ondes sera également observé si l'excitation de pompe se situe à des longueurs un peu plus grandes (1.3 µm) et qui par différence de fréquences génère une onde à $\lambda = 1.57$ µm. La longueur d'onde ne peut pas être trop augmentée car l'efficacité diminue et la borne supérieure de la caméra InGaAs est limitée à 1.7 µm. Il apparaît donc que plus l'énergie du photon du LCQ est grande et plus la bande-passante du système source/détecteur doit être grande pour pouvoir étudier le mélange de fréquences

sur toute la gamme de résonance. Il serait préférable d'utiliser des LCQ émettant à des longueurs d'onde plus grandes (vers 11 μm) pour rester dans la bande passante de la caméra mais ces lasers ont de moins bonnes performances.

Guide d'onde

Les croissances des lasers composés de puits InGaAs/InAlAs sont effectuées sur des substrats d'InP. Ce substrat constitue un matériau de choix pour guider la lumière car son indice de réfraction est plus faible que celui de l'indice moyen de la région active ($n_{\mathrm{InP}} \sim 3.1$ contre $n_{\mathrm{LCQ-AR}} \sim 3.35$ [Gmachl 2001]). La même différence d'indices dans le proche-IR permet de confiner la pompe dans la région active.

De manière courante, une couche dopée d'InGaAs ou d'AlInAs est déposée de part et d'autre de la zone active pour mieux confiner le mode MIR du laser (et éviter notamment des couplages avec des modes de plasmon de surface au niveau du contact métallique). Ces couches induisent des pertes pour le mode proche-IR (de plus l'indice est plus élevé que celui de l'InP donc le guidage est moins bon). La suppression de ces couches influe peu sur le confinement du MIR (La figure de mérite passe de 9.8 à 7.3) mais permet un bien meilleur confinement du NIR d'après les simulations du guide (le recouvrement passe de 80 % à 96 % sans les couches d'InGaAs). Il y a donc intérêt à modifier le guide en ce sens pour mieux guider le faisceau de pompe et le faisceau généré.

4.5 Conclusion

Nous avons démontré la possibilité de générer la différence de fréquences entre une porteuse proche-IR et les photons moyen IR émis par un LCQ. Le processus d'optique non-linéaire est résonant avec les transitions interbandes de la région active et nous retrouvons qualitativement les résultats obtenus dans le THz (processus résonant en $\chi^{(2)}$). Les performances en température des LCQ MIR ont permis d'observer le mélange d'ondes jusqu'à 0 °C. Néanmoins, les efficacités obtenues avec les LCQ MIR sont plus faibles que celles obtenues avec les lasers THz. Ces premiers résultats constituent une première démonstration et demandent à être améliorés, notamment avec des LCQ MIR plus performants. Le faible rapport cyclique de fonctionnement de ces lasers limite la puissance moyenne de la raie générée et rend les acquisitions difficiles. L'optimisation de la croissance de ces lasers devrait permettre d'augmenter l'efficacité du mélange de fréquences.

Ces expériences ont de plus montré que la condition d'accord de phase peut être importante pour la conversion de fréquences dans un LCQ et qu'il était nécessaire que la longueur de cohérence soit supérieure à la longueur caractéristique d'absorption de la pompe par la région active.

Il serait intéressant d'effectuer des expériences de mélange d'ondes en utilisant les propriétés d'optique non-linéaire d'autres matériaux comme les lasers à cascade quantique composés d'alliages InGaAs/InAlAs dont les performances sont bien meilleures en termes de puissances et de températures de fonctionnement. Cela pourrait ouvrir la voie à des applications potentielles s'il n'y a pas besoin de refroidissement cryogénique. De plus, la fréquence de l'excitation proche-IR correspond à une bande de télécommunication où les pertes dans les fibres optiques sont particulièrement faibles. Leur plus forte puissance et la valeur plus faible du gap devraient compenser l'énergie plus importante des photons émis par les LCQ MIR et permettre d'atteindre les efficacités obtenus dans le THz.

Deuxième partie

Contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique

Introduction

Le contrôle de la phase de l'enveloppe des lasers impulsionnels a permis de réaliser de grands progrès en terme de métrologie et de construction d'impulsions attosecondes [Baltuska 2003, Goulielmakis 2007]. Le contrôle de la phase des impulsions THz est un point fondamental des expériences de spectroscopie THz dans le domaine temporel (TDS). En effet, c'est grâce à la relation de phase fixe entre les différentes impulsions successives que le champ THz peut être détecté dans le domaine temporel [Planken 2001]. Cette détection dans le domaine temporel, permet d'étudier l'indice complexe de matériaux [Chen 2010] et de suivre la dynamique de systèmes [Porer 2012]. La spectroscopie THz dans le domaine temporel est utilisée aussi bien pour réaliser de l'imagerie [Chan 2007], que pour la détection de composés chimiques [Nagai 2005] ou encore pour du contrôle non-destructif [Jördens 2010].

Ces dernières années, les LCQ THz ont fait l'objet d'un développement particulier pour stabiliser la fréquence et la phase d'émission de ces lasers [Rabanus 2009, Barbieri 2010, Vitiello 2012] grâce à des boucles de rétroaction agissant principalement sur la tension appliquée au LCQ. Cette stabilisation est particulièrement intéressante pour les applications de métrologie où l'existence d'oscillateurs précis est nécessaire à la calibration des mesures. Le contrôle de la phase peut également être réalisé en injectant une impulsion THz provenant d'une antenne photoconductrice [Oustinov 2011]. L'émission du LCQ est alors directement mesurée dans le domaine temporel grâce au montage de TDS. Dans ce dernier cas, le couplage de l'impulsion THz dans la cavité du LCQ est une étape essentielle pour le contrôle de la phase d'émission. L'impulsion externe couplée, dont la phase est fixée, domine l'émission spontanée dans la cavité lors du démarrage de l'effet laser et permet l'initiation du laser sur cette phase fixe. Le LCQ peut alors être utilisé comme une source THz puissante pour la TDS car son émission est verrouillée en phase. Dans l'optique d'applications, il est utile d'avoir des lasers fonctionnant aux températures les plus hautes. Les meilleures performances dans ce domaine sont obtenues avec des LCQ THz dont le guide d'onde a une géométrie double-métal (voir chapitre 1). Les guides d'onde des LCQ ont des dimensions de l'ordre de la longueur d'émission ce qui rend difficile le couplage d'une onde externe dans le cas d'un guide d'onde simple plasmon. Les guides à géométrie double-métal ont quant à eux des dimensions inférieures à la longueur d'onde qui rendent le couplage quasi-impossible à cause de la trop grande désadaptation d'impédance entre les modes guidés et la propagation en espace libre. Nous allons montrer dans cette partie comment la géométrie de ces guides peut être adaptée pour coupler à l'intérieur de la cavité une impulsion THz externe. Ce couplage permettra de contrôler la phase d'émission des LCQ THz double-métal qui ont des températures de fonctionnement supérieures à celles des LCQ à

guide simple plasmon.

Cette partie est organisée en deux chapitres. Dans le premier chapitre, nous exposons les principes généraux de la spectroscopie THz dans le domaine temporel et son application aux LCQ en régime stationnaire. Dans le second chapitre, nous montrons comment la phase d'émission d'un LCQ THz double-métal peut être contrôlée en optimisant la géométrie de ces guides pour le couplage d'une onde THz externe.

CHAPITRE 5

Spectroscopie THz dans le domaine temporel

Ce chapitre a pour but de présenter les techniques de spectroscopie qui sont utilisées au laboratoire pour étudier les LCQ THz : la spectroscopie THz dans le domaine temporel (ou *Time Domain Spectroscopy*, TDS en anglais). Cette méthode est originale d'une part par la gamme de fréquences qu'elle étudie et d'autre part par la résolution du signal dans le domaine temporel. En effet, comme on l'a évoqué en introduction de cette thèse, la gamme THz a pendant longtemps constitué un fossé entre les domaines de l'optique et des micro-ondes à cause notamment du manque de sources efficaces. De plus, la spectroscopie TDS s'appuie sur un système de détection cohérent, la rendant insensible au rayonnement THz ambiant. Les sensibilités de mesure sont donc élevées [Han 2001]. Une source envisageable pour la spectroscopie THz est le laser à cascade quantique THz car il constitue laser robuste, compact et puissant à ces fréquences. Cependant les méthodes de spectroscopie THz, utilisant des LCQ comme source, sont à leur début car il est difficile de réaliser des lasers mono-modes et accordables. De plus, contrairement à la TDS, ces méthodes ne permettent pas de résoudre le signal dans le domaine temporel. En effet, la détection complexe du signal (détermination de l'amplitude et de la phase) démarque la TDS des autres méthodes de spectroscopie dans ce domaine de fréquences. La spectroscopie infrarouge par transformée de Fourier (*FTIR*), par exemple, ne mesure que l'intensité du signal et ce sans aucune dynamique temporelle. La spectroscopie TDS THz est une méthode très sensible qui fonctionne à température ambiante. La détection dans le domaine temporel peut donner accès à la dynamique de phénomènes physiques. Cette propriété peut être utilisée pour observer les comportements transitoires des LCQ THz [Freeman 2012], elle permet également de procéder à des expériences de pompe-sonde pour observer des mécanismes de relaxation sur des temps courts [Beard 2000].

Nous décrirons dans une première partie les différents composants utilisés pour le montage expérimental de spectroscopie THz. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous exposerons une application de la TDS pour l'étude de LCQ en régime stationnaire.

5.1 Présentation du montage expérimental

Le but de cette section est de donner au lecteur la description des éléments utilisés dans notre montage expérimental. Les solutions choisies pour la source ou la détection sont adaptées aux échantillons étudiés et aux ressources du laboratoire. Nous ne détaillerons que les techniques utilisées et d'autres choix peuvent être faits. Pour une description plus complète et plus détaillée des techniques d'opto-

électronique et de spectroscopie dans le domaine THz, le lecteur pourra se référer aux ouvrages suivants [Coutaz 2012, Sakai 2010]. On pourra également consulter la thèse de Dimitri Oustinov [Oustinov 2011] qui traite plus particulièrement de notre montage.

5.1.1 Composants pour la spectroscopie THz

5.1.1.1 Lasers femtosecondes à modes bloqués

Les lasers femtosecondes à modes bloqués sont l'élément de base des techniques de TDS THz que ce soit pour la génération ou la détection du THz. Plus généralement, ils sont utiles pour toutes les études cherchant à sonder des dynamiques courtes. Ce sont les avancées de ces lasers dans les années 1980 [Siegman 1986] qui ont permis aux commutateurs photoconducteurs (voir paragraphe suivant) de générer des impulsions aux portes du THz [Auston 1984].

Nous utilisons au laboratoire un laser Titane :Saphir (Ti :Sa) émettant des impulsions de 100 fs à un taux de répétition de 76 MHz (soit des périodes de 13 ns). Ces impulsions sont centrées vers 810 nm avec une certaine accordabilité. La puissance moyenne de ce laser (modèle MIRA de la marque Coherent) peut être portée à 1.5 W ce qui permet d'atteindre de grandes puissances crêtes.

5.1.1.2 Émetteur THz

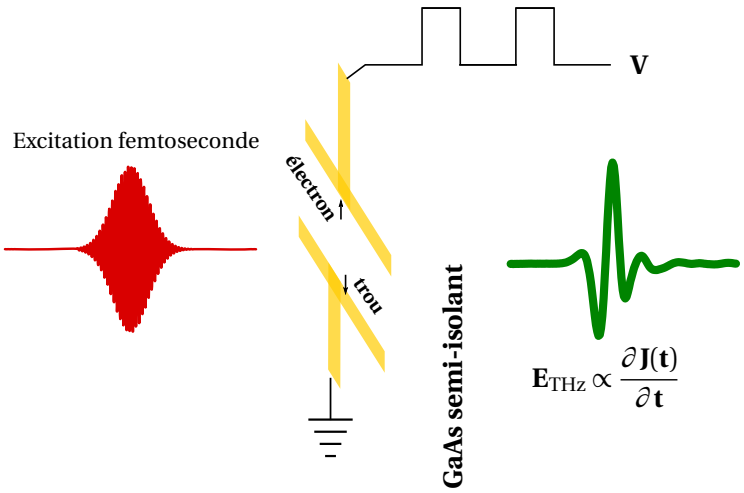


FIGURE 5.1 – Schéma d'une antenne photoconductrice dipolaire, constituée d'un substrat de GaAs semi-isolant et de deux électrodes.

L'émission des impulsions THz se fait par des antennes photoconductrices inter-digitées. Ces antennes couvrent une gamme de fréquences allant de 0.1 THz à 5 THz. L'antenne se compose d'un substrat de semiconducteur (du GaAs semi-isolant) et de deux contacts métalliques formant des électrodes (voir figure 5.1). Une tension [1] appliquée aux bornes des électrodes crée un champ électrique statique de l'ordre de la dizaine de kV/cm. Une impulsion ultra-courte, dont l'énergie (1.55 eV $\sim$ 800 nm) est

1. Cette tension peut être continue, mais comme on le verra dans un paragraphe suivant, il est préférable de la moduler à une fréquence de référence pour utiliser une détection synchrone.

supérieure à la bande interdite du semiconducteur, est focalisée entre les deux électrodes. Des paires "électron-trou" sont photo-générées dans cet espace. Ces charges sont accélérées par le champ statique, générant un courant circulant entre les deux électrodes. Le temps de vie de ce courant dépend de la durée d'excitation (soit la durée de l'impulsion du laser) et du temps de vie des porteurs dans le semiconducteur ($\sim 1-100$ ps). Le champ électrique, E_{THz}, généré par ce dipôle peut s'écrire en champ lointain [Lee 2008] :

$$E_{\mathrm{THz}}(r,t) = \frac{L}{4\pi\epsilon_0 c^2 r}\frac{\partial J(t)}{\partial t}, \tag{5.1}$$

avec $J(t)$ le courant transitoire et L, l'espace entre les électrodes. Comme le courant J a un temps de vie de l'ordre de la picoseconde, on obtient une impulsion mono-cycle dont les fréquences sont dans le THz.

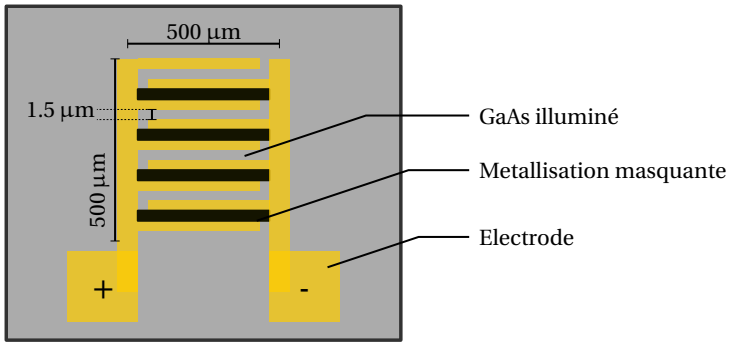


FIGURE 5.2 – Schéma d'une antenne photoconductrice inter-digitée, constituée d'un substrat de GaAs semi-isolant et de deux électrodes entrelacées définissant un espace de 1.5 µm entre elles.

À partir de ce principe de base, des schémas plus évolués ont été conçus, comme les antennes inter-digitées [Dreyhaupt 2005] (voir figure 5.2). Ces antennes permettent de rapprocher les électrodes (donc d'utiliser des tensions plus faibles, ~ 3 V, qui peuvent être modulées facilement jusqu'à la dizaine de kHz) tout en ayant une surface assez grande pour la génération (500 µm $\times$ 500 µm) ce qui limite la diffraction. C'est ce type d'antenne que nous fabriquons en salle blanche au laboratoire. La forme des deux électrodes définit un réseau d'antennes dipolaires. Deux espaces inter-électrodes consécutifs ont des champs statiques opposés du fait de l'alternance des électrodes. Une deuxième métallisation est nécessaire pour masquer un espace sur deux. Sans cette métallisation, les champs opposés généreraient des impulsions THz déphasées qui s'annuleraient en champ lointain. Entre les deux métallisations, une couche de SiO_2 est évaporée pour éviter de court-circuiter les électrodes.

5.1.1.3 Détection cohérente THz

La détection du champ THz se fait par une méthode dite électro-optique. Le principe physique de base est d'utiliser la biréfringence induite qui apparaît dans un cristal quand celui-ci est soumis à un champ électrique. Cette biréfringence induite est appelée effet Pockels et est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique [Planken 2001]. C'est un processus non-linéaire d'ordre 2, il n'apparaît donc que dans des cristaux ne possédant pas de centre d'inversion (voir chapitre 2).

Le principe de la détection électro-optique est de sonder cette biréfringence avec le faisceau proche infrarouge (IR) du laser Ti :Saphir. Cette mesure est réalisée au moyen d'une chaine de détection composée d'un cristal électro-optique, d'une lame quart d'onde, d'un prisme de Wollaston et d'une balance de photodiodes (voir figure 5.3). L'onde proche IR est focalisée sur le cristal soumis au champ E_{THz}. La sonde NIR a une polarisation rectiligne, parallèle au champ THz.

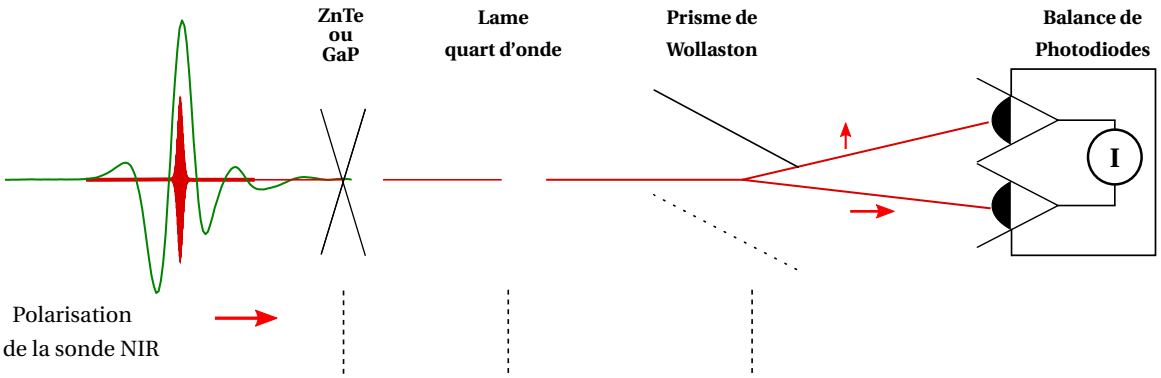


FIGURE 5.3 – Schéma de la détection électro-optique. Les flèches rouges représentent la polarisation de la sonde NIR dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation

Si le champ THz est nul, il n'y a pas de biréfringence induite dans le cristal, la polarisation du faisceau NIR reste inchangée. La lame quart d'onde rend la polarisation circulaire dont les deux composantes orthogonales sont séparées par le prisme de Wollaston puis focalisées sur les deux photodiodes. On mesure en sortie la différence de courant délivré par chaque photodiode. Cette différence de courant est convertie en une tension par un amplificateur transimpédance. Dans le cas d'une polarisation circulaire, les deux composantes ont la même intensité et les signaux sur les photodiodes seront identiques : le courant résultant entre les deux détecteurs est nul. Ce courant est une mesure *différentielle* qui soustrait le bruit du laser fs, identique sur chaque photodiode. Le principe de la balance de photodiode permet ainsi d'avoir un bon rapport signal à bruit.

Si le champ THz induit une biréfringence dans le cristal par effet Pockels, la polarisation du faisceau NIR devient elliptique après le cristal. Le déphasage entre les deux composantes est proportionnel au champ électrique car l'effet Pockels est un effet non-linéaire d'ordre deux. Ce déphasage est mesuré en séparant les deux composantes par le prisme de Wollaston et en mesurant la différence de signal entre les deux photodiodes. Le courant mesuré est relié au champ THz par la relation suivante [Planken 2001] :

$$\Delta I = I_p \frac{\omega n^3 r_{41} L}{2c} E_{\mathrm{THz}} \,, \tag{5.2}$$

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

Choix du cristal électro-optique

D'après l'équation 5.2, le choix du cristal intervient dans la détection par son indice, n, son coefficient électro-optique, r_{41} et son épaisseur L. On utilise deux cristaux au laboratoire : le tellure de zinc (ZnTe) pour la détection des fréquences comprises entre 0.2 THz et 4 THz et le phosphate de gallium (GaP) pour détecter les fréquences au-delà de 3.5 THz et jusqu'à 5.5 THz.

Le cristal de ZnTe possède un coefficient électro-optique plus grand que celui du GaP ($r_{41}^{\mathrm{ZnTe}} = 4\,\mathrm{pm/V}$ contre $r_{41}^{\mathrm{GaP}} = 1\,\mathrm{pm/V}$). Il permet d'avoir une meilleure sensibilité. On peut utiliser des cristaux plus épais pour gagner en sensibilité. Cependant, comme tout processus d'optique non-linéaire, la condition d'accord de phase joue un rôle important. Pour le ZnTe, les conditions d'accord de phase sont réalisées pour des fréquences aux alentours de 2 THz (pour $\lambda_{\mathrm{NIR}} \sim 800\,\mathrm{nm}$). C'est pourquoi, pour des fréquences plus élevées, il est préférable d'utiliser des cristaux plus fins ou en GaP dont l'accord de phase se situe vers 6 THz pour $\lambda_{\mathrm{NIR}} \sim 810\,\mathrm{nm}$ [Wu 1997]. La condition d'accord de phase limite l'épaisseur des cristaux et il y a un compromis à trouver entre sensibilité et largeur spectrale de la détection. Une autre limitation de la bande-passante de détection vient de l'absorption du faisceau THz par les phonons TO (transverses optiques) du cristal. Cette absorption se situe à 5 THz dans le ZnTe [Gallot 1999] et à 11 THz dans le GaP [Wu 1997]. Nous utiliserons un cristal de ZnTe de 200 μm d'épaisseur dans la majorité des cas. Pour les hautes fréquences, nous privilégierons un cristal de GaP de 100 μm.

Détection synchrone

La sortie de la balance de photodiode donne une tension qui est mesurée par une détection synchrone (DS). La détection synchrone multiplie le signal par un signal sinusoïdal à une fréquence de référence (typiquement une dizaine de kHz), et mesure la valeur moyenne, ce qui permet de filtrer la tension pour n'en mesurer que la composante fréquentielle qui nous intéresse. Plus le temps d'intégration de cette valeur moyenne est grand, meilleur est le rapport signal à bruit. Le bruit dans le domaine THz qui n'est pas synchronisé avec la fréquence de référence est éliminé par cette technique de détection. Pour pouvoir utiliser une détection synchrone, il faut donc que le champ THz soit modulé à la fréquence de référence. Pour réaliser cette modulation, une tension en créneau est appliquée à l'antenne photoconductrice et la fréquence de cette tension sert de référence à la détection synchrone (voir figure 5.4). Outre le fait d'obtenir un bon rapport signal à bruit, la détection synchrone permet de faire des mesures *différentielles*, notamment en alimentant l'antenne photoconductrice en continu et en modulant électriquement un échantillon à une fréquence de référence. Le résultat de la mesure sur la détection synchrone donnera directement l'effet de la modulation électrique sur l'échantillon. Par exemple, les mesures de gain $f-2f$ expliquées plus en détails ultérieurement, utilisent cet avantage.

5.1.2 Montage expérimental

Le montage expérimental est schématisé sur la figure 5.4. Un laser Ti :Saphir émet des impulsions de 100 fs dans le proche-IR. Ce faisceau est séparé en deux parties : une partie sonde (30 %) et une partie pompe/antenne (70 %). Le faisceau pompe excite l'antenne photoconductrice (voir section 5.1.1) qui émet une impulsion THz à chaque impulsion fs. Cette impulsion est collectée et focalisée par des miroirs paraboliques en or sur un échantillon. Le rayonnement THz interagit avec l'échantillon puis une paire de miroirs paraboliques (symétriques des deux premiers miroirs) collecte et focalise le faisceau THz sur le cristal de détection électro-optique. Les molécules d'eau absorbent fortement le rayonnement THz

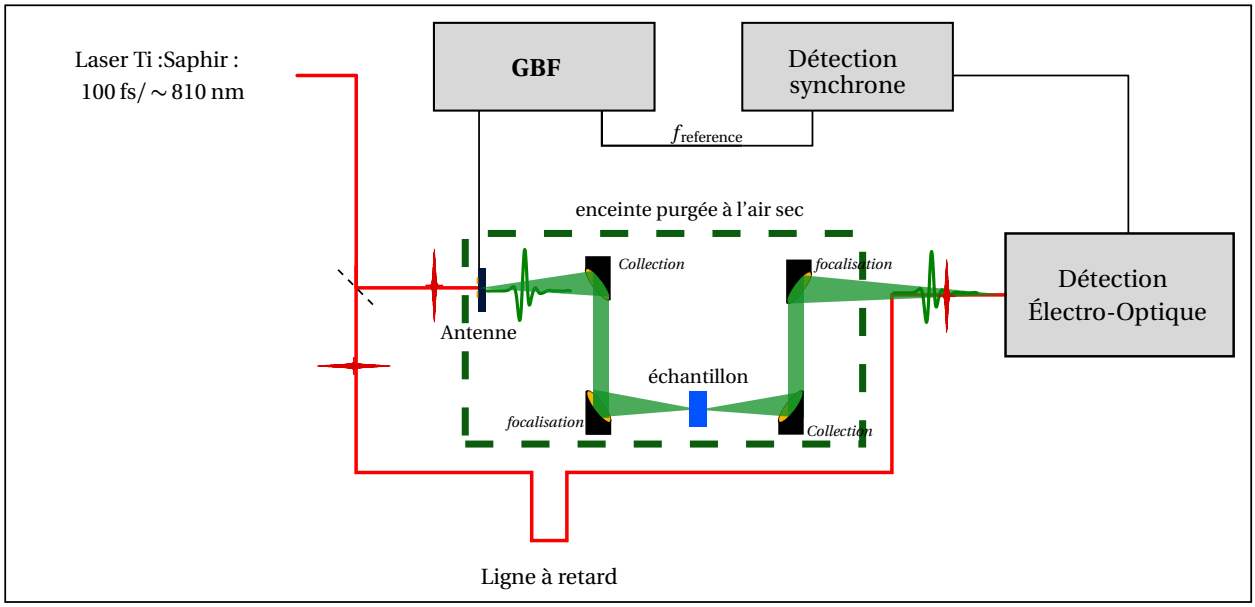


FIGURE 5.4 – Schéma du montage expérimental de spectroscopie THz dans le domaine temporel

(notamment à 1.7 THz). Pour éviter cette absorption, toute la propagation de l'impulsion THz se fait dans une boite en plexiglas purgée par un flux d'air sec. Les oscillations dans le domaine temporel dues à l'absorption de l'eau ne sont plus détectées pour une humidité inférieure à 0.9 %.

L'autre partie du faisceau, la partie sonde, passe à travers une ligne à retard puis est focalisée sur le cristal électro-optique. Un soin particulier doit être pris pour avoir un bon recouvrement spatial au niveau du cristal entre le faisceau THz et NIR. Il est nécessaire qu'il y ait également un recouvrement temporel, cela est assuré par la ligne à retard qui permet d'ajuster la position en temps de l'impulsion NIR par rapport au THz. La ligne à retard est déplacée pas à pas pour faire l'acquisition du signal (voir paragraphe suivant). Un signal typique avec un cristal de ZnTe (200 µm d'épaisseur) est représenté sur la figure 5.5 lorsqu'il n'y a pas d'échantillon dans le chemin optique. Ce spectre montre qu'on a accès à une bande de fréquences allant de 300 GHz à 4 THz.

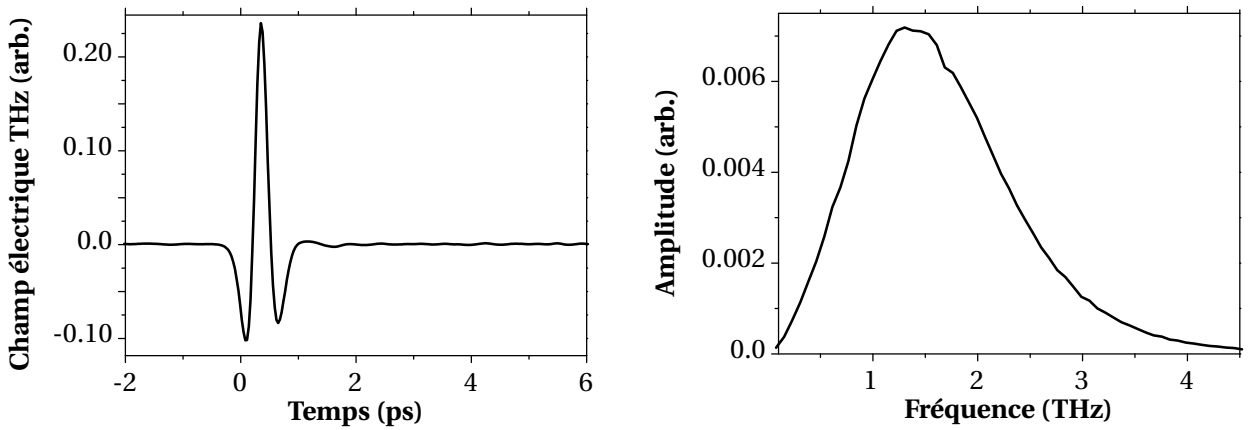


FIGURE 5.5 – Signal temporel et transformée de Fourier d'une impulsion THz détectée par un cristal de ZnTe (200 µm).

Échantillonnage du signal THz

La spécificité de la TDS est de pouvoir mesurer le champ complexe dans le domaine temporel. D'après le critère de Nyquist-Shannon, la fréquence d'échantillonnage d'un signal doit être au minimum deux fois supérieure à la fréquence maximale du signal en question pour pouvoir le restituer sans pertes, soit : $f_{\text{echantillonnage}} \geq 2f_{\text{max}}$. Il n'existe pas de détecteur suffisamment rapide pour pouvoir respecter ce critère dans le THz.

L'échantillonnage réalisé dans les expériences de TDS se base sur des détecteurs "lents" qui mesurent le champ THz à une position temporelle précise de l'impulsion THz. Cela est possible car le signal THz est périodique et que la sonde NIR mesure le champ électrique toujours à la même position. Cette position est fixée par la position de la ligne à retard qui permet de décaler les signaux temporellement. Comme chaque impulsion NIR génère une impulsion THz, les impulsions NIR et THz sont verrouillées en phase (il y une relation de phase fixe entre les deux impulsions). Le laser Ti :Saphir émet de manière périodique des impulsions très courtes devant la durée de l'impulsion THz, le champ THz peut donc être considéré comme constant sur la durée de l'impulsion femtoseconde. Ainsi, pendant la durée d'intégration de la détection synchrone, la sonde NIR permet de mesurer le champ THz sur un grand nombre de périodes avec une position en temps fixe, puis le retard de la sonde est changé pour mesurer un autre point de l'impulsion THz. Le procédé est illustré sur la figure 5.6. Cette méthode d'échantillonnage dans le domaine temporel n'est donc pas directe, c'est pourquoi on parle d'échantillonnage en temps équivalent.

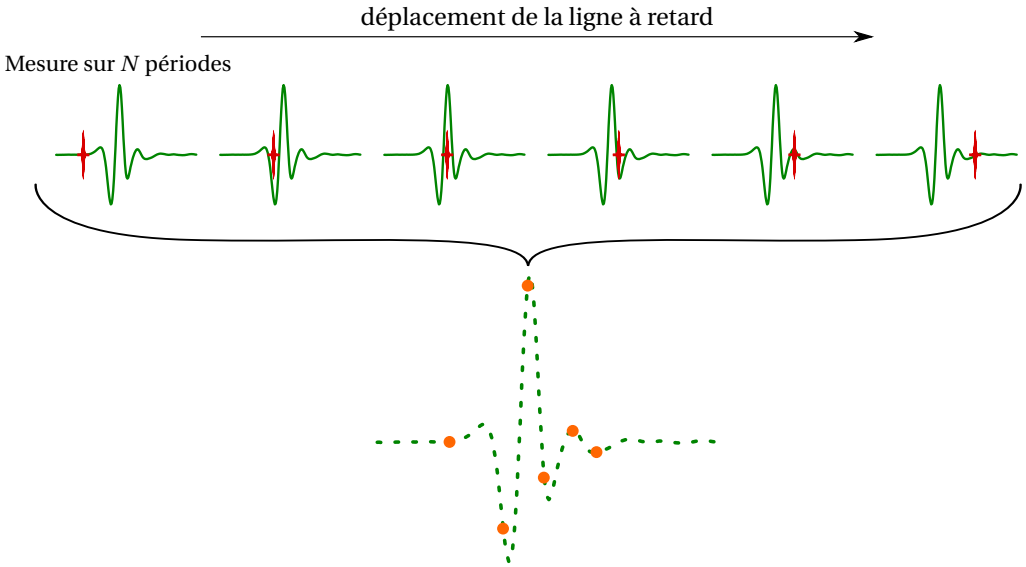


FIGURE 5.6 – Principe de l'échantillonnage en temps équivalent réalisé lors d'une acquisition d'un signal de TDS.

Faisceau THz

Une des difficulté des expériences de TDS vient du fait qu'il n'existe pas de moyens simples pour visualiser le faisceau THz. Une des méthodes usuelles pour aligner le faisceau dans le THz, consiste à remplacer l'antenne par un diffuseur qui agit comme un point source dans le proche IR. On considère par la suite que le proche-IR se propage de la même façon que le faisceau THz. Cette approximation est

bonne et permet d'aligner correctement les miroirs paraboliques. Nous avons pu caractériser et imager le spot THz au niveau de la focalisation sur l'échantillon en plaçant une caméra THz à cette position. Cette caméra a été mise au point par une équipe du CEA-LETI. Elle permet d'ajuster directement la position des miroirs paraboliques à partir du champ THz émis par l'antenne. Quand le réglage est optimisé, on obtient un spot bien circulaire (figure 5.7.a).

Ce détecteur est composé d'une matrice de micro-bolomètres (320×240 pixels avec un pas de 50 μm) dont la réponse spectrale est centrée sur 2 THz [Oden 2013]. Les données acquises sur notre montage par la caméra montre un profil gaussien avec une largeur à mi-hauteur de 350 μm. L'optimisation de la taille du spot est critique lorsqu'on veut coupler le faisceau THz dans une structure sub-longueur d'onde (telle que les guide d'onde double-métal des LCQ, voir chapitre 6) et cette caméra THz constitue un outil pour caractériser directement la focalisation du faisceau THz. La figure 5.7.b montre qu'un parabolique déréglé conduit à la formation d'un spot plus étalé. De plus, grâce à la calibration de cette caméra, la puissance des antennes peut être mesurée. La puissance moyenne de nos antennes inter-digitées est ainsi évaluée à 2 μW.

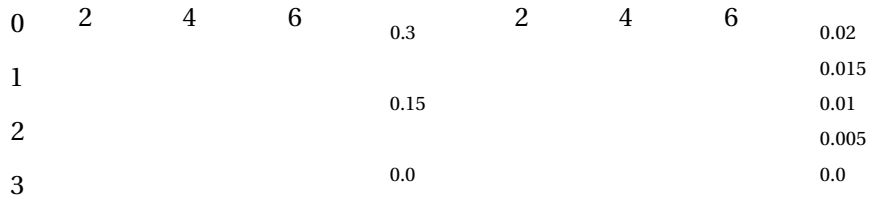


FIGURE 5.7 – Image 2D d'acquisition d'un faisceau THz dans un montage de TDS. (a) faisceau correctement aligné, (b) miroir parabolique désaligné. Échelle en mm

5.1.3 Amélioration du montage

Au cours de ce travail de thèse, plusieurs modifications ont été effectuées sur le montage pour l'adapter aux échantillons étudiés.

Optimisation du spectre THz

Pour étudier des LCQ émettant au-delà de 3.5 THz ou pour sonder des absorptions à hautes fréquences, il est nécessaire d'augmenter la bande-passante de la TDS. Un des facteurs limitant est l'étalement de l'impulsion THz lorsqu'elle se propage dans le substrat de l'antenne (voir figure 5.1). L'indice de réfraction dans le GaAs n'est pas constant, il y a notamment une divergence lorsqu'on s'approche de la bande d'absorption par les phonons ($\sim$ 9 THz). La figure 5.8 montre cette variation. La dispersion au cours de la propagation provoque un étalement temporel de l'impulsion THz et il en résulte un rétrécissement du spectre dans l'espace de Fourier [Wu 1997].

Pour limiter cette dispersion, l'antenne peut être utilisée en réflexion [Shen 2003]. L'antenne THz émet des deux faces du substrat lorsqu'elle est illuminée. Si l'émission THz est collectée du même côté que la face excitée alors l'impulsion THz n'est pas dispersée dans le substrat. De manière pratique, le montage doit être légèrement modifié pour pouvoir exciter et collecter du même côté. Pour se faire, la pompe NIR passe à travers un trou qui est percé dans le miroir parabolique de collection. Les spectres

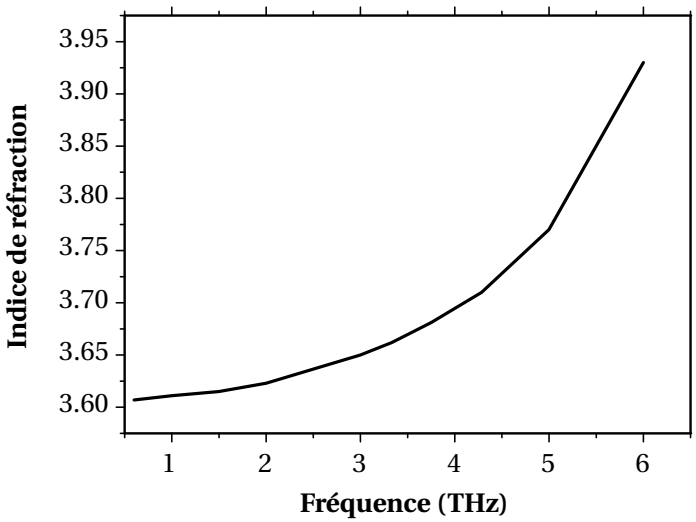


FIGURE 5.8 – Dispersion de l'indice de réfraction dans le GaAs aux fréquences THz

présentés sur la figure 5.9 montrent la comparaison entre les spectres en transmission et en réflexion pour un même cristal (celui de GaP 100 µm). Le pic de détection est déplacé vers les plus hautes fréquences lorsque l'antenne émet en réflexion. On compare également le spectre "normal" (avec le cristal de ZnTe) et le spectre optimisé pour les hautes fréquences. À partir de 3 THz, le signal est plus intense en absolu avec le cristal de GaP.

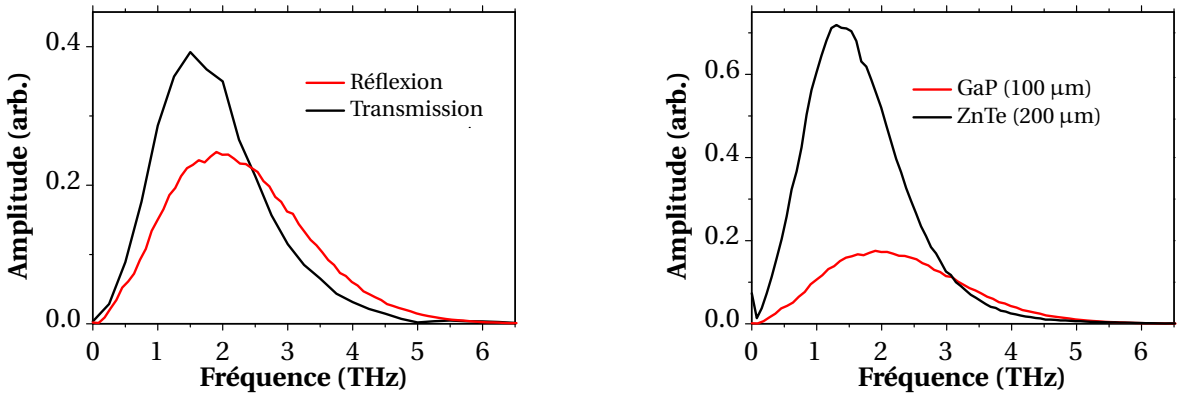


FIGURE 5.9 – À gauche, spectres du signal avec un cristal de GaP (antenne en transmission et en réflexion). À droite, comparaison du spectre du signal avec un cristal de ZnTe (antenne en transmission) et un cristal de GaP (antenne en réflexion).

Il y a quelques contreparties à cette configuration. Tout d'abord le niveau de signal est un peu plus faible. En effet, lors de la génération de l'impulsion THz au niveau de l'antenne, une plus grande partie est couplée dans le substrat de GaAs que dans l'espace libre. Nous verrons aussi dans le paragraphe suivant que cette grande portion couplée dans le substrat augmente l'impact des échos.

Augmentation de la résolution spectrale - limitation des échos

La résolution spectrale des acquisitions dépend de la fenêtre temporelle sur laquelle est enregistrée le signal. La résolution spectrale est donnée par : $\Delta f = 1/T$ avec T la largeur de la fenêtre temporelle. Cependant la fenêtre temporelle est limitée par la présence d'échos de l'impulsion principale. Lorsque

le premier écho apparaît, les oscillations provenant du pic principal ne peuvent plus être détectées car elles sont confondues dans l'impulsion retardée (voir figure 5.10).

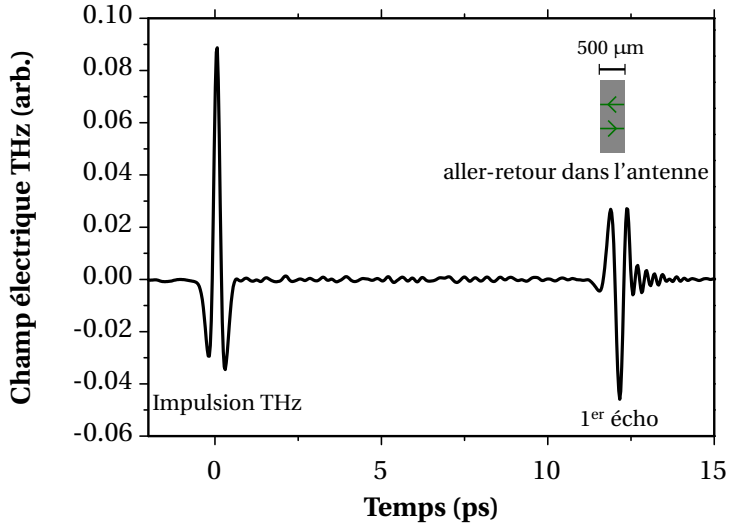


FIGURE 5.10 – Trace temporelle d'une impulsion THz générée par une antenne en réflexion dans l'espace libre et son écho correspondant à l'impulsion THz émise dans le substrat puis réfléchi sur la face opposée.

Ces échos sont dus aux réflexions de l'impulsion principale sur les interfaces GaAs/air du substrat de l'antenne. Ils apparaissent avec un retard $\tau = \frac{2nl}{c}$, avec n l'indice du GaAs, l, l'épaisseur du substrat et c, la vitesse de la lumière. Cela correspond à la propagation aller-retour dans le substrat. Pour un substrat classique de 500 µm, le premier écho arrive avec un retard de 12 ps.

Pour augmenter la résolution spectrale, il faut donc augmenter le retard τ. Une méthode usuelle est de coller un substrat de silicium épais (1 mm) derrière le substrat. Cette méthode fonctionne bien en transmission car le silicium disperse peu l'impulsion THz. Cependant lorsqu'on travaille en réflexion, l'interface GaAs/Si provoque encore un écho marqué qui limite la fenêtre temporelle. L'autre approche est d'utiliser un substrat plus épais pour la fabrication des antennes. On utilise un substrat d'1 mm d'épaisseur, ce qui repousse le premier écho à 24 ps. La résolution spectrale est alors de l'ordre de $\Delta f = 35$ GHz.

TDS en réflexion

Pour terminer cette section, nous présentons une autre configuration du montage où l'échantillon n'est pas étudié en transmission mais en réflexion. Cela peut être d'un grand intérêt quand l'échantillon est monté sur un support non transparent. Par exemple, nous avons caractérisé l'absorption de cavités hybrides électronique-photonique dans le THz grâce à cette technique [Strupiechonski 2013]. Ces cavités sont des résonateurs LC et sont opaques en transmission à cause du plan métallique sur lequel ils sont fabriqués. Le montage modifié est présenté sur la figure 5.11. Dans cette géométrie, le déplacement spatial de l'échantillon provoque généralement un déphasage temporel sur le système de détection entre le faisceau THz et la sonde NIR, ce qui complique l'alignement de l'échantillon sur le faisceau THz. Pour faciliter cette étape, nous utilisons une ligne à retard rapide qui permet d'obtenir la trace temporelle du signal THz en temps réel. Cette ligne à retard est constituée d'un rétro-réflecteur fixé sur un matériau

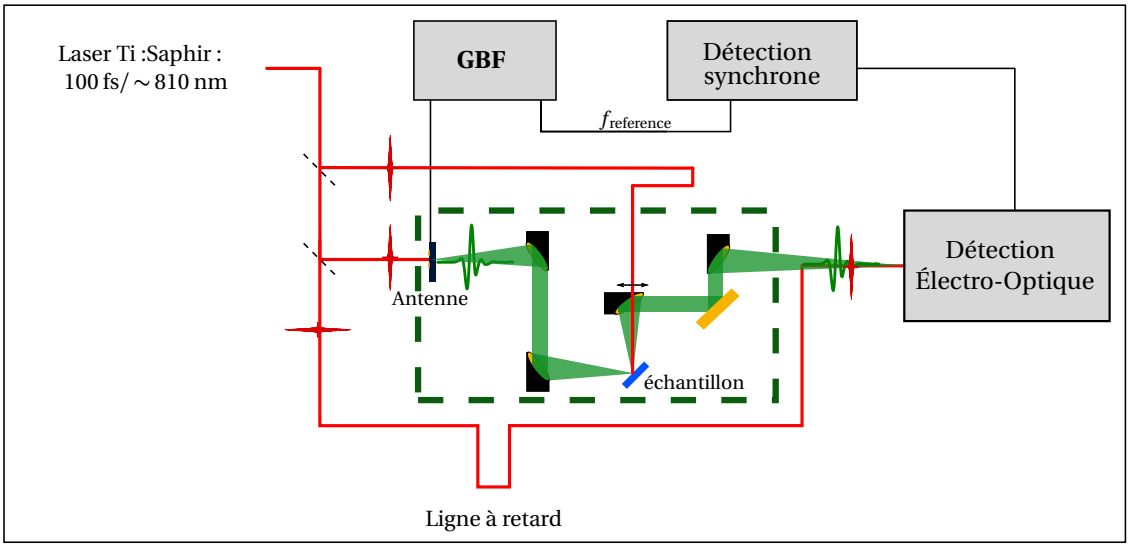


FIGURE 5.11 – Schéma du montage expérimental "pompe-sonde" en réflexion. L'échantillon est pompé avec un faisceau proche IR puis sondé avec l'impulsion THz.

piézo-électrique qui oscille à une fréquence de 15 Hz et dont la position est accessible grâce à une sortie analogique. La constante de temps d'intégration de la détection synchrone est choisie pour être très inférieure à la période de ces oscillations. La sortie de la détection synchrone est reliée à une carte d'acquisition qui permet de tracer sur ordinateur la valeur du champ THz en fonction de la position de la ligne à retard rapide. Cette méthode d'acquisition est utile car l'ensemble du signal est observé en temps réel lors des étapes d'alignement, et par conséquent le déphasage temporel du maximum du signal ne pose pas de problèmes. Cependant, cette acquisition nécessite des temps d'intégration courts sur la détection synchrone et limite le rapport signal à bruit. Cette ligne à retard rapide est donc maintenue immobile lorsqu'on veut mesurer avec un faible niveau de bruit.

Une pompe proche IR peut être rajoutée sur le montage pour exciter optiquement l'échantillon étudié et observer comment la réflectivité change dans le THz [2]. L'impulsion du laser Ti :Sa est alors séparée en trois chemins. Sur le chemin de la pompe, une ligne à retard est également présente pour ajuster le retard entre l'impulsion pompe sur l'échantillon et la sonde THz. Des traces temporelles sont enregistrées en fonction de ce retard et donc en fonction du niveau de relaxation du système excité optiquement. Ces expériences de pompe-sonde sont utiles pour étudier la dynamique de porteurs dans des structures de semiconducteurs [Porer 2012]. La figure 5.12 présente un exemple de mesure pompe-sonde. Le changement de réflectivité d'une sonde THz est tracé en fonction du retard des impulsions de la pompe proche-IR à 300 K. Un ajustement exponentiel décroissant (courbe en rouge) permet de déterminer le temps de vie des porteurs dans le GaAs. Dans cet exemple, le temps caractéristique de l'ajustement vaut 290 ps.

5.2 Étude de LCQ par spectroscopie THz

Nous allons voir dans cette section un aperçu d'une étude que l'on peut réaliser avec un montage de TDS. Nous montrerons comment la spectroscopie TDS THz est utile pour étudier le gain et les pertes totales des lasers à cascade quantique. La TDS constitue en effet un outil de caractérisation performant

2. Les expériences de pompe-sonde peuvent aussi être réalisées lorsque l'échantillon est étudié en transmission.

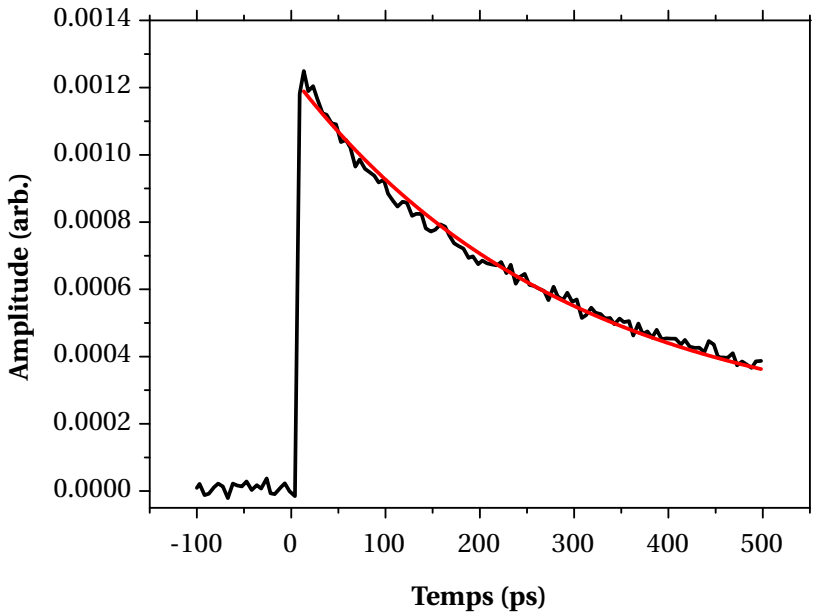


FIGURE 5.12 – Amplitude différentielle du signal THz réfléchi sur un substrat de GaAs en fonction du retard d'une pompe proche-IR. Les données sont ajustées par une courbe exponentielle décroissante (rouge).

pour obtenir des informations sur l'alignement de la structure de bande en dessous et au-dessus du seuil laser.

5.2.1 Mesure de gain

Quelques années après la mise au point du laser à cascade quantique THz [Köhler 2002], les mesures de gain ont été réalisées pour la première fois à l'université de Vienne dans le groupe de K. Unterrainer [Kröll 2007] et en parallèle dans le groupe THz du LPA [Jukam 2008b].

Le principe de la mesure est de coupler l'impulsion THz générée par l'antenne photo-conductrice dans la cavité du LCQ. On mesure la transmission de l'impulsion THz à travers le LCQ qui est un milieu à gain pour certaines fréquences. Comme l'émission THz du LCQ n'est pas verrouillée en phase avec la sonde proche-IR, l'échantillonnage de la mesure rend notre détection insensible à l'émission du LCQ (voir figure 5.13). Ceci est un avantage car la détection ne sera pas perturbée par l'émission du LCQ et notre mesure donnera uniquement l'amplification de l'impulsion THz externe par le milieu à gain. Cette technique est donc puissante pour caractériser les LCQ THz.

5.2.1.1 Protocole expérimental

Pour faire les mesures de gain, le montage est utilisé en configuration "transmission". L'impulsion THz est couplée dans le ruban du LCQ, puis est transmise dans le LCQ où elle est amplifiée par le gain du laser (voir figure 5.14). Pour les lasers à guide simple plasmon (voir chapitre 1), le ruban fait 10 µm d'épaisseur de 250 µm de large. Pour pouvoir repérer une si petite surface, une feuille d'or percée d'un trou d'un diamètre de 200 µm est centrée sur la facette, ce qui limite la transmission du THz autour du ruban et dans le substrat.

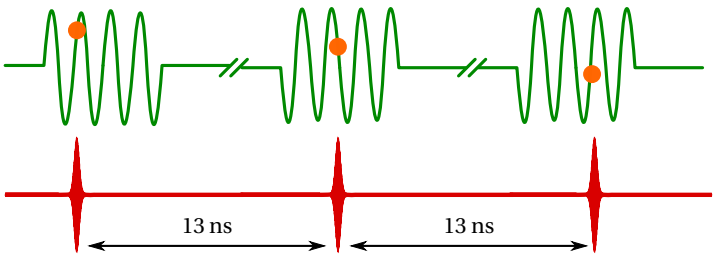


FIGURE 5.13 – Échantillonnage d'un signal non synchronisé en phase avec la sonde NIR : pour un même délai sur la ligne à retard, la sonde mesure des points différents d'une période à une autre, conduisant à une valeur moyenne nulle.

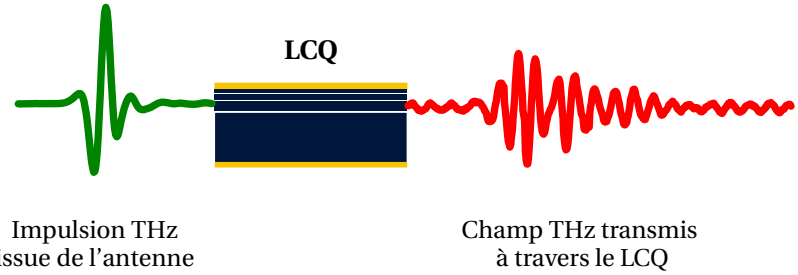


FIGURE 5.14 – Schéma de principe des mesures de gain des LCQ.

L'impulsion transmise à travers le LCQ est retardée d'un temps $\tau = \frac{(n-1)L}{c}$ par rapport à l'impulsion principale (avec n, l'indice du LCQ et L sa longueur). La figure 5.15 montre une longue acquisition à travers un LCQ de 3 mm. L'impulsion transmise se situe juste après le premier écho ce qui permet d'éviter de mélanger les deux signaux. La connaissance approximative de l'indice et l'épaisseur de l'échantillon permet de savoir où se trouve le signal utile dans la trace temporelle. Ceci constitue un avantage de la TDS car le signal est filtré par la fenêtre temporelle choisie, éliminant les échos parasites.

Cette trace temporelle montre la difficulté liée au couplage dans la cavité du LCQ. La taille de la région active étant de l'ordre de la longueur d'onde, seulement une fraction de l'impulsion THz focalisée sur la facette du ruban sera couplée. Comme on l'a vu lors des chapitres précédents, le mode THz dans les guides simple plasmon s'étend dans le substrat ce qui facilite en partie le couplage. Le substrat guide en partie l'onde THz le long du ruban. On estime l'efficacité de couplage à 5 % en mesurant l'amplitude du champ THz transmis à travers le LCQ allumé après un seul passage et en le comparant au champ transmis dans le trou sans échantillon.

5.2.1.2 Mesure différentielle et Calcul du gain

Le gain du laser est étroit spectralement par rapport à l'impulsion initiale et ne se situe généralement pas au maximum de la bande de détection du système. C'est pourquoi, il est difficile de discerner la différence entre le signal transmis quand le LCQ est allumé (i.e. quand il y a du gain) et quand il est éteint. De plus, une partie de l'impulsion THz est transmise par le substrat où il n'y a pas de gain, ce qui réduit les différences observées sur le signal transmis en fonction de la tension appliquée sur le LCQ. Pour gagner en sensibilité, on utilise une méthode de mesure différentielle appelée "$f-2f$". La fréquence f représente la fréquence de modulation du créneau de tension appliquée au LCQ et $2f$ la fréquence de la tension appliquée à l'antenne. Le rapport cyclique du LCQ est deux fois plus faible que

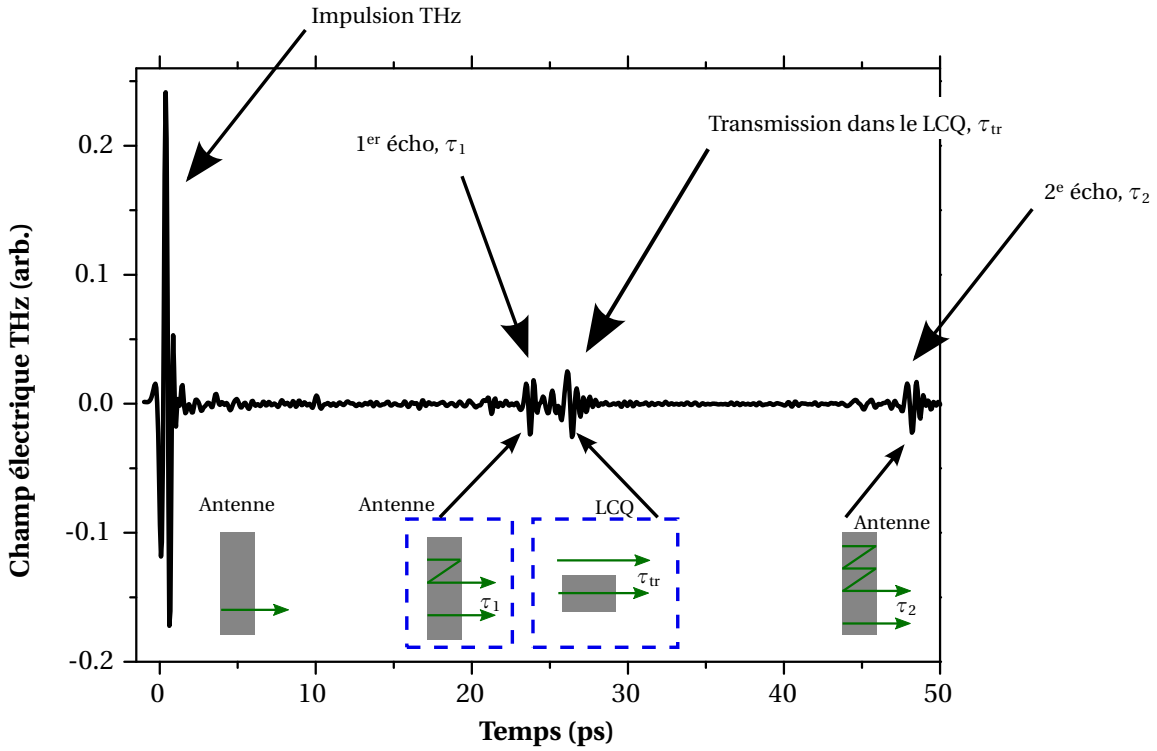


FIGURE 5.15 – Signal temporel d'une impulsion se propageant à travers et autour d'un LCQ éteint de 3 mm de long placé dans un petit trou de 200 µm de diamètre.

celui de l'antenne pour que les impulsions aient la même durée. Typiquement, un créneau de tension à 10 kHz de 25 % est appliqué sur le LCQ et un créneau à 20 kHz de 50 % sur l'antenne. La fréquence de référence de la détection synchrone est celle appliquée sur le LCQ. Ainsi, la mesure de la DS correspond à la différence entre l'impulsion THz transmise, quand le LCQ est allumé (E_{LCQ}), et quand le LCQ est éteint (E_{ref}), soit :

$$S_{\mathrm{diff}}(t) = \pm(E_{\mathrm{LCQ}}(t) - E_{\mathrm{ref}}(t)) \,. \tag{5.3}$$

L'incertitude du signe devant le signal, vient de la phase de la référence de la détection synchrone. Le champ électrique transmis quand le LCQ est allumé s'écrit :

$$E_{\mathrm{LCQ}}(\omega) = t_{\mathrm{in}}\, t_{\mathrm{out}}\, \mathrm{e}^{-\alpha L/2}\, \mathrm{e}^{\gamma L/2}\, E_{\mathrm{input}}(\omega) \,, \tag{5.4}$$

avec $E_{\mathrm{input}}(\omega)$ le champ de l'impulsion à l'entrée du ruban, t_{in} et t_{out} les constantes de couplages et d'extraction de l'impulsion dans le guide THz, α les pertes du guide d'onde, γ le gain du LCQ et L la longueur du LCQ. De manière similaire, quand l'impulsion est transmise dans le LCQ éteint, on obtient :

$$E_{\mathrm{ref}}(\omega) = t_{\mathrm{in}}\, t_{\mathrm{out}}\, \mathrm{e}^{-\alpha L/2}\, E_{\mathrm{input}}(\omega) \,. \tag{5.5}$$

La valeur du gain est obtenue en divisant les équations 5.4 et 5.5 :

$$\gamma(\omega) = \frac{2}{L} \ln\left(\frac{E_{\mathrm{LCQ}}(\omega)}{E_{\mathrm{ref}}(\omega)}\right) \,. \tag{5.6}$$

le champ E_{ref} est mesuré en polarisant l'antenne à la fréquence f et avec le même rapport cyclique

que celui utilisé pour le LCQ. Le champ E_{LCQ} est calculé à partir du signal différentiel : $E_{\mathrm{LCQ}}(\omega) = \mathrm{TF}(S_{\mathrm{diff}}(t) \pm E_{\mathrm{ref}}(t))$. Pour lever l'incertitude du signe, nous calculons les deux cas et la solution non-physique est écartée (celle où il n'y a pas de gain pour les fréquences attendues).

5.2.1.3 Exemple de résultats sur l'échantillon V455

Pour montrer les résultats qu'on peut obtenir à partir de la TDS, nous présentons des mesures de gain effectuées sur l'échantillon V455 provenant d'un dessin BTC émettant à 2 THz [Worrall 2006]. Plus de détails sont disponibles dans la thèse de doctorat de Julien Madéo [Madéo 2011]. Cet échantillon sera également étudié dans le chapitre suivant sur le contrôle de la phase d'émission des LCQ. La croissance et la fabrication de ce laser ont été réalisées par l'université de Cambridge. La structure de bande, simulée dans le chapitre 1 pour illustrer le fonctionnement des LCQ BTC, est représentée sur la figure 5.16. La simulation est le résultat d'une résolution numérique de l'équation de Schrödinger dans le potentiel formé de trois périodes de la structure totale qui compte une centaine de périodes.

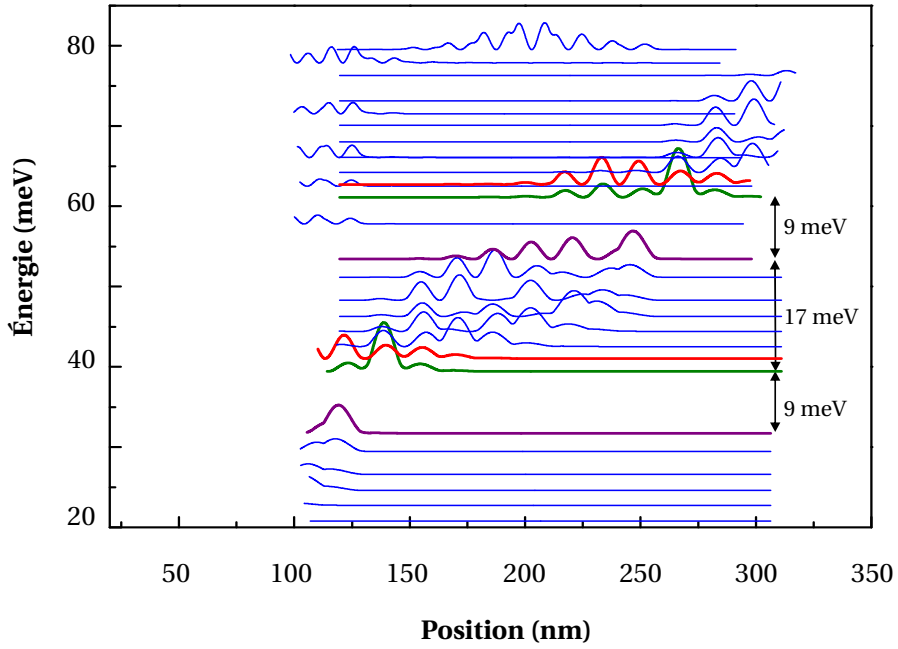


FIGURE 5.16 – Structure de bande de l'échantillon V455 simulée par résolution numérique de l'équation de Schrödinger. La zone orange représente la zone d'émission, la verte le puits d'injection et en bleu clair la zone de transport. De droite à gauche et commençant par la barrière d'injection, le dessin des barrières d'$Al_{0.1}Ga_{0.9}As$ (en gras) et des puits GaAs est le suivant (en nm) : **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. Les puits munis d'un astérisque sont dopés n à hauteur de 1.3×10^{16} cm^{-1} (dopage non-pris en compte pour la simulation).

Le gain spectral est mesuré pour plusieurs densités de courant appliquées au LCQ correspondant à trois comportements différents : (1) sous le seuil (482 mA), (2) au courant d'émission maximale (621 mA) et (3) au-delà de la densité de courant permettant l'émission (654 mA). La caractéristique LVI de l'échantillon est représentée sur la figure 5.17.a. Ce LCQ a pour dimension 2 mm de long et 250 µm de large.

La figure 5.17.b montre la trace temporelle pour les trois densités de courant évoquées précédemment. Elles se différencient par leur amplitude et la durée des oscillations. Lorsque l'amplification est maximale (émission maximale du LCQ), le signal a une amplitude plus grande et surtout est plus étalé

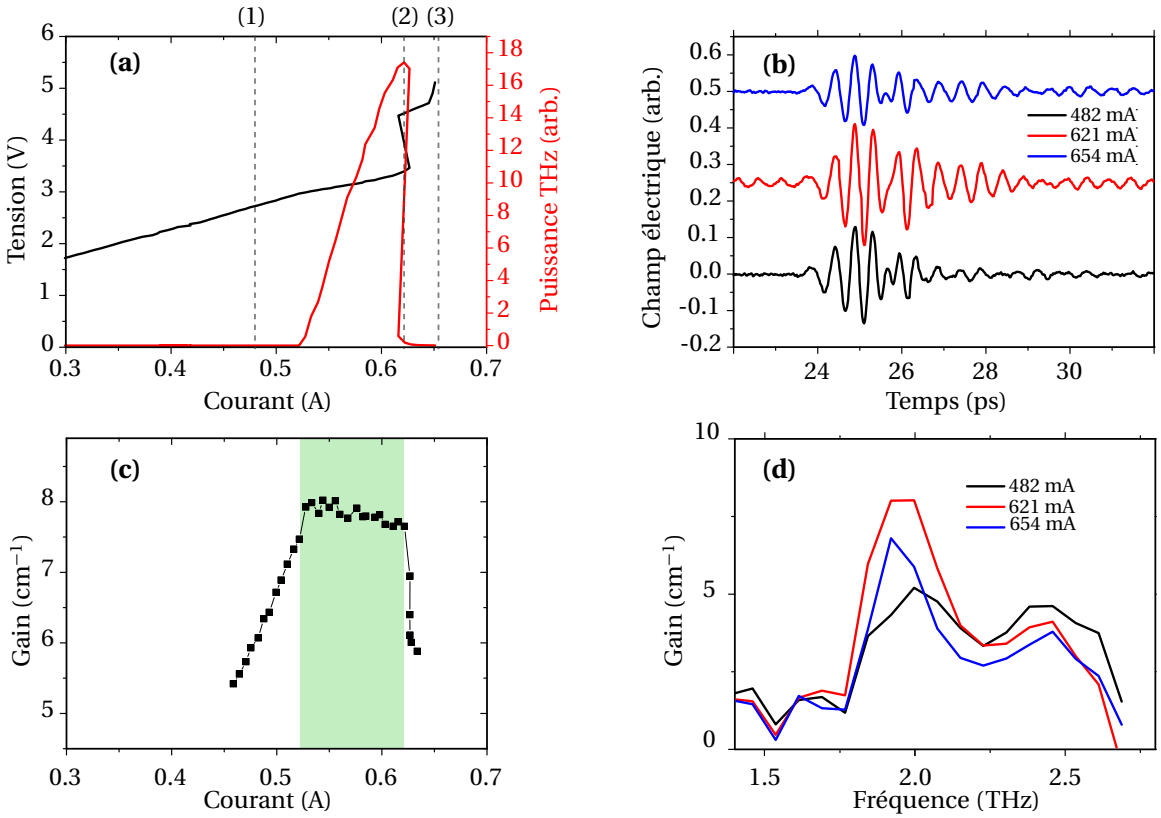


FIGURE 5.17 – **(a)** Caractéristique LVI d'un échantillon V455 de 2 mm de long et 250 µm de large. Les lignes pointillées correspondent aux trois comportements décrits dans le texte. **(b)** Traces temporelles des trois situation (1),(2) et (3) (avec un décalage pour plus de lisibilité) et calculs du gain associé à ces mesures **(d)**. **(c)** Gain en fonction du courant pour pour la fréquence d'émission (∼ 2 THz). Détection réalisée avec un cristal de GaP 100 µm.

dans le temps. Cela traduit un rétrécissement dans le spectre autour de la fréquence d'émission dans le domaine fréquentiel.

Les courbes de gain en fonction de la fréquence sont représentées sur la figure 5.17.d. Sous le seuil, le gain est relativement plat avec une petite épaule vers 2 THz. Lorsque le seuil est atteint, on remarque une amplification maximale pour la fréquence d'émission (1.98 THz). C'est pour cette densité de courant que la structure est alignée. La largeur à mi-hauteur du gain à cette fréquence est d'environ 300 GHz, ce qui correspond à la littérature pour d'autres LCQ [Jukam 2008a]. Lorsque la densité de courant dépasse la plage de fonctionnement, le gain diminue et se rétrécit. Cela est dû à un désalignement de la structure [Jukam 2008a]. La figure 5.17.c, présente la valeur du gain en fonction de la densité de courant à la fréquence de l'émission du LCQ. Lorsqu'il y a émission laser, le gain est saturé aux pertes, ce qui donne un plateau (partie colorée en vert clair). Cette valeur du gain peut être comparée aux pertes totales du guide. Les pertes du guide sont évaluées grâce aux simulations présentées au chapitre 1. Pour ce guide simple plasmon dont le substrat est très peu dopé, les pertes sont de $\alpha_g = 4.1\ \mathrm{cm}^{-1}$. Les pertes par réflectivité ($R = 0.32$) sont reliées à la longueur du guide ($L = 2$ mm) par la relation : $\alpha_m = \frac{1}{L}\ln(\frac{1}{R}) = 5.7\ \mathrm{cm}^{-1}$. Les pertes totales sont donc évaluées à $\alpha_{\mathrm{tot}} = \alpha_g + \alpha_m = 9.8\ \mathrm{cm}^{-1}$, ce qui est en bon accord avec le gain mesuré ($g = 8\ \mathrm{cm}^{-1}$). La différence peut s'explique par une sous-estimation du gain due au couplage de l'onde THz externe à des modes du guides différents du mode fondamental du laser [Jukam 2008b].

5.2.2 Intérêt de la TDS pour la caractérisation des LCQ

Les brefs résultats présentés dans le paragraphe précédent donnent un aperçu des informations qui peuvent être obtenues sur les LCQ avec la spectroscopie THz dans le domaine temporel. On accède ainsi au gain du laser sur une large bande de fréquences en fonction du champ appliqué sur la structure ce qui permet de mieux comprendre son alignement [Jukam 2009a]. Ces mesures de gain peuvent également montrer des absorptions dans la structure de bande qui peuvent être des défauts à corriger sur le dessin du LCQ. Le dispositif expérimental dans cette configuration permet d'observer l'amplification au-dessus du seuil laser sans être gêné par l'émission du LCQ.

L'étude du gain présentée ci-dessus apporte des informations sur le comportement stationnaire du laser. La TDS a un intérêt supplémentaire car elle peut sonder la dynamique du laser à cascade quantique et déclencher l'action laser d'un LCQ, comme nous le verrons dans le chapitre 6. Dans ce cas là, il faut synchroniser l'alimentation du LCQ avec les impulsions THz. Nous montrerons dans le chapitre suivant comment de telles mesures peuvent être réalisées.

CHAPITRE 6

Contrôle de la phase d'un LCQ à guide double-métal

Dans un système laser, la construction du champ dans la cavité a généralement pour origine l'émission spontanée. La phase de l'émission spontanée est fondamentalement aléatoire. Le champ laser dans un LCQ est issu de l'amplification d'une émission spontanée et par conséquent la phase de l'émission cohérente du laser est aléatoire et change à chaque fois que le laser est allumé. Nous avons vu au chapitre précédent que dans ce cas là, l'émission du LCQ n'est pas détectable par un échantillonnage cohérent dans le domaine temporel (ce qui permet par ailleurs de réaliser des mesures du gain des LCQ, en particulier au-dessus de leur seuil). Néanmoins, il a été montré que la phase d'émission d'un LCQ à guide simple plasmon pouvait être contrôlée en injectant optiquement une onde THz externe dans la cavité [Oustinov 2010]. Cette onde, dont la phase est fixée, remplace l'émission spontanée pour initier le champ laser. Par conséquent, l'émission du LCQ peut être détectée par spectroscopie dans le domaine temporel. Cela ouvre la voie à de nouvelles applications pour la TDS car les LCQ sont des sources compactes beaucoup plus puissantes que les antennes photoconductrices (jusqu'à ~ 100 mW contre ~ 1 µW pour les antennes photoconductrices).

Les LCQ les plus efficaces en température ($T_{\max} = 200$ K) sont ceux dont les guides d'onde sont formés par deux plans métalliques [Williams 2005], car le confinement optique est meilleur et la chaleur mieux dissipée. Ces guides ont toutefois des inconvénients en terme d'extraction de puissance et de directivité du faisceau de sortie [Adam 2006] à cause des dimensions sub-longueur d'onde du guide. Un autre problème apparaît lorsqu'on veut étudier ces LCQ par spectroscopie THz : il est très difficile de coupler une impulsion THz externe dans la cavité. Par conséquent, on ne peut pas mesurer la transmission d'une impulsion THz à travers le LCQ ou bien contrôler la phase d'émission de ces LCQ par injection optique THz.

Nous allons voir dans ce chapitre, que la phase d'émission des LCQ double-métal peut être contrôlée en augmentant le couplage avec l'extérieur grâce à une géométrie originale. Une adaptation d'impédance entre les modes du guide et l'espace libre est réalisée en gravant une rainure sur les extrémités du contact métallique supérieur. Cette rainure a une forme de "V" qui forme ainsi des antennes au dessus des facettes.

Nous montrerons d'abord, comment la phase de l'émission d'un LCQ THz peut être contrôlée, dans le cas général, grâce au montage de spectroscopie THz dans le domaine temporel. Nous ferons un rapide

état de l'art sur les expériences réalisées sur des LCQ à guide simple plasmon. Nous exposerons ensuite les problèmes de champs lointains et de couplages liés à la géométrie des guides d'onde double-métal. Nous présenterons les solutions apportées par la littérature et décrirons la géométrie choisie dans notre cas pour augmenter le couplage dans la cavité. Enfin, nous montrerons des résultats sur le contrôle de la phase d'émission d'un LCQ à guide double-métal. Nous montrons que ce contrôle est possible au moins jusqu'à 77 K.

6.1 Principe de l'expérience du contrôle de la phase d'un LCQ

Pour tout système laser, le champ électromagnétique dans la cavité est initié par un photon provenant de l'émission spontanée du milieu à gain. La phase du champ est fixée par la phase aléatoire de cette émission spontanée. De ce fait à chaque fois que le LCQ est allumé, la phase du champ en sortie change, avec un caractère aléatoire. C'est pourquoi le champ du LCQ n'est pas détectable par notre montage de TDS et que les LCQ ne peuvent pas être utilisés comme source THz dans ce cas (figure 6.1.c). Le principe de base de l'expérience est d'injecter dans la cavité, un champ THz externe dont la phase est

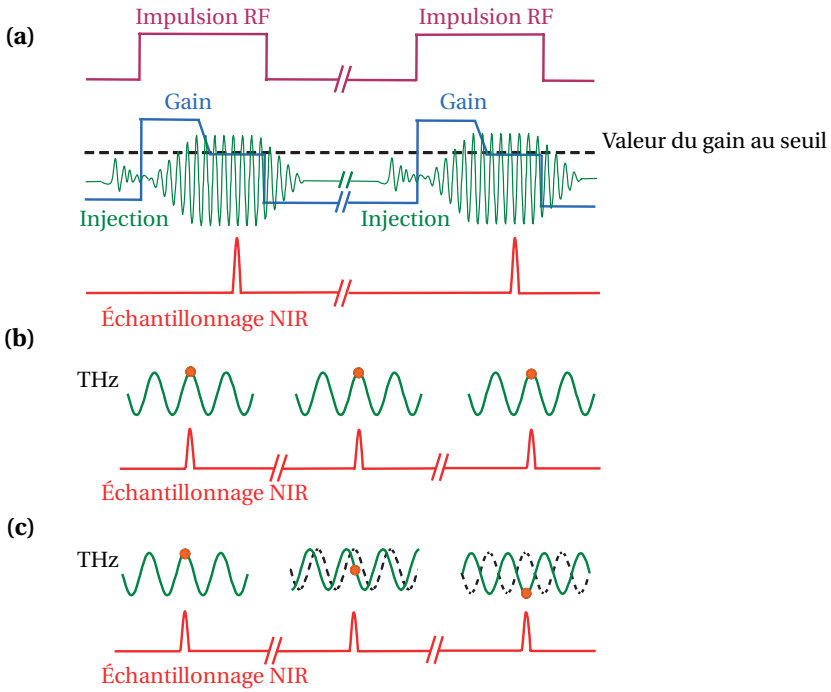


FIGURE 6.1 – Principe de l'amorçage du champ du LCQ : (a) une impulsion THz est injectée dans la cavité du LCQ peu avant que le LCQ soit allumé et amorce ainsi le champ laser. La phase de l'émission LCQ est fixée par cette injection. (b) La phase est alors synchronisée avec les impulsions fs du faisceau de sonde servant à la détection électro-optique cohérente. (c) Émission d'un LCQ non-synchronisé avec les impulsions fs : la détection électro-optique mesure une valeur moyenne nulle. (*Figure issue de [Oustinov 2010]*)

connue, juste avant que le LCQ soit porté au-dessus de son seuil par une impulsion radiofréquence (RF) synchronisée (figure 6.1.a). Si le champ injecté est plus intense que l'émission spontanée, alors la phase en sortie du LCQ sera imposée par la phase de l'onde THz externe. La phase de l'émission est alors fixe et le champ du LCQ en sortie peut être échantillonné par la détection électro-optique de notre montage (figure 6.1.b).

Dans le paragraphe suivant, nous décrivons plus précisément le montage expérimental utilisé pour

réaliser le contrôle de la phase.

6.1.1 Dispositif Expérimental

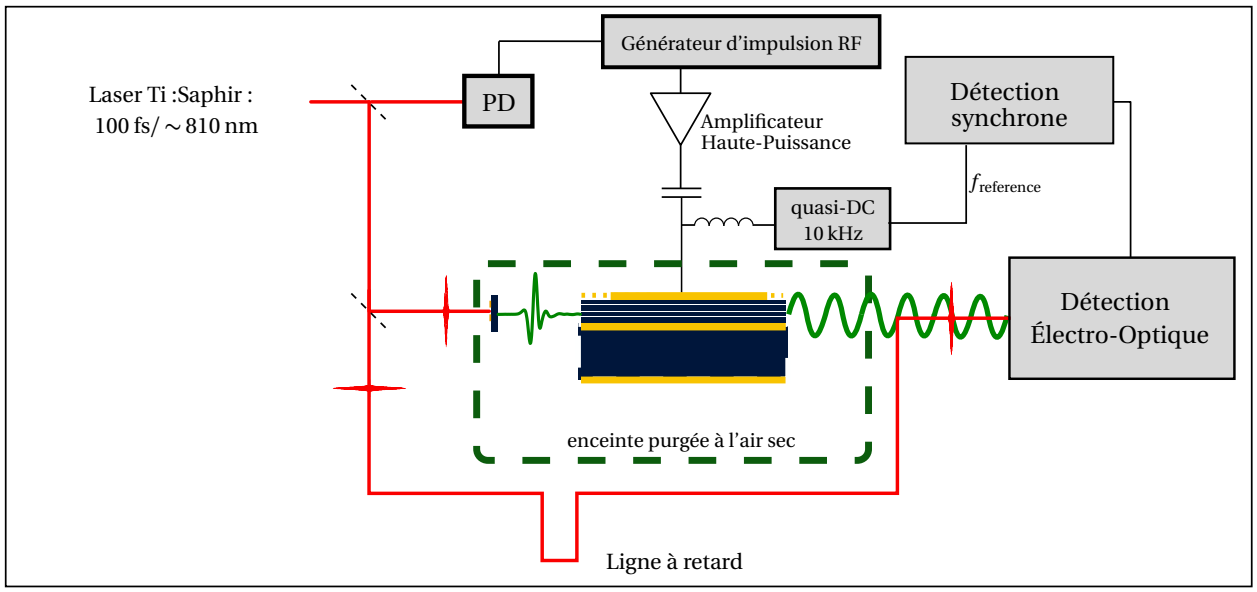


FIGURE 6.2 – Schéma du montage expérimental de spectroscopie THz qui permet de mesurer l'émission du LCQ. Les impulsions RF sont déclenchées par une photodiode rapide illuminée par les impulsions fs. Un "té" de polarisation somme les impulsions RF avec une tension quasi-DC. Les impulsions THz générées par une antenne photoconductrice sont couplées dans la cavité au moyen de miroirs paraboliques (non représentés dans l'enceinte purgée pour plus de clarté). Le champ de sortie du LCQ est mesuré par une détection électro-optique (cristal de ZnTe).

Pour pouvoir contrôler la phase du LCQ, il faut commuter le gain de la structure au-dessus de son seuil. La commutation doit s'effectuer sur des temps courts, correspondant au temps de vie de l'impulsion THz initiatrice dans la cavité. Cela est réalisé en appliquant sur le LCQ des impulsions radiofréquences (RF). Ces impulsions RF mettent le LCQ dans un régime transitoire qui permet une large amplification dans la cavité [Jukam 2009b]. En effet, lorsque LCQ entre dans ce régime transitoire, le gain est plus important car il n'est pas encore saturé aux pertes de la cavité. Le schéma de la figure 6.2 présente le montage expérimental.

Par rapport au montage classique de spectroscopie THz, le faisceau proche-IR est séparé en trois parties. Une faible portion (quelques mW) de l'impulsion fs est focalisée sur une photodiode rapide pour déclencher un générateur d'impulsion RF. Ce générateur délivre des impulsions au même taux de répétition que le laser Ti :Saphir ($\sim$ 76 MHz). La durée des impulsions est de l'ordre quelques nanosecondes avec un temps de montée d'une nanoseconde. Ce temps de montée peut être diminué en utilisant un comparateur électronique rapide qui génère des impulsions ayant des temps de montée d'environ 300 ps. Le comparateur mesure deux signaux en entrée. Il donne en sortie une valeur positive si la différence entre les deux entrées est positive et zéro si la différence est négative. Une des entrées est reliée à la sortie du générateur RF et l'autre à la masse. En sortie du comparateur, on obtiendra la même largeur d'impulsion que celle du générateur RF mais avec des temps de montée et de descente plus court. La contrepartie d'utiliser ce comparateur est que l'amplitude des impulsions en sortie ne peut être ajustée autrement qu'en ajoutant des atténuateurs électroniques. Ces atténuateurs ont des valeurs fixes, il est alors difficile de contrôler l'amplitude des impulsions précisément. Pour cette raison, le comparateur ne sera utilisé

que lorsqu'il est nécessaire d'avoir un temps de montée court (voir paragraphe 6.3.4).

Les impulsions RF sont modulées à la fréquence de référence (10 kHz) puis sont amplifiées. La modulation sert à éviter que l'amplificateur haute puissance ne fonctionne en permanence. Le signal RF est ensuite additionné à une tension quasi-continue (10 kHz) au moyen d'un "té" de polarisation. La forme du signal appliqué sur le LCQ est représentée sur la figure 6.3. L'amplificateur haute puissance donne en sortie, une valeur moyenne du signal RF nulle. Le signal est donc négatif entre deux impulsions RF. La tension quasi-continue permet de réduire la puissance des impulsions RF et est fixée juste en dessous du seuil de sorte que le LCQ soit porté à son courant de maximum d'émission lors d'une impulsion RF. Les signaux électriques sont transmis par des câbles coaxiaux avec des connecteurs SMA. Ces derniers ont de meilleurs transmissions aux fréquences MHz que les connecteur BNC et leur utilisation réduit le bruit électronique sur la détection synchrone. Pour mieux transmettre les impulsions RF au LCQ, il est préférable de connecter le ruban du LCQ directement par micro-soudure à un guide d'onde coplanaire adapté aux fréquences élevées, plutôt que de le connecter à un plot or/céramique habituel qui rayonne plus et induit du bruit. Ce type de guide est formé d'une bande centrale métallique et de deux bandes latérales isolantes qui séparent de manière symétrique la ligne centrale du plan de masse, le guide a donc une géométrie coplanaire (ligne conductrice et masse sont dans le même plan contrairement à d'autre guide micro-onde (*microstrip*) où la ligne conductrice est séparée du plan de masse par un diélectrique). Les caractéristiques de ces guides sont définies par la largeur des différentes bandes.

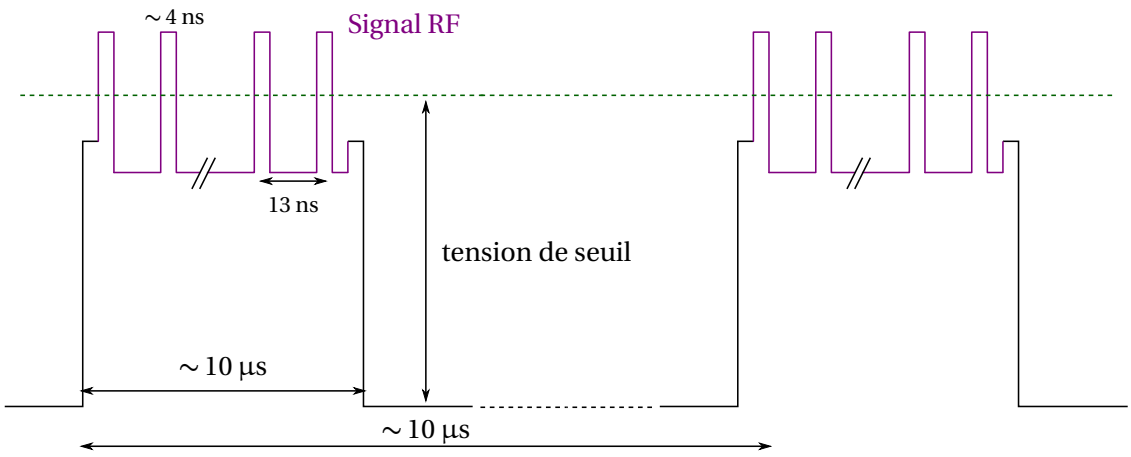


FIGURE 6.3 – Forme schématique de la tension appliquée sur le LCQ.

Les deux autres branches du faisceau proche-IR restent inchangées. L'impulsion THz générée au niveau de l'antenne photoconductrice est focalisée dans la cavité du LCQ, au moment même où l'impulsion électrique nanoseconde commute le gain au-dessus du seuil laser. Le retard entre ces deux impulsions peut être ajusté de manière électronique par le générateur RF. L'émission est mesurée par la détection électro-optique décrite au chapitre précédent. La fréquence de référence de la détection synchrone est prise à partir du générateur délivrant la tension à basse fréquence (10 kHz). Pour limiter le bruit à cette fréquence, l'antenne photoconductrice est polarisée par une tension continue.

6.1.2 Résultats dans les guides à simple plasmon

Les premières démonstrations du contrôle de la phase ont été réalisées dans des LCQ à guide simple plasmon [Oustinov 2010]. Comme il est plus aisé de coupler dans ces guides, le champ THz injecté domine plus facilement le champ initié par l'émission spontanée. Nous montrerons dans cette section les résultats obtenus sur l'échantillon V455 avec ce type de guide : d'abord la caractéristique électrique du LCQ soumis au train d'impulsion RF puis l'échantillonnage temporel du champ laser. Cet échantillon a un dessin *BTC* [Worrall 2006], sa structure de bande est simulée sur la figure 5.16. Il émet à 1.9 THz, ce qui se situe non loin du maximum de la bande de détection de notre montage de TDS. Nous démontrerons ensuite que le champ du LCQ est complètement synchronisé avec notre détection électro-optique.

Caractéristique électrique

La figure 6.4 présente la caractéristique LVI de l'échantillon V455 dont le ruban a pour dimensions 3 mm de long et 250 µm de large. La mesure de la puissance THz se fait avec un détecteur pyroélectrique. C'est un détecteur lent devant la fréquence du signal RF, il mesure donc une puissance moyenne (La tension appliquée au LCQ est sur-modulée par un créneau à 40 Hz qui sert de référence pour la détection synchrone à laquelle est reliée le détecteur pyroélectrique).

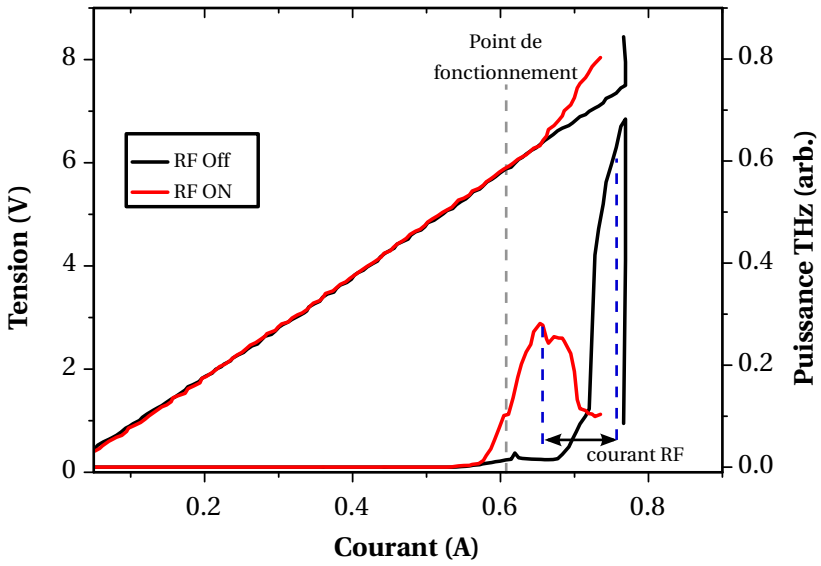


FIGURE 6.4 – Caractéristique LVI de l'échantillon simple plasmon V455 pour une température de 5 K lorsque le générateur RF est éteint (courbe en noir) et allumé (courbe en rouge).

Lorsque la modulation RF est éteinte, la caractéristique a un comportement similaire à l'échantillon de 2 mm présenté lors des mesures gain. Le LCQ a une action laser sur une petite plage de courant avec un seuil à 0.68 A et la structure se désaligne rapidement pour $I = 0.77$ A [1].

Lorsque la modulation est active, alors le courant de seuil descend à 0.58 A. Le supplément de courant nécessaire est apporté par le signal RF à chaque impulsion nanoseconde et comme la valeur

1. On remarque un peu de signal avant le seuil. C'est un artefact de la mesure dû à la forme du créneau qui possède un dépassement de la tension de consigne juste après la montée. Le LCQ est porté au-dessus du seuil sur un temps court, c'est pourquoi le signal est faible.

moyenne de la modulation RF est nulle alors le courant de seuil moyen est plus bas. Le pic de la puissance THz est plus faible que lorsque le RF est éteint à cause du rapport cyclique du signal RF inférieur à 50 %. Pour des courants supérieurs, les impulsions RF font passer le LCQ au-delà du courant maximal de fonctionnement, c'est pourquoi la puissance THz diminue. La structure se désaligne et il vaut mieux ne pas continuer à augmenter le courant car cela risque d'endommager l'échantillon. Pour un courant plus intense, on verrait apparaître un deuxième pic de puissance, correspondant à l'alignement de la structure pour la tension de la modulation quasi-DC, c'est la partie négative de l'impulsion RF [Oustinov 2010].

Pour les expériences de contrôle de la phase, le point de fonctionnement se situe à un niveau de la caractéristique où le LCQ est porté au-dessus du seuil par les impulsions RF et où il reste en dessous du seuil quand la modulation RF est absente. Typiquement, un courant de ~ 600 mA sera appliqué au niveau de l'alimentation quasi-DC pour cet échantillon.

Contrôle avec une impulsion THz

Comme expliqué en début de cette section, le but de l'expérience est de synchroniser l'arrivée de l'impulsion THz avec la modulation RF pour que le champ laser soit initié par l'onde THz externe.

Lorsque l'impulsion THz est couplée par la facette d'entrée, elle se propage le long de la cavité. À l'interface de la facette de sortie, une partie est extraite vers l'extérieur et une partie est réfléchie dans la cavité. Ceci est répété à chaque aller-retour dans la cavité, il y aura donc des échos dus à l'échantillon. La trace temporelle du signal est alors constituée d'une succession d'impulsion THz séparées par le temps d'aller-retour dans la cavité, qui vaut 72 ps pour une cavité de 3 mm de long.

Si les impulsions THz et RF ne sont pas synchronisées, ou que le LCQ est porté au-dessus du seuil par l'alimentation quasi-DC, alors le signal est similaire aux mesures de gain présentés au paragraphe 5.2. Après chaque passage dans la cavité, l'impulsion THz s'étend temporellement (et rétrécit spectralement où il y a du gain). Après plusieurs passages, l'amplitude diminue jusqu'à ce que le signal ne soit plus détecté (voir figure 6.5). Dans ce cas, le champ d'émission du LCQ n'est pas détecté car il n'est pas en phase avec les impulsions proche-IR de la sonde.

La figure 6.6 montre une trace temporelle d'un signal où les impulsions THz et RF sont bien synchronisées pour un courant quasi-DC sous le seuil ($I = 0.6$ A). Dans ce cas, l'amplitude des impulsions successives augmente de manière significative. La croissance dure ~ 500 ps ce qui correspond au temps de montée des impulsions RF pour atteindre le seuil du LCQ (le temps de montée pour atteindre la valeur maximale est toujours d'une nanoseconde). Après cette durée, l'amplitude sature, et chaque impulsion s'élargit jusqu'à se confondre quasiment avec la suivante, donnant lieu à un champ quasi-monochromatique. Un zoom sur cet état quasi-stationnaire (cadre vert, ~ 560 ps) montre les oscillations du champ laser dont la fréquence est à 1.9 THz (voir figure 6.7). Cet état stationnaire dure le temps de l'impulsion RF. Dans cette expérience, néanmoins, la taille de notre ligne à retard constitue une limite qui ne permet de sonder qu'une fenêtre temporelle de 600 ps. On remarque sur la figure 6.6 que le premier pic correspondant à la première passe est suivi de deux autres pics de moindre amplitude. Ce sont des échos dus aux réflexions dans le substrat de l'antenne. Ces échos vont également être amplifiés ce qui modifie le profil temporel aux temps plus longs et peuvent générer des interférences lors de la construction du champ THz dans le LCQ. La transformée de Fourier de l'ensemble de la trace

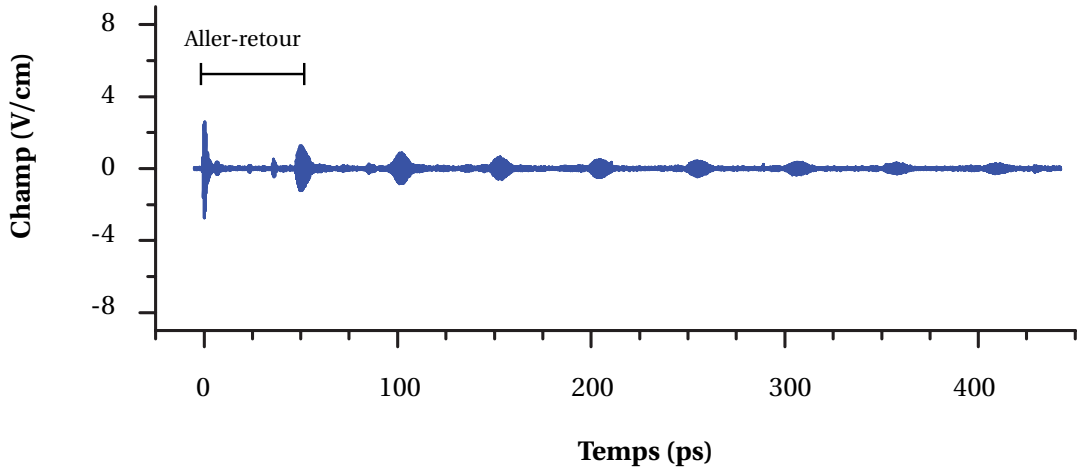


FIGURE 6.5 – Trace temporelle de la transmission d'une impulsion THz au travers d'un LCQ de 2 mm alimenté au-dessus de son seuil (*figure issue de [Oustinov 2010]*).

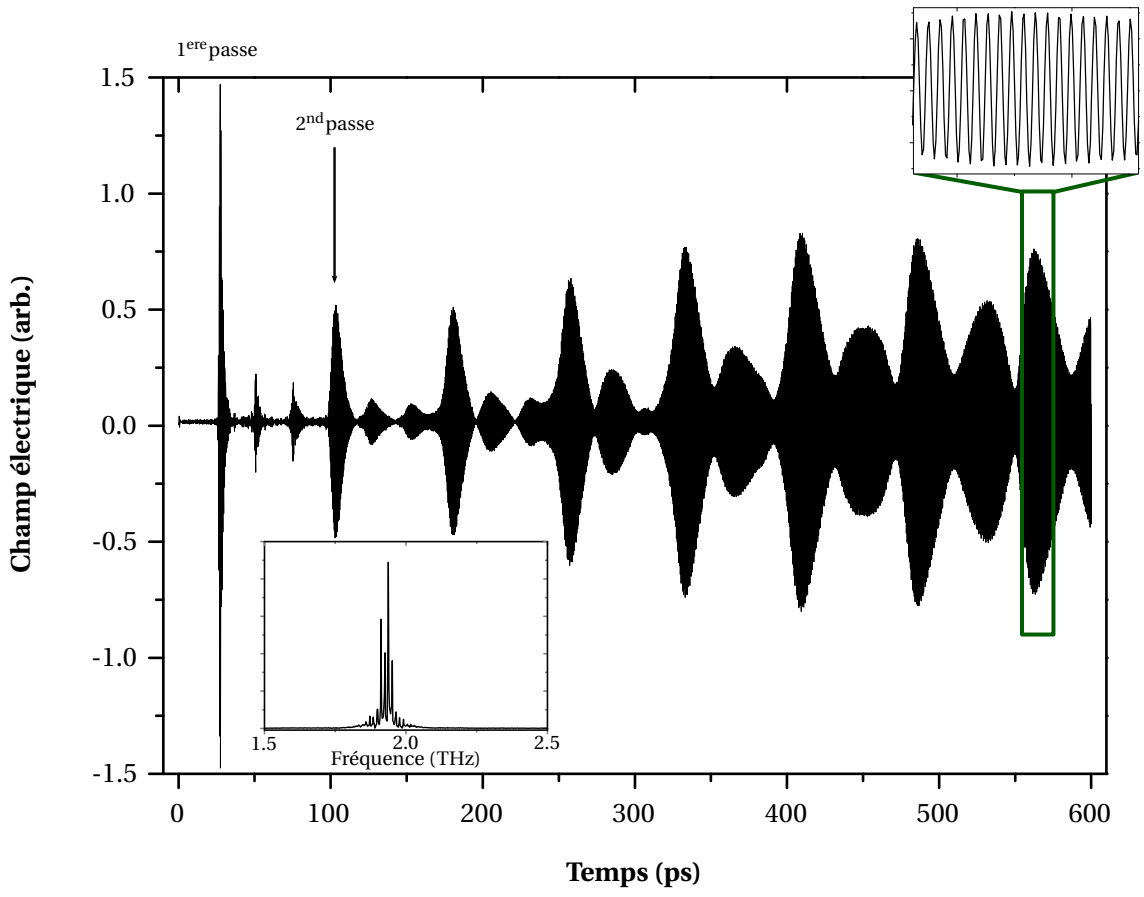


FIGURE 6.6 – Trace temporelle de l'émission du LCQ. L'onde THz externe est amplifiée jusqu'à saturer le champ THz de la cavité du LCQ. L'encadré en bas à gauche représente la transformée de Fourier de la trace temporelle. L'encadré en haut à droite est un zoom du cadre vert.

temporelle est représentée en insert de la figure 6.6. Le spectre est centré sur 1.9 THz, il est composé de plusieurs modes séparés de 13.9 GHz qui correspondent aux modes longitudinaux de la cavité Fabry-

Perot de 3 mm de long.

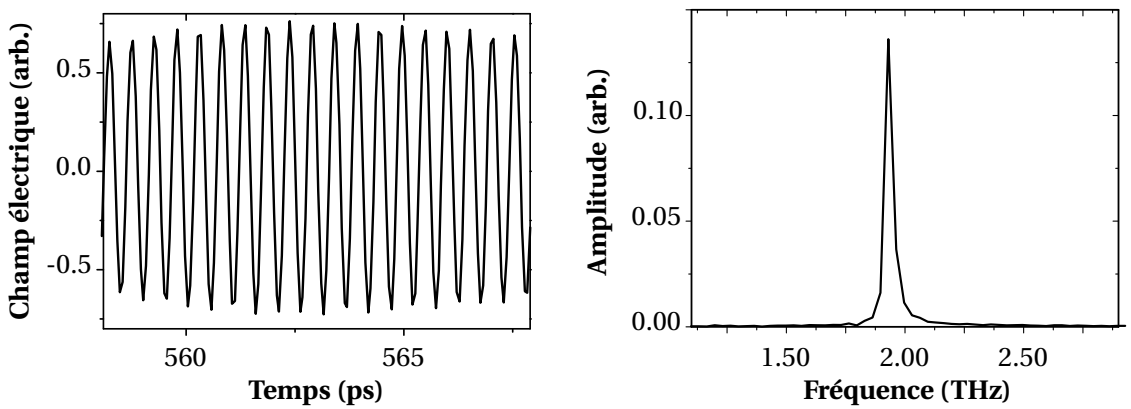


FIGURE 6.7 – Zoom de la trace temporelle pour le régime stationnaire du LCQ et transformée de Fourier associée.

Saturation du champ laser

Dans cette expérience, l'impulsion THz initiatrice est amplifiée par le milieu à gain dans la cavité du LCQ. Au fur et à mesure des aller-retours, le champ électrique augmente jusqu'à atteindre un régime de saturation lorsque le gain est limité aux pertes du guide. Pour confirmer que l'émission du LCQ est correctement injectée par l'impulsion THz, il faut vérifier qu'il n'y a pas d'émission incohérente s'additionnant au champ mesuré.

La construction du champ laser est une compétition entre l'initiation par l'émission spontanée et l'onde THz externe. Plus l'amplitude de l'impulsion THz est grande devant l'émission spontanée, plus la partie cohérente de l'émission est importante. Pour contrôler que le LCQ est bien injecté, on fait varier l'amplitude de l'impulsion THz en changeant la tension de polarisation sur l'antenne THz. Le champ THz généré par l'antenne est linéaire avec le champ statique appliqué aux électrodes [Dreyhaupt 2005] pour des champs inférieurs à 80 kV/cm. Une tension de 3 V correspond à un champ électrique de 20 kV/cm pour des antennes inter-digitées ayant un espacement de 1.5 μm. La figure 6.8 présente l'intensité du champ en fonction de la tension sur l'antenne. L'intensité présentée est le maximum du spectre calculé par transformée de Fourier des oscillations mesurées sur une fenêtre de 10 ps autour d'un retard de 560 ps. On remarque que l'intensité a un comportement asymptotique sur cette courbe et ce même pour de petites tensions sur l'antenne. Cela montre que le champ mesuré représente toute l'émission du LCQ. En effet, malgré une injection plus importante (tension plus élevée), la valeur finale du champ mesuré reste la même et est limitée par la saturation du gain dans la cavité lorsque le LCQ a une action laser. Le LCQ est alors correctement injecté par l'impulsion THz.

Nous avons vu que la phase d'un laser à cascade quantique THz pouvait être contrôlée par une impulsion THz externe sans utiliser de techniques de rétro-action ou de stabilisation [Barbieri 2010]. Cela permet notamment de mesurer l'émission THz du LCQ dans le domaine temporel et d'observer la construction du champ laser. De ce fait, un LCQ peut être utilisé pour des expériences de TDS car son émission est verrouillée en phase. Les LCQ les plus performants en terme de température sont ceux montés avec des guides double-métal, il est donc intéressant de voir comment la phase de tels lasers peut-être contrôlée. Dans un

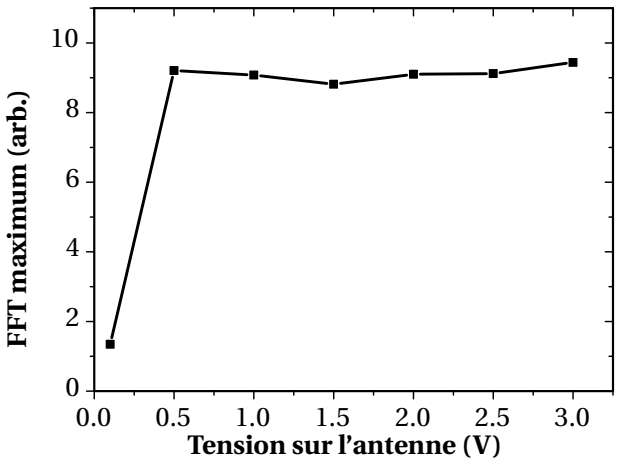


FIGURE 6.8 – Amplitude du champ électrique mesurée à 560 ps en fonction de la tension sur l'antenne THz.

premier temps, nous allons décrire dans la section suivante la géométrie des guides d'onde double-métal et montrer qu'il est difficile de coupler une onde THz externe dans ces guides.

6.2 Problématique des guides d'onde double-métal

Deux géométries de guides d'onde sont possibles pour les LCQ THz : les guide d'onde à simple plasmon (SP) et les guides double-métal (DM). Historiquement les guides d'onde SP ont été plus utilisés car ils sont plus faciles à mettre en œuvre et le faisceau diverge moins en champ lointain. En effet, les dimensions du mode optique des guides SP restent plus grandes que la longueur d'onde d'émission. Les guides d'onde double-métal, même s'ils sont plus compliqués à fabriquer, permettent d'accéder à des températures de fonctionnement supérieures [Williams 2005].

Deux grandeurs principales caractérisent la qualité de la cavité THz : le facteur de confinement Γ, qui décrit le recouvrement du mode avec la région active et les pertes du guide (les pertes intrinsèque α_g et les pertes par les miroirs α_m). Ces trois facteurs déterminent le gain minimal (g_{th}) nécessaire pour avoir un effet laser :

$$g_{\text{th}} = (\alpha_g + \alpha_m)/\Gamma \, .$$

La figure 6.9, qui représente le mode 2D simulé [2] dans le guide, montre bien que dans le cas des guides DM, le facteur Γ est proche de l'unité. Le confinement est donc très grand par rapport aux guides simple plasmon qui ont des facteurs Γ ne dépassant pas 0.3 [Scalari 2004]. Les pertes α_g sont également plus grandes dans ces guides double-métal ($\alpha_g \sim 20\,\text{cm}^{-1}$) que pour les guides à simple plasmon ($\sim 5\,\text{cm}^{-1}$) [Kohen 2005]. Cependant, la réflectivité des facettes est meilleure ($R \sim 0.85$) et le rapport reste favorable pour atteindre des températures plus hautes [Williams 2005].

Ces meilleures performances à haute température ne se font pas sans contreparties et nous allons voir dans les paragraphes suivants que la nature sub-longueur d'onde du guide engendre certains problèmes pour le comportement du faisceau en champ lointain et le couplage d'une impulsion THz externe dans la cavité.

2. La simulation est réalisée par un programme MATLAB qui résout les équations de Maxwell dans le guide.

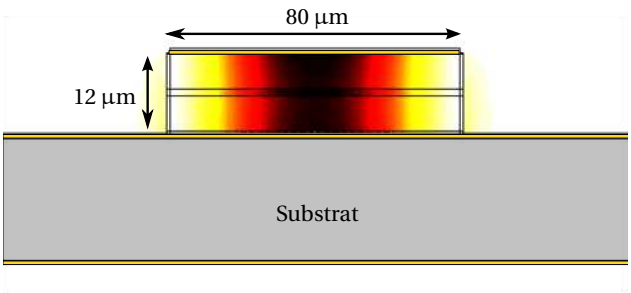


FIGURE 6.9 – Simulation 2D du mode optique THz dans la cavité d'un guide double-métal.

6.2.1 Champ lointain

La facette d'un ruban laser a pour dimensions typiques 10 µm × 80 µm. Les longueurs d'ondes d'émission des LCQ THz sont comprises entre 80 µm et 200 µm. On comprend donc que le faisceau en sortie de la facette est fortement diffracté à cause des dimensions du ruban. Cette diffraction dans quasiment toute les directions donne pour résultat des faisceaux très divergents et peu utiles pour des applications de spectroscopie ou d'imagerie (voir la figure 6.10, [Adam 2006]). Les franges observées sur

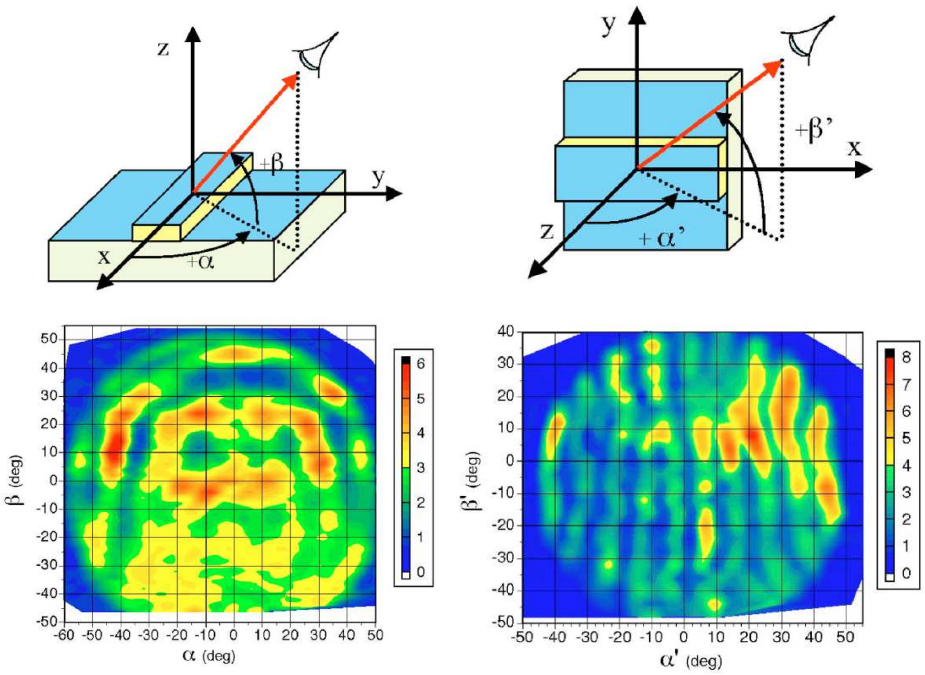


FIGURE 6.10 – Mesures de divergence du faisceau en champ lointain (bas) et schéma de l'orientation des échantillons lors de la mesure (haut). (*Mesures issues de [Adam 2006]*).

la figure 6.10 sont dues à des interférences entre les différentes parties émettrices (facettes et parties latérales du ruban). Cette figure montre qu'il n'y a pas de direction privilégiée pour l'émission.

État de l'art des solutions apportées

Deux types de solution ont été apportés pour améliorer l'émission en champ lointain : favoriser l'émission par la surface en modelant le contact métallique supérieur ou améliorer l'extraction par les facettes par des adaptations d'impédances. Nous décrivons quelques exemples dans les deux paragraphes

suivants.

Émission par la surface

Nous présentons dans ce paragraphe, trois technologies mises en place pour favoriser l'émission par la surface. L'idée directrice est de coupler le mode optique de la cavité à l'espace libre par un réseau de Bragg imprimé sur la surface, plutôt que par les facettes. Le dessin de ce réseau permet de mieux contrôler les pertes "miroirs", α_m. Dans la référence [Kumar 2007], les facettes sont soumises à un traitement haute-réflectivité pour éviter l'émission par les côtés. Un réseau du second-ordre est réalisé en formant des fentes sur la surface, espacées de la demi-longueur d'onde de l'émission THz dans le GaAs (~ 30 µm). L'ordre N du réseau est défini par le rapport entre sa périodicité et la longueur d'onde à laquelle il s'applique :

$$N = \frac{2\Lambda n_{\text{eff}}}{\lambda},$$

avec Λ la périodicité du réseau, λ la longueur d'onde dans l'espace libre et n_{eff} l'indice effectif du milieu. Le réseau permet de faire une rétro-action distribuée sur la structure, d'où leur nom de réseau *DFB* (Distributed Feedback). Le réseau DFB est dessiné pour une fréquence précise, il filtre ainsi les modes longitudinaux, il limite également les modes latéraux qui se forment facilement dans les guides double-métal. Au centre du ruban, un défaut dans le réseau est volontairement induit pour favoriser l'émergence d'un seul mode ayant une faible divergence ($\sim 5°$), voir figure 6.11.

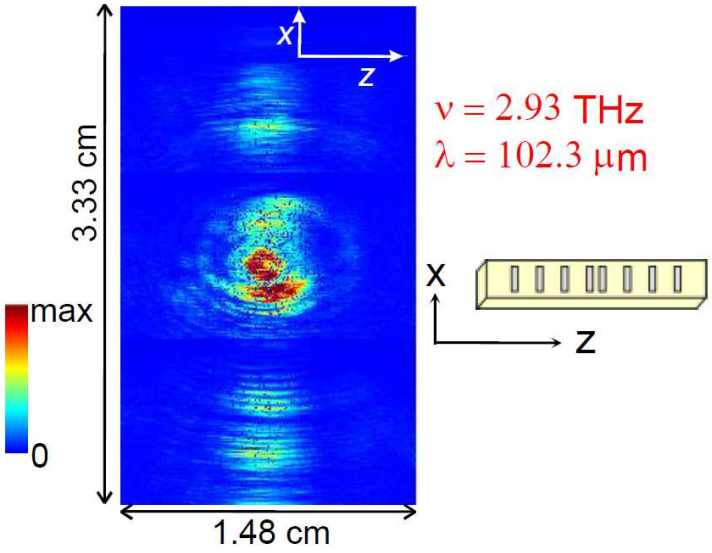


FIGURE 6.11 – Schéma du réseau DFB du second ordre et divergence du faisceau à 2.5 cm du LCQ. (*Figure issue de [Kumar 2007]*)

D'autres dessins ont été imaginés pour des géométries dont le confinement n'est pas longitudinal mais à deux dimensions. Dans la référence [Mahler 2009], la propagation se fait par des modes de galeries dans un micro-disque. L'extraction est réalisée par un réseau de diffraction dessiné sur la circonférence (voir la figure 6.12).

D'autres études ont été réalisées sur des micro-disques où un cristal photonique est dessiné sur la surface de la structure à cascade [Chassagneux 2009]. La présence de ce cristal permet d'avoir une émission avec un mode spatial unique qui a une faible divergence angulaire. Dans cet article, les modes de galerie ont été minimisés en plaçant des absorbants sur les bords du micro-disques.

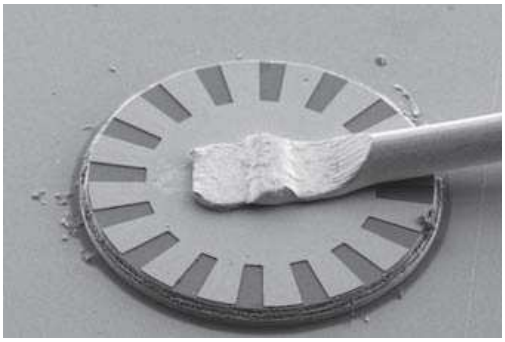


FIGURE 6.12 – Image prise au microscope électronique à balayage d'un micro-disque. (*Figure issue de [Mahler 2009]*)

Ces trois méthodes montrent différentes approches pour émettre à partir de la surface. La littérature est riche sur ce sujet et nous ne pouvons pas en faire une revue exhaustive. Cependant, pour des raisons expérimentales pratiques, il est difficile d'utiliser un LCQ émettant par la surface quand il s'agit de coupler une onde THz externe dans un montage de TDS. De plus les réseaux sont adaptés pour une fréquence particulière alors qu'on peut vouloir avoir accès à un spectre large pour faire des mesures de gain par exemple. C'est pourquoi, il est préférable d'utiliser des géométries pour lesquelles le couplage peut s'effectuer par la facette de l'échantillon et de manière large-bande.

Émission par la facette

Historiquement deux alternatives ont été étudiées pour mieux coupler à partir de la facette de sortie vers l'espace libre. Dans les deux cas, il s'agit de diminuer le confinement du THz en augmentant la surface d'émission. Deux choix sont possibles : l'ajout d'une lentille de silicium [Wei Min Lee 2007] ou l'intégration d'une antenne en cornet à l'extrémité [Maineult 2008]. Ces deux possibilités sont présentées sur la figure 6.13.

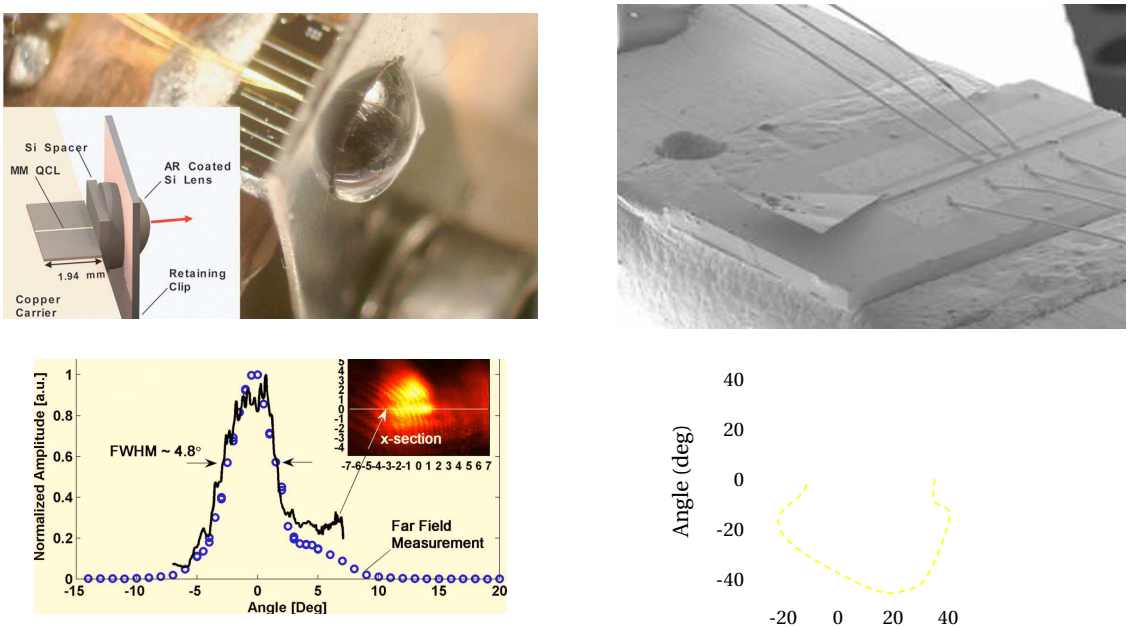


FIGURE 6.13 – Photos prises au microscope de LCQ adaptés à l'espace libre avec une lentille de silicium (gauche) et une antenne cornet (droite). En dessous des photos, la forme du champ lointain correspondant. (*Photos et courbes issues de [Wei Min Lee 2007] et [Maineult 2008]*)

En champ lointain, l'ajout d'une lentille donne à peu près les mêmes caractéristiques que l'émission par la surface favorisée par un réseau DFB [Kumar 2007]. Les performances avec les antennes en cornet sont un peu en dessous mais restent comparables ($\sim 10°$ de divergence en champ lointain). Ces deux approches nécessitent un savoir-faire technologique particulier et l'intégration d'une lentille de silicium ou d'une antenne est difficile et rend le dispositif fragile.

Plus récemment, des solutions un peu moins contraignantes technologiquement ont été développées [Amanti 2009a]. Dans cette référence, les auteurs impriment un réseau DFB réalisant la condition du troisième ordre. Cette condition permet l'émission naturelle par les facettes avec une faible divergence ($< 10°$) dans la direction du ruban mais est sélective spectralement.

6.2.2 Couplage d'une onde THz dans un LCQ à guide double-métal

Dans le chapitre précédent, nous avons vu que le couplage d'une onde THz externe dans une cavité simple plasmon d'un LCQ est difficile et se fait avec beaucoup de pertes. Pour un guide double-métal standard, le couplage est impossible à cause des dimensions trop petites du guide qui confine grandement le champ THz dans la cavité. Il faut donc prendre des dispositions particulières pour pouvoir coupler dans le guide. Deux approches différentes ont été explorées dans la littérature : intégrer l'émetteur THz au LCQ ou bien réaliser une adaptation d'impédance entre la propagation en espace libre et les modes guidés dans la cavité.

Émetteur THz intégré

La première approche consiste à intégrer l'émetteur THz au LCQ plutôt que de coupler une onde THz externe. Cette technique a d'abord été mise au point sur des échantillons à guide simple plasmon [Dhillon 2010]. Dans ce cas, l'impulsion THz est générée directement dans la cavité en excitant la facette d'entrée par l'impulsion proche-IR d'un laser femtoseconde. L'impulsion photo-excite des électrons de la bande de valence de la région active vers une mini-bande de la bande de conduction. Les charges sont accélérées par le champ électrique appliqué sur le LCQ. Le photo-courant transitoire provenant de cette accélération donne naissance à une impulsion THz dans la cavité du LCQ.

Peu après, deux équipes (au MIT [Burghoff 2011] et à Vienne [Martl 2011]) ont adapté le dispositif à des LCQ à guide double-métal. La géométrie a été de plus améliorée en découplant la partie émettrice et la partie LCQ de la structure (voir figure 6.14). Cette géométrie est la même que celle utilisée dans le chapitre 3.2, pour le mélange d'ondes doublement résonant. L'émetteur intégré est constitué d'une section courte de quelque dizaines de microns. Cette section est séparée de $3-4$ µm du LCQ qui a une longueur classique ($1-2$ mm). La faible séparation entre les deux sections permet un bon couplage.

Le fait d'avoir deux sections, a deux avantages principaux : d'abord les tensions peuvent être ajustées de manière indépendante, ce qui est indispensable pour étudier le gain du LCQ en fonction du champ appliqué sur la structure. D'autre part, dans le cas d'une unique section, l'impulsion proche-IR crée des porteurs libres au voisinage de la facette ce qui induit des pertes et modifie légèrement les performances du LCQ. Cette géométrie permet de faire des mesures de gain qui sont présentées dans les deux articles cités plus haut. En effet, en intégrant l'émetteur THz au dispositif, le signal de référence est meilleur que dans les méthodes présentées au paragraphe suivant car le THz généré se propage très majoritairement dans la cavité. Pour ces échantillons, il est préférable d'implémenter une antenne en cornet ou une



FIGURE 6.14 – Dessin schématique de la géométrie à cavités couplées ($w = 100\,\mu m$, $h = 16\,\mu m$, $l_A = 39\,\mu m$, $d = 3\,\mu m$ et $l_B = 1340\,\mu m$). *Figure extraite de [Martl 2011].*

lentille de silicium en sortie [Burghoff 2011] pour avoir un faisceau assez directif et faciliter la détection.

Adaptation d'impédance

La seconde approche consiste à utiliser les technologies décrites plus haut pour l'extraction de lumière par la facette en faisant une adaptation d'impédance (lentille de silicium ou antenne en cornet). Le principe est analogue à celui décrit pour l'extraction du rayonnement THz. Des échantillons avec des antennes en cornet développés à l'IEMN de Lille ont pu être testés sur notre montage de TDS. Sur cet échantillon, une antenne en cornet est montée au-dessus de chaque facettes (voir figure 6.15). L'annexe D donne plus de détails sur la fabrication et les mesures prises sur cet échantillon qui émet à 2.5 THz. Les premières mesures sont encourageantes et montrent qu'une partie du THz peut en effet être couplée

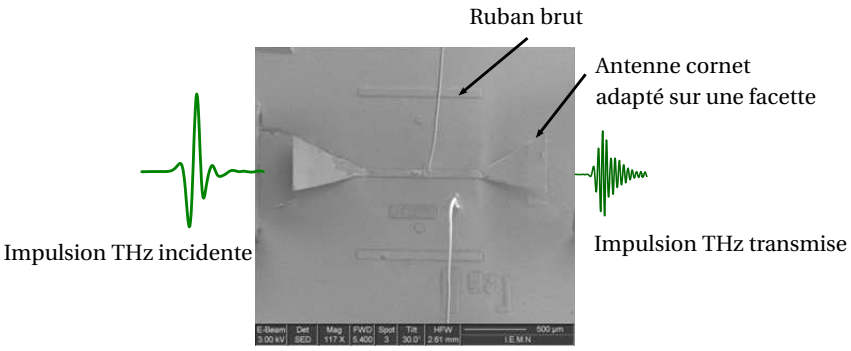


FIGURE 6.15 – Photo prise au MEB d'un LCQ muni d'antenne en cornet à chacune de ses facettes. (*Photo prise à l'IEMN.*)

dans la cavité. La figure 6.16 présente la trace temporelle de la mesure différentielle (voir section 5.2) de la transmission des impulsions THz à travers le LCQ pour un retard correspondant à un passage dans la cavité de 1 mm. On observe pour ce retard des oscillations à la fréquence d'émission du LCQ (~ 2.6 THz). La présence de ces oscillations à ce retard constitue une preuve du couplage de l'impulsion THz dans la cavité du LCQ.

Cependant, ces échantillons sont difficiles à fabriquer. Bien que le procédé de fabrication soit monolithique, il nécessite une grande quantité d'étapes. Au-delà de la difficulté technologique, la série d'expérience présentée en annexe montre qu'on couple très peu de l'impulsion initiale, ce qui rend en partie les

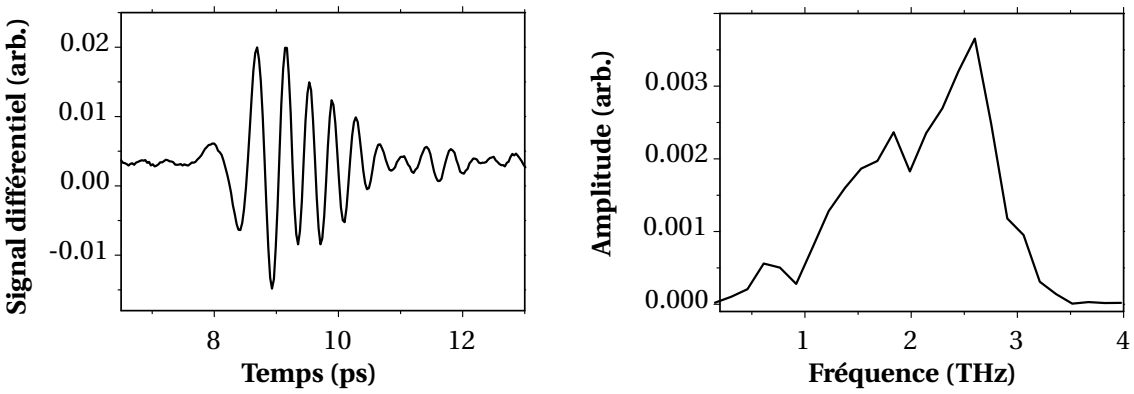


FIGURE 6.16 – Trace temporelle du signal différentiel sur un échantillon possédant une antenne en cornet en entrée et en sortie et spectre calculé par FFT correspondant.

mesures de gain impossible de manière quantitatives. En effet, lorsqu'une faible portion de l'impulsion THz est couplée, il est difficile de mesurer une référence correcte car les pertes dans le guide double-métal sont grandes et la majorité du signal détecté sur le cristal provient de la partie de l'impulsion THz non couplée.

De plus une contrainte notable est la fragilité de l'échantillon. La moindre contrainte mécanique sur l'antenne peut entraîner des dommages sur celle-ci. Il est par exemple nécessaire de refroidir l'échantillon à un taux de 5 °C/min pour que la thermalisation se fasse correctement entre le ruban et l'antenne (sans quoi l'antenne se tord vers le haut à cause de la contraction trop rapide du métal).

Ces contraintes nous ont poussés à étudier d'autres options comme les émetteurs intégrés au LCQ (voir paragraphe précédent) ou une géométrie plus simple à mettre en œuvre comme celle développée sur l'échantillon V588 présentée dans le paragraphe suivant.

6.2.3 Géométrie de l'échantillon V588

Pour terminer cette section sur les guides double-métal, nous présentons la géométrie que nous avons utilisée pour favoriser le couplage et l'extraction de l'onde THz dans ce type de guide. Cette géométrie a été développée en collaboration avec l'université de Cambridge qui a réalisé la fabrication, les simulations et les mesures en champ lointain. Un procédé assez simple, consistant à graver sur le contact métallique une rainure en forme en V, a été appliqué au-dessus de chaque facette (voir figure 6.17). L'étape a été réalisée par une sonde ionique focalisée (*FIB, Focused Ion Beam*) pour enlever le métal déposé habituellement lors de la mise en forme des rubans. Ce "V" enlevé au métal forme une antenne qui réalise une adaptation d'impédance entre l'espace libre et les modes confinés du guide au niveau de chaque facette.

Simulation

Pour comprendre cette adaptation d'impédance, la cavité a été caractérisée par des simulations FDTD 3D (finite difference time domain, calcul de différence d'élément fini dans le domaine temporel) avec l'aide d'un logiciel commercial (CST-Microwave studio). Ces simulations sont présentées sur la figure 6.18.

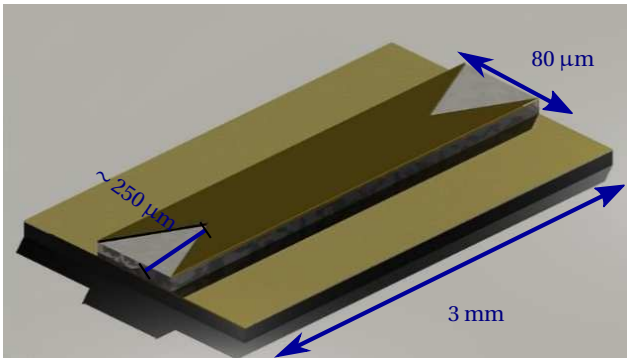


FIGURE 6.17 – Schéma de la géométrie proposée pour l'échantillon V588.

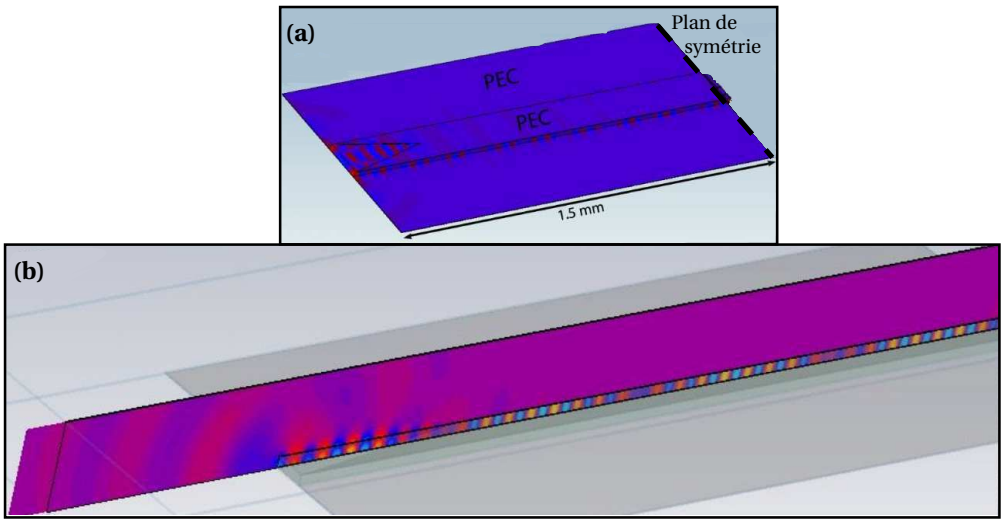


FIGURE 6.18 – (a)Simulation 3D-FDTD superposée sur la géométrie modélisée. (b) Coupe transverse de la simulation présentée en (a) montrant les pertes de la région active par la région formée par l'antenne en forme de V. (*Simulations réalisées par l'université de Cambridge*).

Pour la simulation, on considère un ruban d'une largeur de 80 µm et une longueur de 1.5 mm. Un plan de symétrie est ajouté à une extrémité pour simuler la longueur totale et sur l'autre extrémité, on enlève au métal supérieur une forme de V de 250 µm de hauteur[3]. Comme conditions aux limites, les contacts d'or formant le guide sont considérés comme des métaux parfaits (PEC, *perfect electric conductor*) et l'espace libre est défini comme un matériau absorbant pour limiter les réflexions et les modes Fabry-Pérot.

Les simulations permettent de calculer la réflectivité au niveau de la facette en fonction de la taille du V. Il apparaît que la réflectivité diminue avec la taille du V et pour une taille de 250 µm, on obtient une diminution de la réflectivité, indépendante de la fréquence sur la plage observée ($2.6-3$ THz). La figure 6.18.a montre la solution à trois dimensions des modes dans la cavité. La figure 6.18.b présente une coupe longitudinale de ces modes dans le plan perpendiculaire au plan des facettes du ruban. Les modes s'étendent en dehors de la région active au niveau de la rainure faite dans le métal. Cette extension des modes facilite l'adaptation d'impédance avec l'espace libre.

3. la largeur du V étant toujours celle du ruban, la taille du V désignera toujours la hauteur du triangle

Fabrication

La croissance choisie pour réaliser la fabrication des échantillons avec ces antennes en V est celle présentée pour les mesures de mélange d'ondes, l'émission du laser s'effectue à 2.8 THz [Barbieri 2004]. La croissance est réalisée par EJM puis est transférée sur un substrat hautement dopé et métallisé en or. Le substrat originel est éliminé par gravure chimique. Une gravure par plasma permet de former le ruban de 80 μm de large et de 2.8 mm de long qui est métallisé pour former le guide double-métal. L'échantillon est ensuite monté sur une embase en cuivre pour pouvoir être placé dans un cryostat à flux d'hélium.

FIGURE 6.19 – Photo prise au microscope électronique à balayage du dessus du LCQ V588. (*Photo prise à l'université de Cambridge*).

La fabrication des V se fait de manière itérative en mesurant la caractéristique électrique et la puissance en champ lointain avant et après chaque étape de gravure. La FIB permet d'avoir un contrôle sous-micrométrique sur la quantité d'or à enlever. La métallisation et la couche d'arrêt sont éliminées par la gravure mais la zone active reste intacte.

Caractéristique électrique

Les caractéristiques électriques pour différentes tailles de la forme en V sont présentées sur la figures 6.20. Les mesures sont effectuées à 10 K avec une tension créneau d'une fréquence de 10 kHz et d'un rapport cyclique de 25 %. En dessous du seuil, la caractéristique électrique ne change pas beaucoup entre les différentes formes ce qui indique que le procédé ne change pas la résistance électrique. La différence est visible au niveau du courant de seuil qui dépend notamment des pertes du guide. Le courant de seuil augmente avec la taille de la rainure. Cela vient du fait que les pertes augmentent au niveau de la facette et que le confinement est plus faible. Le rapport $(\alpha_g + \alpha_m)/\Gamma$ défini plus haut augmente. Comme le gain est proportionnel, sous le seuil, à la densité de courant [Scalari 2009], il est logique que le courant de seuil augmente également.En considérant que le confinement Γ varie peu, alors d'après l'augmentation du courant de seuil, la réflectivité diminue de 10 % lorsqu'une antenne de 275 μm est gravée.

La deuxième observation est que le photocourant est plus faible après le seuil quand la structure est dans le régime de laser, c'est à dire que pour une même tension le courant diminue. Ceci est l'indication d'une intensité optique plus faible à l'intérieur de la cavité. En effet, plus il y a une intensité photonique

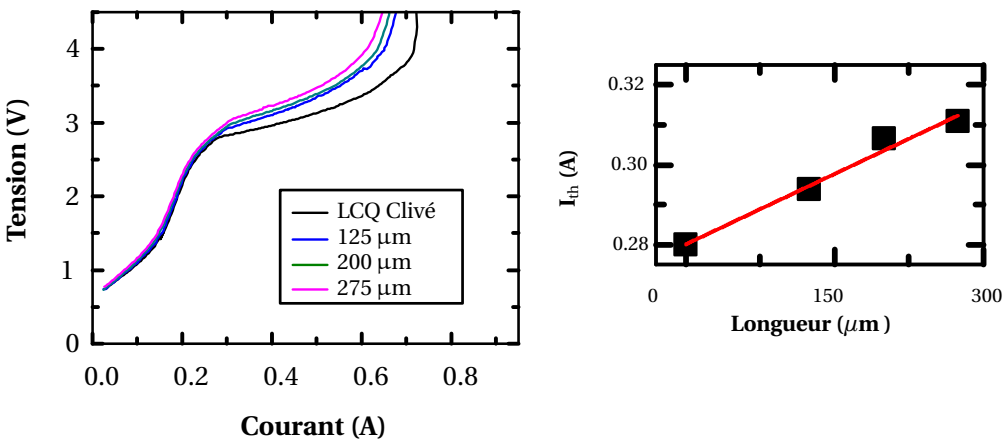


FIGURE 6.20 – Caractéristiques tension-courant impulsionnelles (rapport cyclique 25 %) pour différentes longueurs de l'antenne en V. (*Figure réalisée par l'université de Cambridge*).

importante dans la cavité, plus l'effet de l'émission stimulée est importante et cela a pour conséquence de diminuer la résistance électrique car le transport est facilité dans la structure à cascade. De la même manière, le courant pour lequel l'action laser cesse, diminue avec l'augmentation de la taille de la rainure alors que la tension reste inchangée. Au total, la plage de courant pour laquelle le LCQ fonctionne est réduite des deux côtés de la caractéristique électrique quand un V plus grand est gravé sur le contact métallique.

Divergence en champ lointain

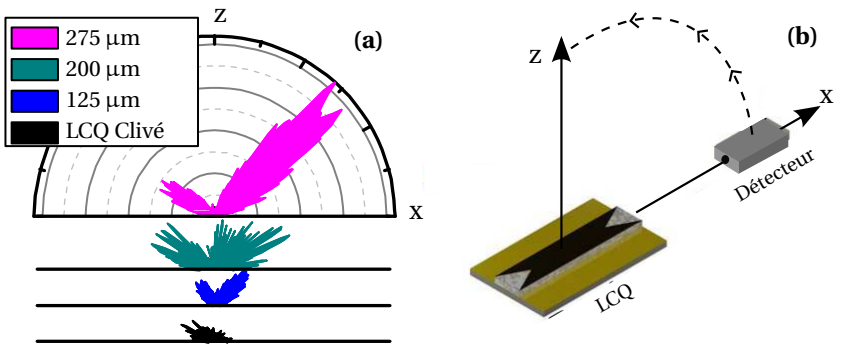


FIGURE 6.21 – (a) Mesure de la puissance pour un courant de 400 mA (rapport cyclique de 50 %) en champ lointain pour différentes tailles de V enlevés sur le contact métallique supérieur. (c) Schéma du montage utilisé pour la mesure du champ lointain. *(figure réalisée par l'université de Cambridge)*

Pour chaque taille dans le métal, une mesure en champ lointain est effectuée. Pour cette expérience, une cellule de Golay est placée sur un bras qui permet de décrire un arc de cercle comme présenté sur la figure 6.21 (b). Les diagrammes présentés sur la figure 6.21 (a) ont les mêmes axes que sur le schéma. Le gain est net par rapport à l'échantillon simplement clivé. D'une part la puissance extraite est plus importante d'un facteur 6 et d'autre part la directivité est meilleure (10° de divergence).

La puissance en champ lointain est très sensible au dessin de la forme enlevée sur le métal. Ainsi le même procédé sur des échantillons similaires peut donner lieu à des diagrammes différents. Les faibles

variations en champ proche, dues aux petites différences entre les formes, deviennent importantes au cours de la propagation pour donner des diagrammes différents en champ lointain. Pour les expériences de couplage d'une onde THz externe décrites plus haut, on choisira un profil dont l'angle s'écarte peu de la normale à la facette (voir figure 6.22). Dans ce cas, la rainure fait 200 µm de long. On voit sur le diagramme, que l'émission est quasi-normale à la facette du ruban. C'est cette configuration qui est la plus favorable pour notre montage de TDS, car le faisceau émis par le LCQ aura la même direction de propagation que l'impulsion THz incidente.

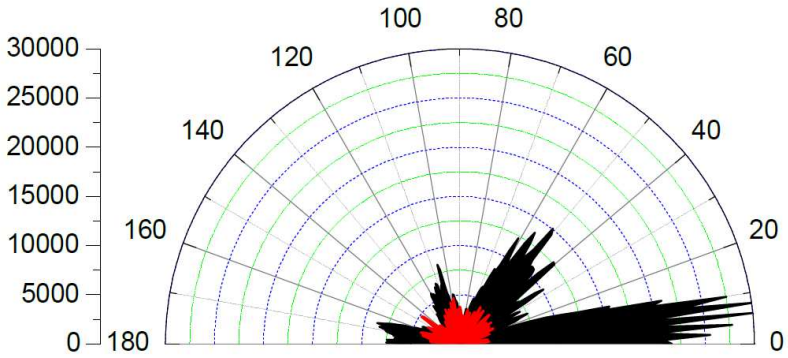


FIGURE 6.22 – Mesure de la puissance en champ lointain avant le procédé (seulement clivé, en rouge) et avec un V taillé à 200 µm de l'échantillon utilisé en TDS (en noir). *(figure réalisée par l'université de Cambridge)*

La fabrication de ces antennes à la surface du ruban est donc efficace pour extraire plus de puissance THz en sortie de la cavité et de manière plus directive. Le procédé de fabrication est relativement facile et pourrait encore être simplifié en intégrant la fabrication des antennes par photolithographie lors des étapes de mise en forme du ruban laser. Nous allons voir dans la section suivante que cette géométrie est adaptée pour coupler une impulsion THz externe dans la cavité du LCQ en montrant que sa phase d'émission peut être contrôlée comme décrit à la section 6.1.

6.3 Contrôle de la phase d'un échantillon double-métal

Pour contrôler la phase d'émission d'un LCQ avec une géométrie double-métal, il faut pouvoir coupler une onde THz à phase fixe de manière suffisamment efficace pour que cette dernière domine l'émission spontanée. La géométrie de l'échantillon V588 présentée dans le paragraphe précédent permet d'effectuer ce couplage. De plus, l'extraction du faisceau THz est favorisée et s'effectue de manière plus directive que pour un ruban simplement clivé, ce qui facilite la détection sur le cristal électro-optique. La démonstration d'injection optique THz dans ces guides montrera que la géométrie en V est une bonne solution pour coupler une onde THz dans la cavité du LCQ.

Dans cette section, après avoir présenté les caractéristiques électriques de l'échantillon, nous montrerons la possibilité d'injecter une onde THz pour initier le champ laser d'un LCQ à guide double-métal. Nous terminerons en faisant une étude en température de ces expériences.

L'échantillon utilisé est issu d'un dessin BTC décrit dans la référence [Barbieri 2004]. La région active est composée de 90 périodes, donnant une épaisseur totale de 11.57 µm. Ce LCQ émet à 2.8 THz.

6.3.1 Caractérisation électrique

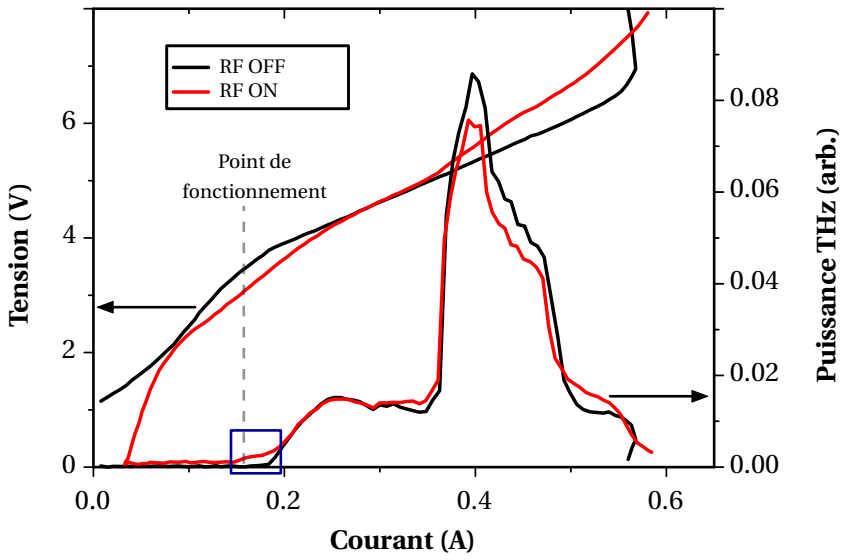


FIGURE 6.23 – Caractéristique LVI de l'échantillon double-métal V588 pour une température de 5 K lorsque le générateur RF est éteint (courbe en noir) et allumé (courbe en rouge)

Comme pour les expériences d'injection dans un guide à simple plasmon, il faut déterminer le seuil du LCQ avec et sans la modulation RF pour trouver le bon point de fonctionnement. La caractéristique LVI à basse température est présentée sur la figure 6.23. Le ruban laser mesure 2.8 mm de long et 80 µm de large. La partie encadrée en bleu (vers 0.15 A) sur la caractéristique correspond au courant quasi-continu pour lequel le LCQ passe au-dessus de son courant de seuil grâce à la modulation RF. On choisit pour le point de fonctionnement, un courant de 145 mA pour l'alimentation quasi-continue. Le pic de puissance atteint lorsque les impulsions RF portent le LCQ au-dessus du seuil est plus faible que pour la LVI présentée pour l'échantillon simple plasmon car la largeur des impulsions est plus faible (1 ns).

Le LCQ est également caractérisé pour des températures supérieures. Ce laser fonctionne jusqu'à

77 K avec un rapport cyclique de 10 % pour la tension quasi-DC. Le courant de seuil augmente lorsque la température est plus élevée (car l'inversion de population est plus difficile à maintenir) ; c'est pourquoi le point de fonctionnement se situera plus haut en courant.

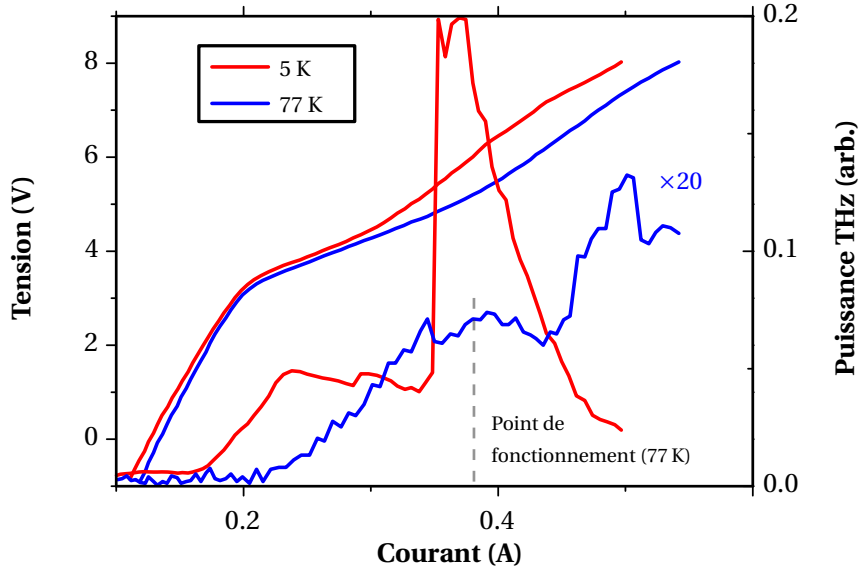


FIGURE 6.24 – Caractéristique LVI avec modulation RF de l'échantillon double-métal V588 pour deux températures différentes (en noir 5 K et en bleu 77 K)

6.3.2 Démonstration du couplage

Pour déterminer que l'impulsion THz est effectivement couplée dans le guide double-métal, la première étape consiste à effectuer des mesures de transmission différentielle $f-2f$ dans le LCQ. Dans cette mesure, seul le LCQ est modulé à la fréquence de référence de la détection synchrone. L'antenne est polarisée en DC pour limiter le bruit à la fréquence de référence. Seuls les champs électriques THz ayant la même modulation quasi-DC que celle appliquée sur le LCQ sont mesurés sur la détection synchrone. La figure 6.25 présente la trace temporelle des impulsions THz transmises dans le LCQ pour un retard de 26 ps correspondant à un passage dans la cavité de 2.8 mm. On observe pour ce retard des oscillations à la fréquence d'émission du LCQ ($\sim$ 2.7 THz). Les caractéristiques (retard temporel et fréquence) de ces oscillations constituent une preuve du couplage de l'impulsion THz dans la cavité du LCQ.

À partir de ces mesures différentielles, on pourrait envisager de faire des mesures du gain de l'échantillon. Cependant, on est confronté au même problème que pour le couplage dans les LCQ avec antennes en cornet : il est très difficile d'avoir une référence correcte pour deux raisons. D'une part, quand le LCQ est éteint, les pertes sont de l'ordre de 30 cm^{-1} donc le signal n'est presque pas transmis à la sortie du LCQ. D'autre part, la portion de l'impulsion THz générée par l'antenne photoconductrice qui n'est pas couplée dans le LCQ perturbe trop ce faible signal pour le retard correspondant à un simple passage.

6.3.3 Résultats

Le couplage de l'onde THz externe va permettre d'initier le régime laser sur une phase fixe. Dans cette section, nous montrons que l'émission du LCQ peut alors être mesurée par une détection électro-

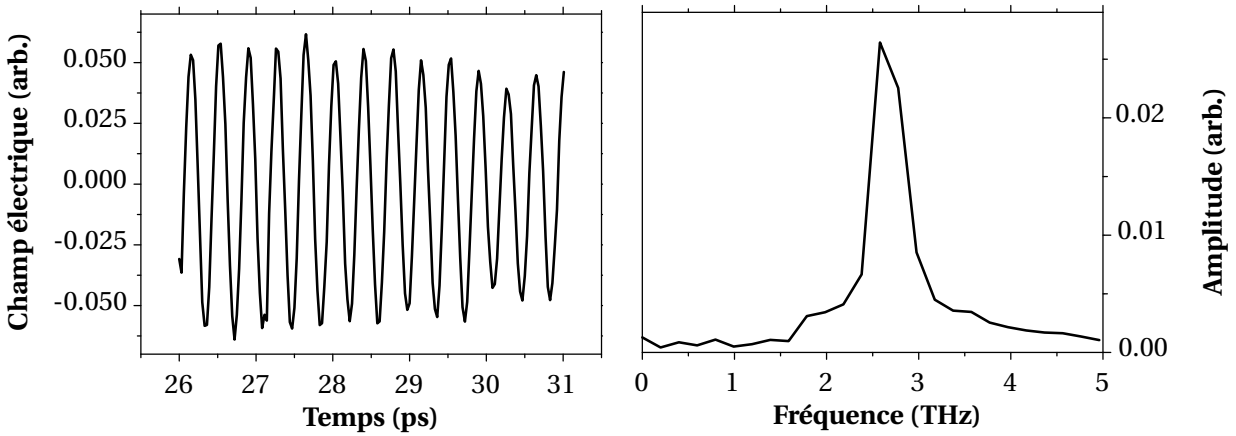


FIGURE 6.25 – Mesure différentielle $f - 2f$ du LCQ V588 pour un courant au-dessus du seuil (0.3 A) sans modulation RF.

optique sur notre montage de TDS. Une fois que l'onde THz est couplée dans la cavité, il faut ajuster le retard entre les impulsions THz et RF. Si l'impulsion RF arrive trop tôt, l'impulsion THz n'aura pas le temps de s'étendre dans la cavité et le régime laser démarrera sur l'émission spontanée. Si elle arrive trop tard, l'impulsion THz se dissipe et ne peut plus initier le champ laser. Pour régler le retard, le LCQ est polarisé au point de fonctionnement choisi et l'amplitude des oscillations, après un aller-retour dans la cavité (soit un retard de ~ 100 ps), est mesurée pour différentes valeurs du retard. Lorsque les deux impulsions sont bien synchronisées, l'amplification des oscillations est significative. La figure 6.26 montre le champ électrique du LCQ dans le domaine temporel pendant les premières 600 ps après l'injection de l'onde THz externe. Cette trace temporelle montre une amplification nette du signal d'entrée. Le champ électrique, correspondant aux échos successifs dans la cavité, augmente jusqu'à un retard de 300 ps puis décroit légèrement à cause de la forme des impulsions électriques.

La transformée de Fourier de ce signal temporel donne le spectre du laser (voir figure 6.27) car on mesure directement le champ d'émission du LCQ. On obtient une fréquence d'émission à 2.68 THz, comme attendu. Ce spectre est plus complexe à interpréter que celui présenté pour l'échantillon simple plasmon V455. Le pic central est séparé de 14.9 GHz de deux pics secondaires qui correspondent aux modes longitudinaux (pour une cavité de 2.8 mm), mais le spectre présente également des pics à des fréquences légèrement plus élevées (~ 2.73 THz) et l'écart de fréquences entre ces modes est plus faible. Ces pics sont issus des modes latéraux d'ordres supérieurs présents dans le guide double-métal. L'indice de ces modes est différent et l'intervalle spectral libre est alors environ deux fois plus faible. La figure 6.28 présente une simulation à deux dimensions du mode fondamental et de ces modes latéraux d'ordre supérieur. Ces modes complexifient la trace temporelle de l'émission du LCQ car ils interfèrent avec le mode fondamental.

Pour vérifier que le signal est cohérent avec notre détection et qu'il correspond à toute l'émission du LCQ (c'est à dire qu'il ne coexiste pas dans la cavité une émission incohérente issue de l'émission spontanée), on fait varier l'amplitude de l'impulsion THz couplée dans le guide. La figure 6.29 montre l'amplitude des oscillations du champ électrique pour un retard de 480 ps en fonction de la tension appliquée sur l'antenne. La courbe montre un comportement asymptotique lorsqu'on augmente la tension de l'antenne (i.e. l'amplitude de l'impulsion THz initiatrice). Ceci démontre que le LCQ est correctement injecté

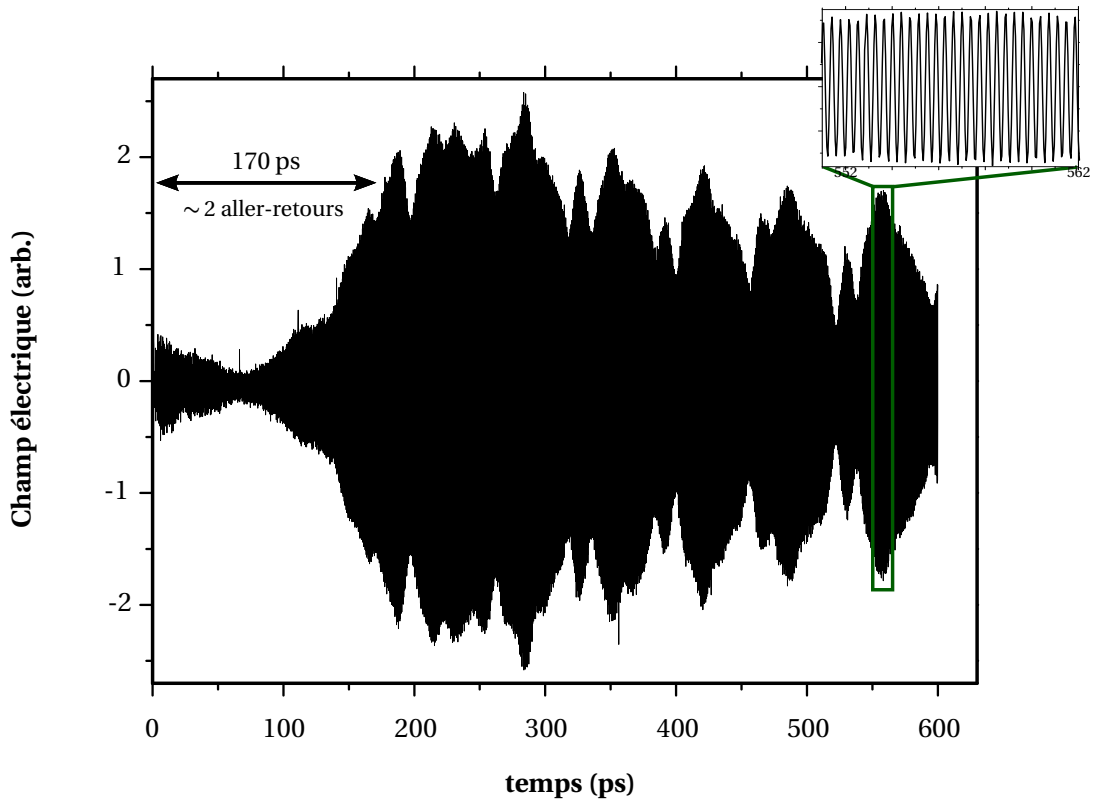


FIGURE 6.26 – Trace temporelle du champ électrique émis par le LCQ V588 pendant les 600 ps suivant l'arrivée de l'onde THz externe initiatrice. Un zoom centré sur le cadre vert montre les oscillations du champ électrique.

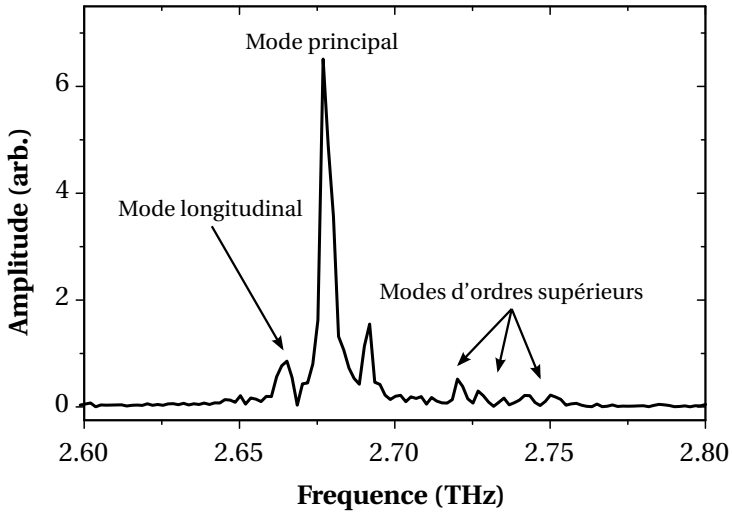


FIGURE 6.27 – Spectre de l'émission du LCQ calculé numériquement à partir de la trace temporelle de la figure 6.26.

et que son émission est cohérente avec le système de détection. Pour la première fois, la phase d'un LCQ à guide double-métal est fixée par le couplage d'une impulsion externe. On remarque cependant que la tension nécessaire pour injecter complètement le LCQ est plus importante que pour l'échantillon V455 qui avait un guide simple plasmon. Le couplage reste donc plus difficile à réaliser dans ce guide double-métal malgré l'adaptation d'impédance. Le diagramme du champ lointain sur la figure 6.22 montre que

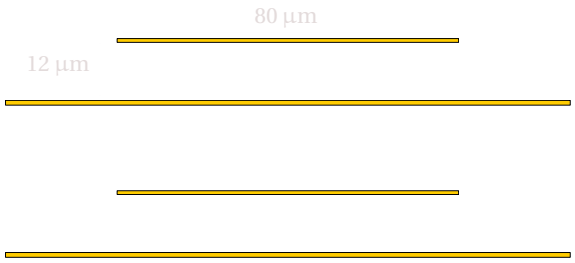


FIGURE 6.28 – Simulations à deux dimensions des modes dans le guide double-métal. Les deux figures présentent deux solutions des équations de Maxwell : le mode fondamental (en haut) et les premiers modes latéraux (en bas).

la direction du faisceau de sortie fait un angle de $\sim 5°$ avec la normale. L'angle d'incidence de l'onde THz externe n'a pas été optimisé dans cette expérience et reste nul par rapport à la normal. Il serait intéressant de pouvoir le modifier avec une assez bonne précision pour observer les différence de l'efficacité du couplage en fonction de cet angle. La tension à appliquer est 6 fois plus grande que pour les guides simple plasmon où l'efficacité de couplage était de l'ordre de 5 %. Si on considère que le champ THz nécessaire à l'injection est équivalent pour les deux géométries de guide, alors l'efficacité du couplage est inférieure à 1 % dans ces guides double-métal pourvus d'antenne en V. Cela montre qu'une faible puissance THz est suffisante pour injecter un LCQ.

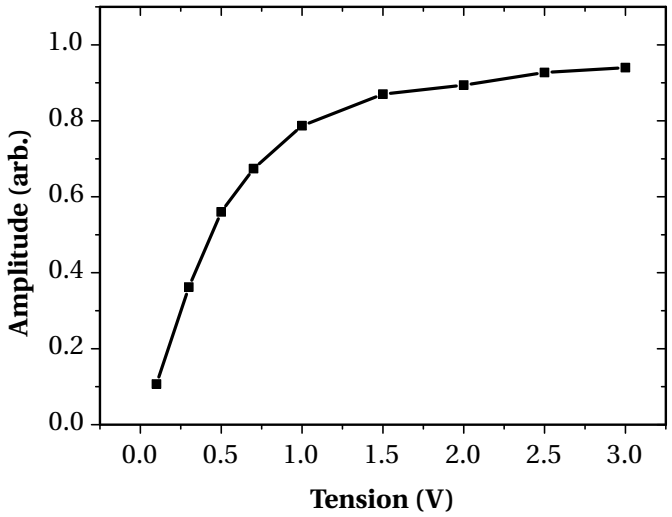


FIGURE 6.29 – Amplitude du champ électrique mesuré à 480 ps en fonction de la tension sur l'antenne THz.

D'autres différences sont à noter entre les deux types de guide. Tout d'abord, le profil de la trace temporelle ne distingue pas clairement les différents pics provenant des passages successifs dans la cavité comme c'était le cas avec les guides simple plasmon. Une explication possible est le filtrage spectral effectué par le guide d'onde dont les pertes pour les fréquences extérieures à la raie spectrale du laser sont plus importantes. De plus les guides double-métal donnent naissance à plus de modes latéraux [Fan 2008] qui interfèrent entre eux. Pour cette raison, les spectres Fabry-Pérot de ces lasers sont plus complexes (figure 6.27).

Ensuite, la construction du champ laser s'effectue plus rapidement dans le cas du guide double-métal (c'est à dire qu'on atteint le maximum d'amplitude plus rapidement). En raison du filtrage spectral par le guide, l'impulsion THz externe subit plus de pertes et s'étend plus rapidement pour former une onde stationnaire dans le guide plutôt que de se comporter comme un paquet d'onde. Dans ce cas, le champ THz externe domine plus rapidement l'émission spontanée dans toute la cavité et l'impulsion RF peut arriver plus tôt sans risque de démarrer une émission laser localement sur l'émission spontanée. Le filtrage spectral du guide explique donc cette différence de 200 ps pour les retards respectifs des maxima d'émission entre les deux guides.

6.3.4 Mesures en température

L'utilisation de sources comme les LCQ THz pour réaliser des expériences de spectroscopie dans le domaine temporel devient réellement intéressante quand les températures de fonctionnement sont assez élevées (au moins 77 K pour pouvoir refroidir à l'azote liquide ou avec des refroidissements en circuit fermé). Dans ce but, nous étudions dans ce paragraphe jusqu'à quelle température, l'émission contrôlée en phase du LCQ peut être observée dans le domaine temporel.

Pour ces expériences, les impulsions radio-fréquences utilisées sont générées par le comparateur rapide. Cette technique permet d'avoir des impulsions électriques avec un temps de montée plus court, ce qui donne une amplification plus importante lorsque le LCQ est dans le régime transitoire. La figure 6.30 représente l'enveloppe du champ électrique détecté et permet de comparer les mesures d'injection optique THz avec les deux types d'impulsions électriques (issues du comparateur ou du générateur RF).

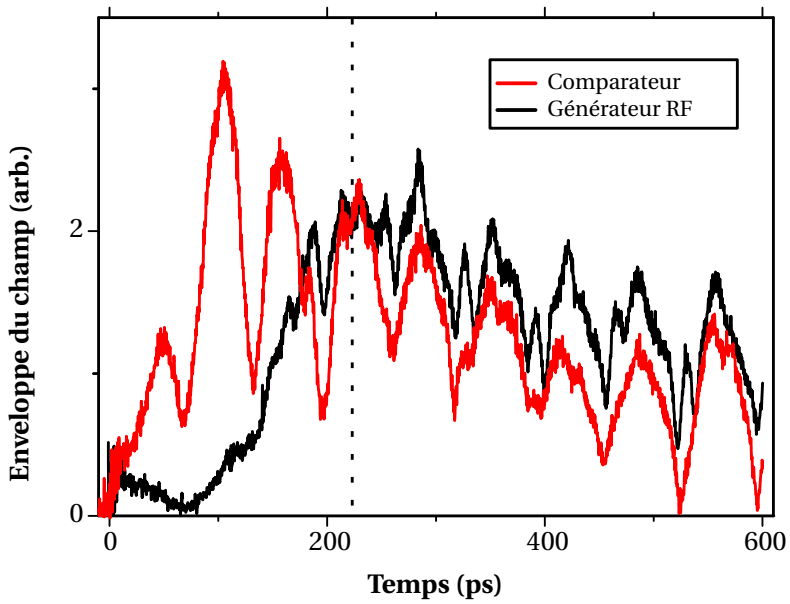


FIGURE 6.30 – Enveloppe du champ THz mesuré en sortie du LCQ avec deux types d'impulsions RF différentes.

En regardant ce qu'il se passe aux temps longs (i.e. $\tau > 200$ ps), des comportements assez similaires sont observés pour les deux cas. Les pics pour le comparateur sont un peu plus faibles en amplitude. Cela peut s'expliquer par un moins bon alignement du montage car les deux profils ont des allures comparables. La différence majeure se fait lors de la construction du champ laser. Dans le cas du comparateur,

l'amplification de l'impulsion THz est beaucoup plus importante aux temps courts. Il est difficile d'interpréter la dynamique de la mise en place du champ laser car de nombreux paramètres interviennent (propagation de l'impulsion THz dans le guide, gain dans le régime transitoire, ...). Un des paramètres clés est le temps de montée de l'impulsion RF. Dans le cas du comparateur, les impulsions sont plus courtes, ce qui permet un gain du LCQ plus important lors de la commutation du gain. Pour les mesures en température, on utilisera ce type d'impulsions électriques qui permettent d'avoir plus de gain momentanément avec des oscillations plus amples aux temps courts.

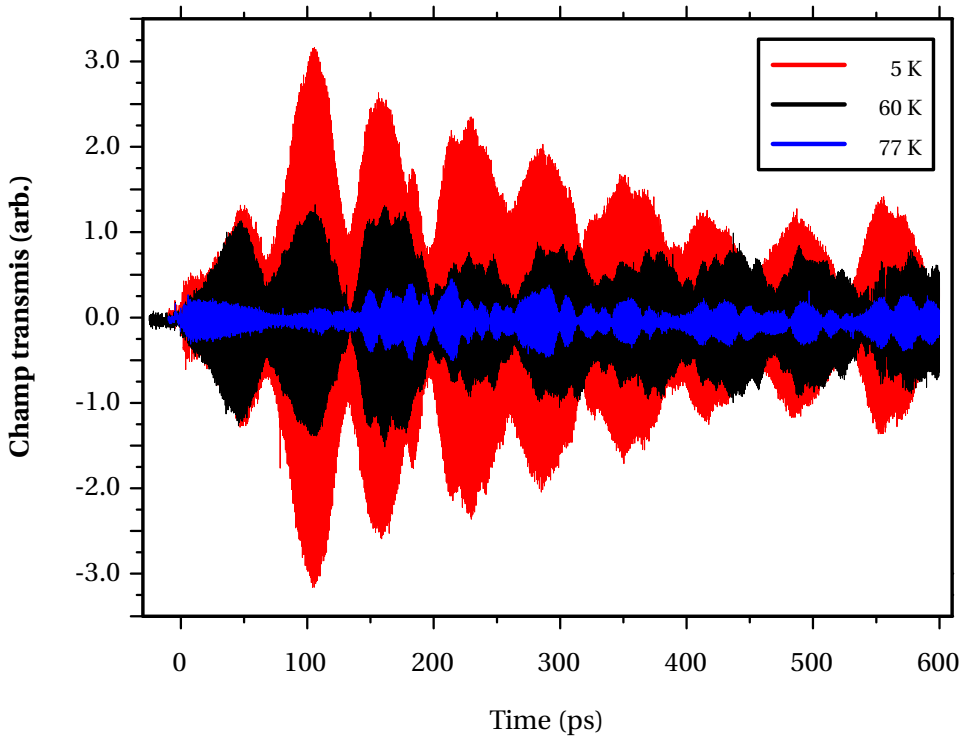


FIGURE 6.31 – Trace temporelle du champ électrique émis par le LCQ V588 pour trois températures différentes.

Pour chaque température, le point de fonctionnement de la tension quasi-DC appliquée au LCQ est optimisé pour se placer sous le seuil en l'absence d'impulsion RF. La figure 6.31 montre l'émission contrôlée en phase du LCQ V588 pour trois températures : 5 K, 60 K et 77 K. L'amplitude décroît avec l'augmentation de la température. Pour comparer cette diminution avec la diminution de puissance mesurée au détecteur pyroélectrique (voir figure 6.24), on mesure le rapport des amplitudes au carré aux retards grands (550 ps), lorsque le LCQ est en régime quasi-continu. Dans les deux cas (détection pyroélectrique et électro-optique), il y a un rapport 20 entre les puissances à 5 K et 77 K. Ceci montre que la température joue seulement sur la puissance du LCQ et non sur le processus physique permettant l'injection optique du LCQ.

L'étude de l'amplitude en fonction de la tension sur l'antenne montre le même comportement asymptotique pour les trois températures. Pour comparer plus aisément, les amplitudes sont normalisées à l'amplitude obtenue quand le LCQ est injecté (voir figure 6.32). Cela démontre que le LCQ est injecté pour la même valeur de l'amplitude de l'impulsion THz externe, et que l'efficacité du couplage est indépendante de la température. L'utilisation d'un LCQ THz pour la spectroscopie dans le domaine

temporel à plus haute température, dépend donc principalement des performances du laser. Des dessins mieux adaptés (comme les dessins à dépopulation par phonon LO [Kumar 2009]) devraient permettre d'atteindre des températures plus élevées pour le contrôle de la phase d'émission des LCQ THz.

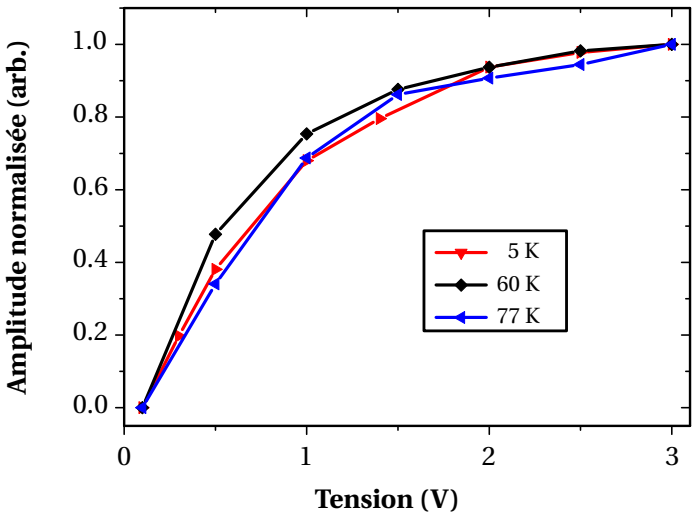


FIGURE 6.32 – Amplitude normalisée du champ électrique mesuré à 480 ps en fonction de la tension sur l'antenne THz.

6.4 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, nous avons démontré pour la première fois le contrôle de la phase d'émission d'un laser à cascade quantique possédant un guide double-métal. Cela a été possible grâce à l'utilisation d'une géométrie en V sur le contact métallique. Cette dernière permet de faire une adaptation d'impédance entre le mode guidé dans la cavité et l'espace libre.

Le couplage THz, permettant cette injection, a été favorisé par le développement d'une nouvelle géométrie d'antenne en V pour les guides double-métal. Elle se distingue des autres techniques (réseaux DFB, cristaux photoniques, antennes en cornet ...) par la simplicité de la technologie nécessaire pour adapter un ruban clivé classiquement et par sa grande bande-passante. Un procédé de photolithographie en parallèle de la fabrication devrait simplifier encore le procédé. La possibilité du couplage par une impulsion THz large bande en fait un dispositif adapté pour réaliser des expériences d'injection THz pour contrôler la phase d'émission d'un LCQ.

L'injection de LCQ double-métal a permis d'observer le contrôle de la phase pour des températures jamais atteintes jusqu'à présent. Ces mesures montrent que le contrôle de la phase est indépendant de la température du LCQ jusqu'à 77 K, autrement que par la baisse de la puissance du champ de sortie. La résolution temporelle du champ émis par un LCQ est particulièrement intéressante pour utiliser ces lasers comme sources pour des montages de spectroscopie dans le domaine temporel. L'augmentation de la température de fonctionnement est donc importante pour envisager de réelles applications. Nous avons utilisé un échantillon avec un dessin *BTC*, il faudrait utiliser des dessins à dépopulation par phonon LO pour atteindre des températures plus élevées (jusqu'à ~ 200 K [Fathololoumi 2012]) et pour vérifier que l'injection des LCQ est toujours indépendante de la température sur une plage plus grande.

Le montage expérimental n'a pas été optimisé au niveau du faisceau THz par rapport aux échantillons. Même pour l'échantillon choisi où l'émission est quasi-normale à la facette, il y a un angle de 5° entre la normale à la facette et le lobe principal de l'émission. Changer la direction du chemin THz pour qu'elle soit parallèle au lobe principal est lourd expérimentalement mais peut être réalisé si nécessaire.

D'autres perspectives s'ouvrent à partir des résultats obtenus. Les échantillons peuvent être améliorés. La forme triangulaire des antennes est relativement simple et n'a pas été optimisée autrement que par l'étude de la hauteur du triangle. On peut imaginer de simuler d'autres formes à enlever sur le contact métallique pour favoriser le couplage et l'extraction du THz de la cavité. On peut également penser à un échantillon hybride possédant des cavités couplées pour injecter le LCQ avec une impulsion proche-IR [Maysonnave 2012b] et une antenne en V pour faciliter l'émission de THz vers l'extérieur de la cavité. Dans cette configuration, l'impulsion RF appliquée sur la section longue est synchronisée avec l'arrivée de l'impulsion fs sur la section courte. L'onde THz générée par l'émetteur intégré injecte la section longue et fixe sa phase. Ce mode d'injection s'affranchit de l'antenne et supprime notamment les échos néfastes provenant du substrat de l'antenne. Un tel échantillon serait également utile pour réaliser des mesures de gain en température d'un LCQ double-métal. La géométrie à cavités couplées est bien adaptée pour les mesures de gain car la référence est plus facile à obtenir.

Enfin, ces expériences de contrôle de la phase peuvent être combinées à une modulation GHz de la cavité pour faire du blocage de modes actif [Freeman 2012]. Jusqu'à présent, les démonstrations d'émission d'impulsions courtes ont été faites pour des LCQ à guide simple plasmon à basse température (10 K). L'utilisation de cette nouvelle géométrie de guide devrait permettre d'augmenter significativement la température de fonctionnement.

Conclusion générale

Le travail de cette thèse a consisté à étudier deux propriétés différentes des lasers à cascade quantique à partir du couplage d'une onde externe dans la cavité. La première étude a montré les propriétés d'optique non-linéaire résonantes interbandes des LCQ. Dans la seconde partie, nous avons amélioré le couplage d'une onde externe dans un guide double-métal pour contrôler la phase d'émission d'un LCQ THz.

Optique non-linéaire résonante dans les LCQ

Dans cette partie, nous avons montré que la région active d'un laser à cascade quantique pouvait être le siège d'une interaction non-linéaire entre un faisceau proche-IR (E_{NIR}) et le champ THz intracavité. Le LCQ THz joue ainsi le double rôle de milieu non-linéaire et de source des photons THz. Cette expérience a une géométrie colinéaire où les faisceaux incidents et générés se propagent dans le même sens. La génération de la somme et de la différence de fréquences, à l'énergie $E = E_{\mathrm{NIR}} \pm E_{\mathrm{THz}}$, ont été observées lorsque l'excitation proche-IR était résonante avec les transitions interbandes des puits quantiques de la zone d'émission de la cascade quantique. En effet, les non-linéarités optiques sont exaltées lorsque les faisceaux incidents sont résonants avec des transitions du milieu non-linéaire. Le faisceau généré à l'énergie de la différence de fréquences est émis à partir d'un niveau virtuel situé dans la bande interdite effective de la région active, ce qui permet sa propagation sans pertes. Bien que le faisceau généré soit hors résonance, l'énergie du photon THz est très faible devant celle des transitions interbandes, conduisant à un mécanisme proche d'une double résonance. L'utilisation d'un LCQ plus puissant, muni d'un guide double-métal où le champ THz est plus confiné augmente la densité de puissance dans la cavité. Ce champ THz intense dans la cavité permet de générer des ordres supérieurs (jusqu'à l'ordre 3) aux énergies $E = E_{\mathrm{NIR}} - nE_{\mathrm{THz}}$ avec n l'ordre de la raie générée. La génération de ces ordres supérieurs montre des comportements différents aux niveaux des résonances interbandes et permet de mieux comprendre le rôle de l'absorption dans la géométrie colinéaire. Elle démontre également l'efficacité du dispositif pour convertir les photons THz sur une porteuse proche-IR.

La démonstration du mélange d'ondes a également été effectuée dans des LCQ MIR à base de puits GaAs. Ces LCQ fonctionnent à des températures plus élevées, et l'interaction non-linéaire a été démon-

trée jusqu'à 275 K. Néanmoins, l'efficacité du mélange de fréquences est moins grande avec ces systèmes à cause notamment des problèmes de désaccord de phase. En effet, dans le cas de l'interaction non-linéaire entre des photons proche et moyen-IR, la longueur de cohérence liée au Δk est plus courte que la longueur d'absorption ; par conséquent, des interférences destructives limitent la génération efficace de la différence de fréquences. L'utilisation de LCQ basés sur des substrats InP, plus puissants et fonctionnant à plus hautes températures, devrait permettre d'augmenter l'efficacité dans ce domaine de fréquences.

Ces expériences montrent qu'une conversion de fréquences efficace (jusqu'à 0.13 %) est réalisable dans un dispositif intégré à un LCQ. Le confinement des modes dans la cavité donne accès à des champs forts. Ce champ THz intense a été utilisé dans cette thèse pour démontrer les propriétés d'optique non-linéaire résonantes des LCQ. De manière plus générale, ce dispositif ouvre la voie à des études nécessitant de tels champs THz sans pour autant avoir recours à de grands instruments. L'intégration de ce dispositif est adaptée pour développer des applications dans le domaine des télécommunications optiques où il peut être utile de décaler les fréquences. La conversion de fréquences démontre également un intérêt pour étudier le rayonnement d'un LCQ en utilisant les techniques de détection du proche-IR.

Contrôle de la phase dans les LCQ THz à guide d'onde double-métal

Nous avons montré dans cette deuxième partie que la phase d'émission d'un LCQ THz possédant un guide double-métal pouvait être contrôlée par une impulsion THz externe. Le blocage de la phase permet de détecter le champ THz quasi-monochromatique issu du LCQ au moyen d'un montage de spectroscopie dans le domaine temporel. La dynamique de la construction du champ laser est ainsi observée dans le domaine temporel et les LCQ THz peuvent être utilisés pour la TDS en tant que sources puissantes et fines spectralement.

Cet amorçage dans un guide double-métal par une onde externe a été possible grâce à une géométrie originale du LCQ. Des antennes sont formées à proximité des facettes par la gravure d'une rainure en forme de V sur le contact métallique supérieur du LCQ. Elle réalisent une adaptation d'impédance entre les modes du guide et la propagation dans l'espace libre. Ces antennes sont issues d'un procédé de fabrication relativement simple et permettent de coupler plus facilement une impulsion THz dans la cavité. De manière analogue, l'extraction du champ THz à l'extérieur de la cavité est favorisée. L'utilisation de guides double-métal permet d'augmenter la température de fonctionnement des LCQ. Le contrôle de la phase a ainsi pu être réalisé jusqu'à 77 K.

Cette démonstration représente une étape supplémentaire pour le contrôle du champ d'émission des LCQ. En effet, les recherches démontrant le verrouillage de la phase d'émission ou la génération d'impulsions courtes par blocage de modes dans le domaine THz ont toujours été effectuées à basse température jusqu'à présent ($\sim$ 10 K). Augmenter la température de fonctionnement, permet d'étudier ces systèmes en faisant varier un nouveau paramètre, la température, qui pourrait intervenir autrement que par la simple dégradation des performances du laser.

Perspectives

On peut utiliser les propriétés des deux expériences décrites (mélange de fréquences résonant et initiation du champ laser) pour observer le comportement dynamique de l'interaction non-linéaire réso-

nante. D'un point de vue fondamental, il est intéressant d'observer si la réponse non-linéaire est instantanée ou s'il y a une certaine dynamique. Ce problème de dynamique peut apparaître dans le cas d'application pour les télécommunications optiques. Dans ce domaine, les porteuses proche-IR sont modulées à haute-fréquences (dizaine de GHz) pour former des impulsions lumineuses, dans le cas d'une application de décaleur de longueur d'ondes tout-optique, il est nécessaire que le faisceau issu du mélange d'ondes soit généré sur une dynamique plus courte que la durée des impulsions de la porteuse pour ne pas perdre d'informations. Dans la première partie de la thèse, tous les effets non-linéaires ont été mesurés dans le cadre d'un régime stationnaire du LCQ et d'une excitation laser continue. Au contraire, lors de l'amorçage du champ laser du LCQ, nous avons sondé la formation du champ laser avant qu'il n'atteigne un régime stationnaire. Nous pouvons faire la synthèse de ces deux expériences pour réaliser la génération de différence de fréquences lorsque le LCQ est encore en régime transitoire. Le faisceau généré à la différence de fréquences présentera la dynamique de la construction du champ laser THz (connu par TDS) modulée par le temps de réponse des interactions non-linéaires résonantes. De manière concrète, le LCQ est amorcé à partir d'une impulsion THz externe via un montage de spectroscopie TDS. Dans le même temps, un faisceau continu proche-IR est couplé dans la cavité du LCQ pour générer le mélange d'ondes. La détection du faisceau généré peut se faire simplement avec des photodiodes ultra-rapides à la sortie du spectromètre à réseau pour le proche-IR, ou bien par corrélation avec les impulsions NIR utilisées dans le montage de spectroscopie TDS. En détectant le faisceau généré en fonction du temps, on pourrait ainsi remonter aux propriétés dynamiques des processus intervenant dans le mélange de fréquences.

Enfin, les expériences de TDS ou de mélange de fréquences présentées dans ce manuscrit utilise un faisceau proche-IR généré, par un laser Ti :Saphir, aux alentours de 800 nm (en impulsionnel ou en continu). Ce laser est adapté à nos expériences car son émission est centrée à une énergie légèrement supérieure à celle de la bande interdite du GaAs. Ces lasers sont cependant un peu trop volumineux pour développer des expériences de spectroscopie THz en dehors du laboratoire. Il serait intéressant de travailler à une longueur d'onde de 1.55 μm, qui bénéficie de nombreux développements notamment grâce à son utilisation dans les télécommunications optiques. Changer de longueur d'onde nécessite d'adapter les matériaux avec lesquels nous travaillons. Par exemple, pour la génération d'impulsion via une antenne photoconductrice, il faut utiliser des substrats d'InGaAs (dont la bande interdite est plus faible) pour fabriquer les antennes afin de pouvoir photo-exciter des pairs électron-trous. De la même manière, les cristaux pour la détection électro-optique doivent être adaptés à cette longueur d'onde. Du point de vue des expériences de mélange d'ondes, on a pu voir au chapitre 4 que l'excitation à cette longueur d'onde était compatible pour être résonante avec les transitions interbandes des LCQ reposant sur des puits InGaAs/InAlAs.

ANNEXE A

Résonance TM de l'échantillon L773

Dans cette annexe, nous cherchons à identifier les résonances apparaissant dans l'intensité de la raie latérale du premier et du second ordre en fonction de l'énergie de la pompe proche-IR, polarisée TM. Ces résonances correspondent à des excitations résonantes avec des transitions interbandes trou léger/électron. Nous avons donc simulé la structure de bande de l'échantillon L773 en prenant en compte les états de trou léger dans la bande de valence. La figure A.1 présente cette structure de bande où seul les états ayant des recouvrements significatifs ont été tracés.

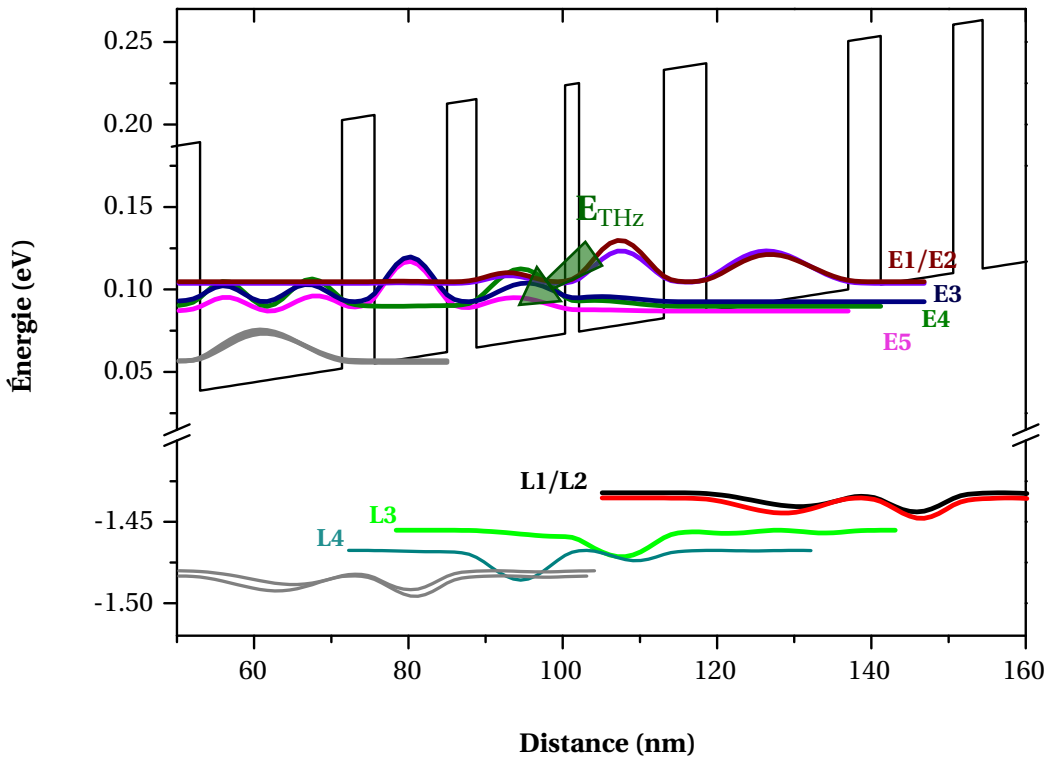


FIGURE A.1 – Structure de bande simulée de la croissance L773 pour un champ de 7.3 kV/cm. Seul les modules carrés des fonctions d'ondes des trous légers sont représentés dans la bande de valence.

La figure A.2 présente sur un même graphique l'efficacité en fonction de l'énergie d'excitation et le recouvrement des transitions interbandes autorisées dans la polarisation TM. L'énergie de ces transitions a été décalée vers le rouge de la même manière que pour les transitions faisant intervenir les états de trous lourds. Ce décalage est dû à l'échauffement par effet Joule du LCQ quand ce dernier est allumé [Vitiello 2005]. La résonance de la raie latérale du premier ordre à 1.528 eV provient des transitions entre l'état de trou léger noté **L1** et la paire d'états constituée par l'état injecteur et l'état haut du LCQ dans la bande de conduction (noté **E1** et **E2**). La transition entre l'état **L2** et ces deux mêmes états dans la bande de conduction contribue également pour la résonance de la raie issue du deuxième ordre à cette énergie. La résonance est possible avec ces transitions interbandes pour la raie du second ordre car elle est toujours émise en dessous du gap pour cette énergie d'excitation et il n'y a pas de problème d'absorption contrairement au premier ordre. Pour la résonance à plus haute énergie (1.540 eV), c'est le trou **L3** qui est impliqué avec les états **E3** et **E4**.

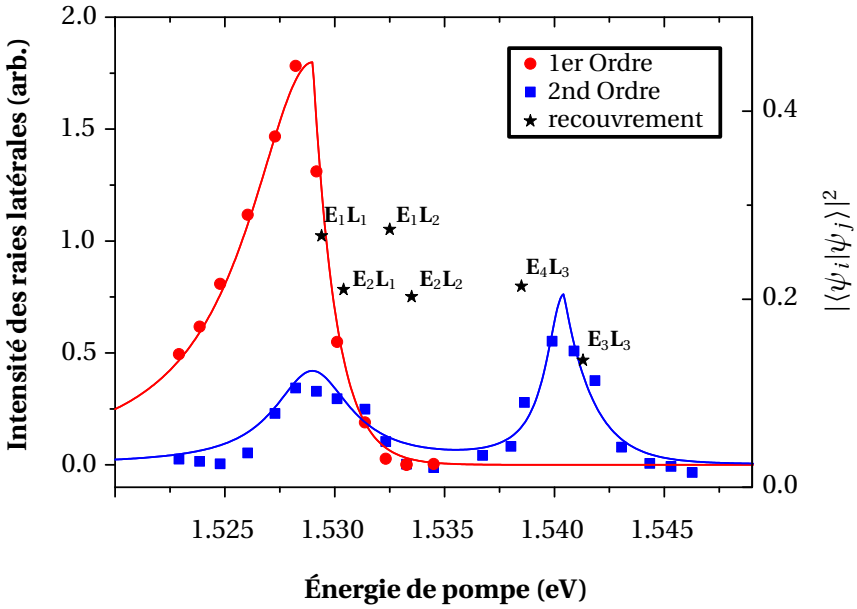


FIGURE A.2 – Intensité intégrée des raies latérales de l'ordre 1 et 2 en fonction de l'énergie de pompe. La pompe est polarisée en TM, excitant principalement les états de trou léger. Les étoiles noires représentent les recouvrements élevés au carré des transitions interbandes significatives ($j \rightarrow i$) entre le j^{e} état électronique et le i^{e} état de trou léger de la structure de bande simulée sur la figure A.1.

De même que pour les résonances pour la polarisation TE, le pic d'efficacité à basse énergie a pour origine les transitions interbandes dans le puits large où a lieu la dépopulation par phonon LO. La résonance à plus haute énergie provient des transitions interbandes avec l'état bas du laser.

ANNEXE B

Mesure FTIR de l'échantillon L773

Pour déterminer le mécanisme mis en jeu lors de la génération de la raie du second ordre,nous avons vérifié que le LCQ n'émettait pas de seconde harmonique à $2E_{\mathrm{THz}} = 24$ meV. Ces photons généreraient par différence de fréquences une raie à la même énergie. De plus l'intensité de ces photons évolue de manière quadratique avec la puissance THz (le doublage de fréquences étant un processus du deuxième ordre). La dépendance de la raie générée serait alors quadratique également.

Pour vérifier qu'il n'y a pas de génération de seconde harmonique, le spectre du LCQ a été mesuré par un FTIR. Néanmoins, il faut prendre un soin particulier pour mesurer l'émission de la seconde harmonique du LCQ. En effet, même en l'absence de photons à $2E_{\mathrm{LCQ}}$, pour des raisons électroniques liées au détecteur, il y a du signal à cette énergie sur le spectrogramme.

On utilise un filtre qui laisse passer les grandes longueurs d'onde et qui coupe aux alentours de 50 µm. Le filtre est composé de silice macroporeuse qui diffuse les courtes longueurs d'onde. La fréquence de coupure dépend de la taille des pores. La calibration du filtre avec une lampe large spectre montre un rapport 260 entre la transmission à 2.9 THz ∼ 11.9 meV et à 5.8 THz ∼ 23.8 meV. Pour ces me-

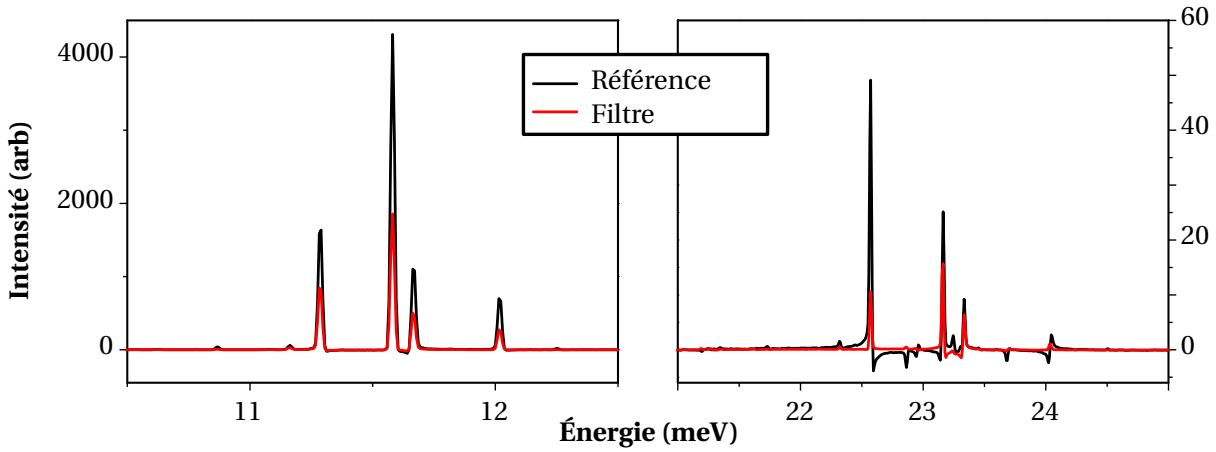


FIGURE B.1 – Spectres du LCQ alimenté à 350 mA (DC) avec (rouge) et sans (noir) le filtre passe-haut décrit dans le texte à l'énergie d'émission (spectre à gauche) et au double de cette énergie (spectre à droite, échelle différente).

sures le LCQ a été alimenté en continu à 350 mA. Les spectres avec et sans le filtre sont présentés sur la figure B.1 à l'énergie d'émission et au double de cette énergie (les échelles sont différentes). On remarque sur le spectre de gauche que le filtre diffuse en partie l'émission du laser à 3 THz. Sur le spectre de droite on note que le rapport d'intensité entre le spectre filtré et non-filtré est sensiblement le même que pour la raie principale. Cela montre que l'origine de ces pics à plus hautes fréquences ont une origine électronique dans la chaîne de détection et ne sont pas dus à la génération de seconde harmonique dans le LCQ.

ANNEXE C

Caractérisation par micro-PL des lasers L964 et L966

Les différentes couches du guide d'onde des LCQ peuvent être caractérisées par micro-PL. Un objectif de microscope permet en effet de focaliser l'excitation lumineuse de manière très locale sur la facette du ruban. La recombinaison interbande de l'alliage d'AlGaAs à 25% émet aux alentours de 1.8 eV, c'est-à-dire en deçà des longueurs d'ondes disponibles avec notre laser Ti :saphir. Le centre d'une facette est excité avec un laser He :Ne (633 nm) et la luminescence est détectée au travers du spectromètre pour un courant nul sur le LCQ. Les spectres d'émission pour les deux types de guide sont présentés sur la figure C.1.

Sur les deux spectres de photoluminescence, on peut voir deux pics à 1.6 eV et 1.5 eV correspondant respectivement à la région active (l'énergie est plus élevée à cause du confinement dans les puits quantiques) et aux gaines en GaAs. Les régions actives sont rigoureusement identiques ce qui explique la similarité des pics sur les spectres de PL. Pour les gaines en GaAs, on a vu au paragraphe 4.1.2 que leur épaisseur variait entre les deux guides. Comme elles sont plus épaisses et plus rapprochées du centre pour le guide classique, leur émission dans le spectre de PL est plus intense. Pour le guide dessiné pour le mélange d'onde, on observe l'émergence d'un triplet à 1.85 eV correspondant à la couche d'AlGaAs insérée entre la région active et les gaines de GaAs.

La figure C.2 présente le spectre de luminescence du laser L964 dans les conditions d'opération pour le mélange d'onde (i.e. $T = 210$ K et $J = 13$ kA/cm^2). L'énergie du pic principal de la région active est déplacé vers le rouge à 1.54 eV à cause de l'augmentation de la température et du champ électrique appliqué. Cette énergie correspond à l'excitation d'énergie minimale nécessaire pour observer la génération de la différence de fréquences.

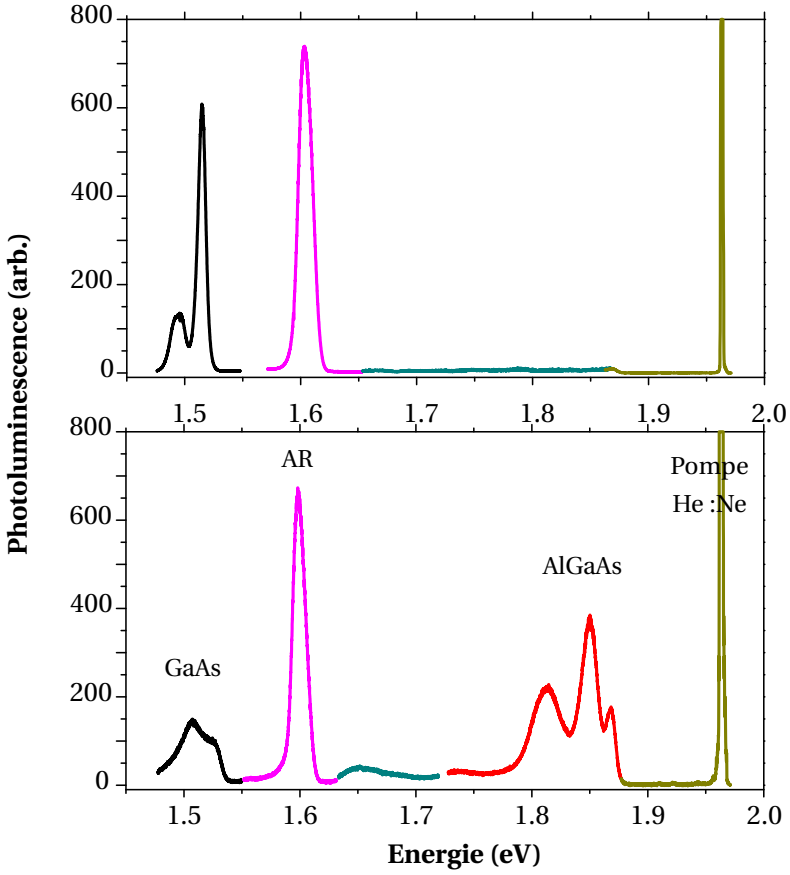


FIGURE C.1 – Spectre de photoluminescence à 10 K du guide conventionnel (spectre du haut) et renforcé par AlGaAs (spectre du bas) sans champ appliqué sur la structure.

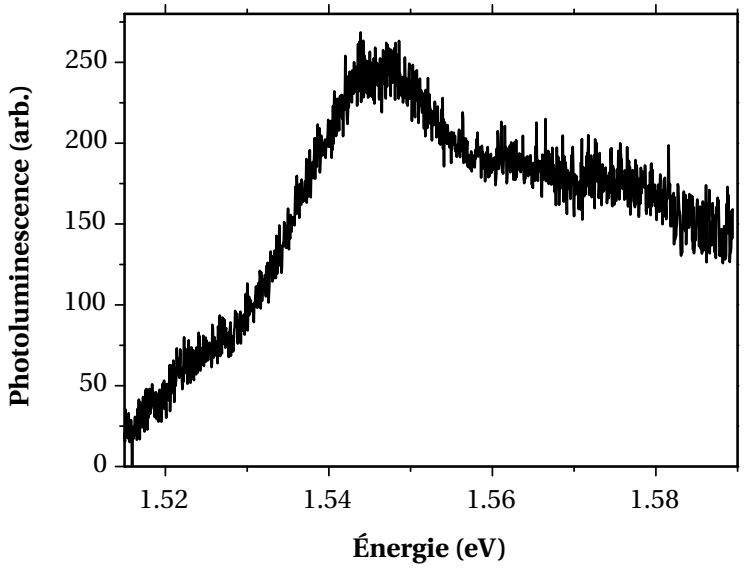


FIGURE C.2 – Spectre de photoluminescence à 210 K du laser L964 alimenté par une densité de courant de 13 kA/cm^2.

ANNEXE D

Couplage d'une onde THz externe dans un LCQ double métal à antennes cornet

Les antennes en cornet ont été développées sur les LCQ à guide double-métal [Maineult 2008] pour favoriser l'extraction de THz en sortie. Elle réalise une adaptation d'impédance entre les modes du guide et la propagation en espace libre. Le faisceau émis par le LCQ est alors plus intense et plus directif ($\sim 10°$ de divergence). Les triangles des antennes sont réalisés pendant la fabrication des rubans laser sur une couche sacrificielle éliminée par gravure humide. Les facettes sont gravées par plasma et le triangle est légèrement relevé par un micro-manipulateur pour former l'antenne [Peytavit 2008].

Nous avons voulu tirer profit de cette adaptation d'impédance pour coupler une impulsion THz externe dans le LCQ (voir figure D.1) afin de réaliser des mesures de gain du laser. La technique de mesure de gain a été décrite à la section 5.2.

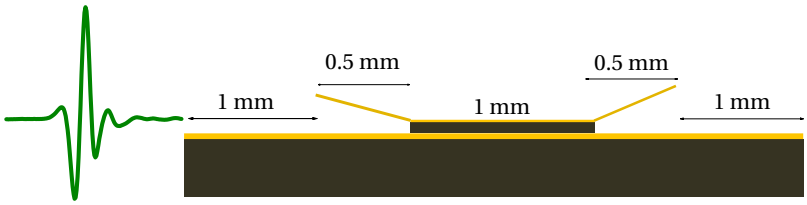


FIGURE D.1 – Schéma de la géométrie de l'échantillon utilisé.

La figure D.2 montre les traces temporelles des signaux couplés quand le LCQ est éteint (bleu) ou allumé (vert). On observe que vers 8 ps les deux signaux diffèrent. Cela correspond au retard dû à la propagation dans ce LCQ d'1 mm de long. En effectuant la différence numérique entre ces deux signaux (courbe en noir), on retrouve le signal différentiel (également mesuré, courbe en rouge) donné par la détection synchrone dans la configuration $f-2f$. La transformée de Fourier de la mesure $f-2f$ est représentée sur la figure D.3. La présence de ces oscillations montre que l'impulsion THz issue de l'antenne peut être en partie couplée dans le LCQ.

La série d'expériences relève toutefois deux problèmes majeurs au delà de la difficulté de la réalisation des échantillons. Tout d'abord, comme on peut le voir sur la figure D.2, la référence quand le LCQ est

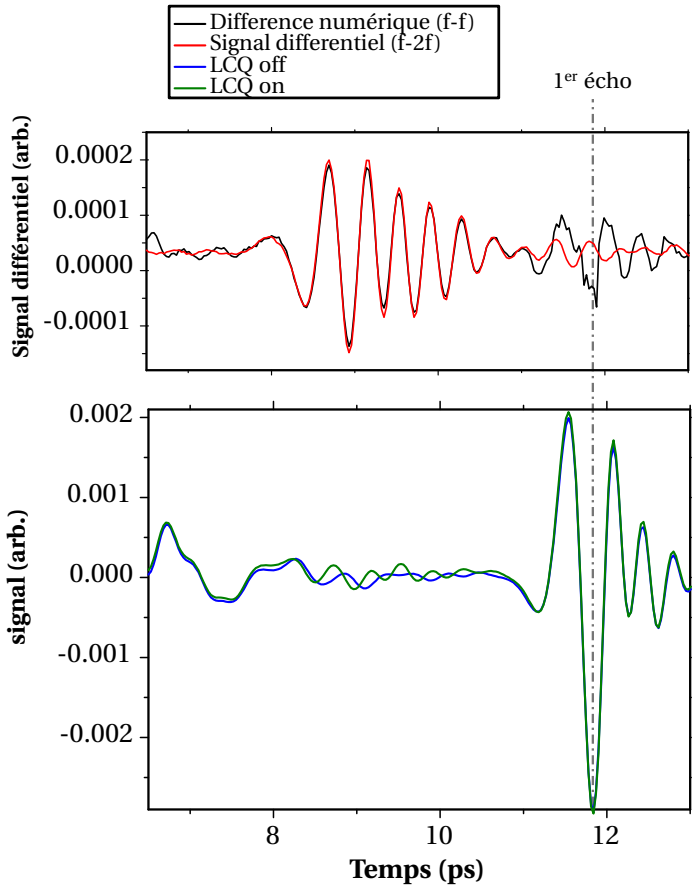


FIGURE D.2 – Signal différentiel et trace temporel sur un échantillon possédant une antenne en cornet en entrée et en sortie.

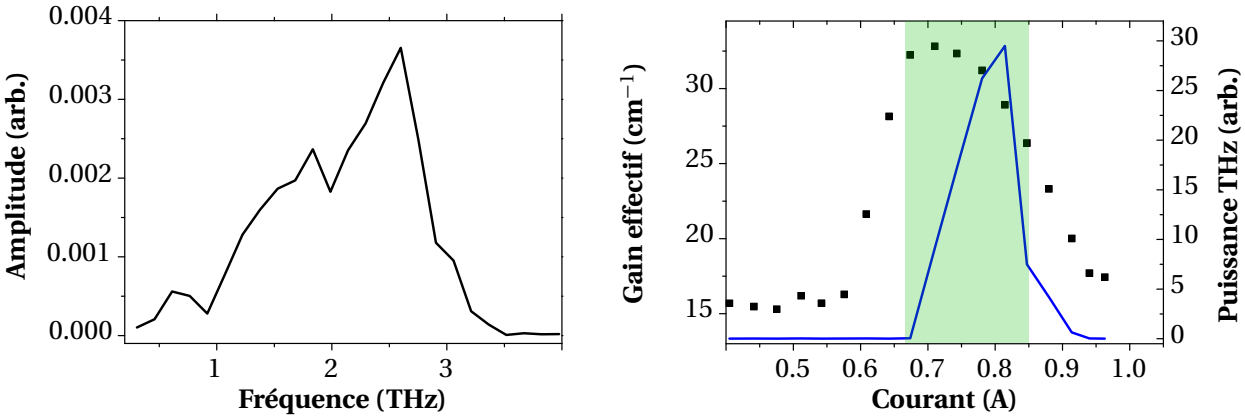


FIGURE D.3 – Transformée de Fourier du signal différentiel (à gauche) et mesure du gain (carrés noirs) et puissance THz (courbe bleue) en fonction du courant appliqué au LCQ (figure de droite).

éteint est inexploitable pour calculer des valeurs du gain. Le signal transmis dans le LCQ est très faible pour le retard correspondant à la propagation dans la cavité. Le spectre de ce signal transmis est très perturbé par le bruit et il est difficile de déterminer la bonne fenêtre temporelle à considérer. Le bruit vient

principalement des composantes retardées de l'impulsion principale qui passe autour du ruban. Si le spectre de la référence est trop perturbé alors il est impossible d'avoir une valeur du gain quantitative. Pour obtenir une bonne référence, il est nécessaire de limiter au maximum la détection du rayonnement THz qui ne passe pas dans le ruban, c'est le deuxième défi après l'efficacité de couplage.

Pour faire une étude qualitative du gain, on choisit comme référence une mesure différentielle à un courant sous le seuil laser, où le gain est supposé être faible. La mesure différentielle permet de nous affranchir de l'impulsion THz non-transmise dans le LCQ. Le gain "effectif", g_{eff}, calculé est alors :

$$g_{\text{eff}} = \frac{2}{L} \ln\left(\frac{e^{gL}-1}{g_0 L}\right), \tag{D.1}$$

avec L la longueur du LCQ, g le gain réel et g_0 le gain en dessous du seuil. La quantité g_0 nous est inconnue, il n'est alors pas possible de remonter à la valeur du gain g.

L'allure du gain effectif en fonction du courant appliqué sur la structure montre une saturation lorsque le LCQ est dans le régime laser (partie en coloriée en vert). Cela montre que ce gain calculé permet d'avoir des informations qualitatives sur l'échantillon, mais comme le montre l'expression D.1, on ne peut pas avoir accès à la valeur du gain avec cette méthode de calcul.

Bibliographie

[Adam 2006] A. J. L. Adam, I. Kašalynas, J. N. Hovenier, T. O. Klaassen, J. R. Gao, E. E. Orlova, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu et J. L. Reno. *Beam patterns of terahertz quantum cascade lasers with subwavelength cavity dimensions*. Appl. Phys. Lett., vol. **88**, no. 15, page 151105, 2006.

[Afromowitz 1974] M. A. Afromowitz. *Refractive index of Al_x $Ga_{1-x}As$*. Solid State Comm., vol. **15**, no. 1, pages 59–63, 1974.

[Amanti 2009a] M. I. Amanti, M. Fischer, G. Scalari, M. Beck et J. Faist. *Low-divergence single-mode terahertz quantum cascade laser*. Nature Photon., vol. **3**, no. 10, pages 586–590, Septembre 2009.

[Amanti 2009b] M. I. Amanti, G. Scalari, R. Terazzi, M. Fischer, M. Beck, J. Faist, A. Rudra, P. Gallo et E. Kapon. *Bound-to-continuum terahertz quantum cascade laser with a single-quantum-well phonon extraction/injection stage*. New J. Phys., vol. **11**, page 125022, Décembre 2009.

[Armstrong 1962] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing et P. S. Pershan. *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*. Phys. Rev., vol. **127**, no. 6, page 1918, 1962.

[Auston 1984] D. H. Auston, K. P. Cheung et P. R. Smith. *Picosecond photoconducting Hertzian dipoles*. Appl. Phys. Lett., vol. **45**, no. 3, page 284, 1984.

[Babinski 2001] A. Babinski, P. Witczak, A. Twardowski et J. M. Baranowski. *Electroluminescence from a forward-biased Schottky barrier diode on modulation Si δ-doped GaAs/InGaAs/AlGaAs heterostructure*. Appl. Phys. Lett., vol. **78**, no. 25, page 3992, 2001.

[Bai 2010] Y. Bai, S. Slivken, S. Kuboya, S. R. Darvish et M. Razeghi. *Quantum cascade lasers that emit more light than heat*. Nature Photon., vol. **4**, pages 2–5, 2010.

[Baltuska 2003] A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scinzi, T. W. Hänsch et F. Krausz. *Attosecond control of electronic processes by intense light fields*. Nature, vol. **421**, page 611, 2003.

[Barbieri 2004] S. Barbieri, J. Alton, H. E. Beere, J. Fowler, E. H. Linfield et D. Ritchie. *2.9 THz quantum cascade lasers operating up to 70 K in continuous wave*. Appl. Phys. Lett., vol. **85**, page 1674, 2004.

[Barbieri 2007] S. Barbieri, W. Maineult, S. S. Dhillon, C. Sirtori, J. Alton, N. Breuil, H. E. Beere et D. A. Ritchie. *13 GHz direct modulation of terahertz quantum cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. **91**, no. 14, page 143510, 2007.

[Barbieri 2010] S. Barbieri, P. Gellie, G. Santarelli, L. Ding, W. Maineult, C. Sirtori, R. Colombelli, H. Beere et D. Ritchie. *Phase-locking of a 2.7-THz quantum cascade laser to a mode-locked erbium-doped fibre laser*. Nature Photon., vol. **4**, no. 9, pages 636–640, Juin 2010.

[Bastard 1988] G. Bastard. Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures. Monographies de physique. Les Éditions de Physique, 1988.

[Beard 2000] M. Beard, G. Turner et C. Schmuttenmaer. *Transient photoconductivity in GaAs as measured by time-resolved terahertz spectroscopy*. Phys. Rev. B, vol. **62**, no. 23, pages 15764–15777, Décembre 2000.

[Beck 2002] M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Ilegems, E. Gini et H. Melchior. *Continuous Wave Operation of a Mid-Infrared Semiconductor Laser at Room Temperature*. Science, vol. **295**, no. 5553, pages 301–305, 2002.

[Belkin 2007] M. Belkin, F. Capasso, A. Belyanin, D. L. Sivco, A. Y. Cho, D. C. Oakley, C. J. Vineis et G. W. Turner. *Terahertz quantum-cascade-laser source based on intracavity difference-frequency generation*. Nature Photon., vol. **1**, no. 5, pages 288–292, Mai 2007.

[Bengloan 2004] J.-Y. Bengloan, A. De Rossi, V. Ortiz, X. Marcadet, M. Calligaro, I. Maurin et C. Sirtori. *Intracavity sum-frequency generation in GaAs quantum cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. **84**, no. 12, page 2019, 2004.

[Bengloan 2005] J.-Y. Bengloan. *Amélioration des performances des LCQ : étude du confinement optique et des propriétés thermiques*. Thèse de doctorat, Université Paris XI, 2005.

[Berger 2004] V. Berger et C. Sirtori. *Nonlinear phase matching in THz semiconductor waveguides*. Semicond. Sci. and Technol., vol. **19**, no. 8, pages 964–970, Août 2004.

[Blakemore 1982] J. S. Blakemore. *Semiconducting and other major properties of gallium arsenide*. J. Appl. Phys., vol. **53**, no. 10, page R123, 1982.

[Boitier 2010] F. Boitier, A. Godard, A. Ryasnyanskiy, N. Dubreuil, P. Delaye, C. Fabre et E. Rosencher. *Second order coherence of broadband down-converted light on ultrashort time scale determined by two photon absorption in semiconductor*. Opt. Express, vol. **18**, no. 19, pages 20401–20408, 2010.

[Boyd 2008] R. W. Boyd. Nonlinear Optics. Nonlinear Optics Series. Elsevier Science, 2008.

[Burghoff 2011] D. Burghoff, T.-Y. Kao, D. Ban, A. W. M. Lee, Q. Hu et J. Reno. *A terahertz pulse emitter monolithically integrated with a quantum cascade laser*. Appl. Phys. Lett., vol. **98**, no. 6, page 061112, 2011.

[Carosella 2012] F. Carosella, C. Ndebeka-Bandou, R. Ferreira, E. Dupont, K. Unterrainer, G. Strasser, A. Wacker et G. Bastard. *Free-carrier absorption in quantum cascade structures*. Phys. Rev. B, vol. **85**, no. 8, page 085310, Février 2012.

[Carter 2004] 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**, no. 6, page 840, 2004.

[Carter 2005] S. Carter, V. Ciulin, M. Hanson, A. Huntington, C. Wang, A. Gossard, L. Coldren et M. Sherwin. *Terahertz-optical mixing in undoped and doped GaAs quantum wells : From excitonic to electronic intersubband transitions*. Phys. Rev. B, vol. **72**, no. 15, page 155309, Octobre 2005.

[Chan 2007] W. L. Chan, J. Deibel et D. M. Mittleman. *Imaging with terahertz radiation*. Rep. Prog. Phys., vol. **70**, no. 8, pages 1325–1379, Août 2007.

[Chassagneux 2009] Y. Chassagneux, R. Colombelli, W. Maineult, S. Barbieri, 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**, no. 7226, pages 174–8, Janvier 2009.

[Chen 2010] C.-W. Chen, Y.-C. Lin, C.-H. Chang, P. Yu, J.-M. Shieh et C.-L. Pan. *Frequency-Dependent Complex Conductivities and Dielectric Responses of Indium Tin Oxide Thin Films from the Visible to the Far-Infrared.* IEEE J. Quantum Electron., vol. **46**, no. 12, pages 1746–1754, 2010.

[Cirloganu 2011] C. M. Cirloganu, L. a. Padilha, D. a. Fishman, S. Webster, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland. *Extremely nondegenerate two-photon absorption in direct-gap semiconductors.* Opt. Express, vol. **19**, no. 23, pages 22951–60, Novembre 2011.

[Coutaz 2012] J. L. Coutaz. Optoélectronique terahertz. Hors collection. EDP Sciences, 2012.

[Curl 2010] R. F. Curl, F. Capasso, C. Gmachl, A. A. Kosterev, B. McManus, R. Lewicki, M. Pusharsky, G. Wysocki et F. K. Tittel. *Quantum cascade lasers in chemical physics.* Chem. Phys. Lett., vol. **487**, no. 1–3, pages 1–18, 2010.

[De Cusatis 2002] C. De Cusatis. Fiber Optic Data Communication : Technological Trends and Advances. Referex Engineering. Academic Press [Imprint], 2002.

[der Ziel 1975] J. P. der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann et W. A. Nordland. *Laser oscillation from quantum states in very thin GaAs/$Al_{0.2}Ga_{0.8}$ As multilayer structures.* Appl. Phys. Lett., vol. **26**, no. 8, pages 463–465, 1975.

[Deutsch 2012] C. Deutsch, M. Krall, M. Brandstetter, H. Detz, a. M. Andrews, P. Klang, W. Schrenk, G. Strasser et K. Unterrainer. *High performance InGaAs/GaAsSb terahertz quantum cascade lasers operating up to 142 K.* Appl. Phys. Lett., vol. **101**, no. 21, page 211117, 2012.

[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.* Nature Photon., vol. **1**, no. 7, pages 411–415, Juillet 2007.

[Dhillon 2010] S. S. Dhillon, S. Sawallich, N. Jukam, D. Oustinov, J. Madéo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet et J. Tignon. *Integrated terahertz pulse generation and amplification in quantum cascade lasers.* Appl. Phys. Lett., vol. **96**, no. 6, page 061107, 2010.

[Diederichs 2006] C. Diederichs, J. Tignon, G. Dasbach, C. Ciuti, A. Lemaitre, J. Bloch, P. Roussignol et C. Delalande. *Parametric oscillation in vertical triple microcavities.* Nature, vol. **440**, no. 7086, pages 904–907, 2006.

[Dreyhaupt 2005] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy et M. Helm. *High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor.* Appl. Phys. Lett., vol. **86**, no. 12, page 121114, 2005.

[Driscoll 1978] G. W. Driscoll et W. Vaughan. Handbook of optics. McGraw-Hill handbooks. McGraw-Hill, New York [etc.], 1978.

[Esaki 1970] L. Esaki et R. Tsu. *Superlattice and Negative Differential Conductivity in Semiconductors.* IBM J. Res. Dev., vol. **14**, 1970.

[Faist 1994] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson et A. Y. Cho. *Quantum Cascade Laser.* Science, vol. **264**, pages 553–556, 1994.

[Faist 2013] J. Faist. Quantum Cascade Lasers. OUP Oxford, 2013.

[Fan 2008] J. A. Fan, M. A. Belkin, F. Capasso, S. P. Khanna, M. Lachab, A. G. Davies et E. H. Linfield. *Wide-ridge metal-metal terahertz quantum cascade lasers with high-order lateral mode suppression.* Appl. Phys. Lett., vol. **92**, no. 3, page 031106, 2008.

[Fathololoumi 2012] S. Fathololoumi, E. Dupont, C. W. I. Chan, Z. R. Wasilewski, S. R. Laframboise, D. Ban, A. Mátyás, C. Jirauschek, Q. Hu et H. C. Liu. *Terahertz quantum cascade lasers operating up to ∼ 200 K with optimized oscillator strength and improved injection tunneling.* Opt. Express, vol. **20**, no. 4, pages 3866–76, Février 2012.

[Ferray 1988] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray et C. Manus. *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases.* J. Phys. B, vol. **21**, no. 3, pages L31–L35, 1988.

[Fiore 1995] 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**, no. 19, pages 1689–92, 1995.

[Fishman 2011] D. A. Fishman, C. M. Cirloganu, S. Webster, L. A. Padilha, M. Monroe, D. J. Hagan et E. W. V. Stryland. *Sensitive mid-infrared detection in wide-bandgap semiconductors using extreme non-degenerate two-photon absorption.* Nature Photon., vol. **5**, pages 561–565, 2011.

[Freeman 2011] J. R. Freeman, A. Brewer, H. E. Beere et D. a. Ritchie. *Photo-luminescence study of heterogeneous terahertz quantum cascade lasers.* J. Appl. Phys., vol. **110**, no. 1, page 013103, 2011.

[Freeman 2012] J. R. Freeman, J. Maysonnave, N. Jukam, P. Cavalié, K. Maussang, H. E. Beere, D. a. Ritchie, J. Mangeney, S. S. Dhillon et J. Tignon. *Direct intensity sampling of a modelocked terahertz quantum cascade laser.* Appl. Phys. Lett., vol. **101**, no. 18, page 181115, 2012.

[Gallot 1999] 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.* Appl. Phys. Lett., vol. **74**, no. 23, page 3450, 1999.

[Gmachl 2001] C. Gmachl, F. Capasso, D. L. Sivco et A. Y. Cho. *Recent progress in quantum cascade lasers and applications.* Rep. Prog. Phys., vol. **64**, page 1533, 2001.

[Goulielmakis 2007] E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, a. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleineberg et F. Krausz. *Attosecond control and measurement : lightwave electronics.* Science, vol. **317**, no. 5839, pages 769–75, Août 2007.

[Hall 1962] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys et R. O. Carlson. *Coherent Light Emission from Ga-As Junctions.* Phys. Rev. Lett, vol. **9**, page 366, 1962.

[Han 2001] 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**, no. 4, page 2357, 2001.

[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**, no. 18, page 1714, 1988.

[Jördens 2010] C. Jördens, M. Scheller, S. Wietzke, D. Romeike, C. Jansen, T. Zentgraf, K. Wiesauer, V. Reisecker et M. Koch. *Terahertz spectroscopy to study the orientation of glass fibres in reinforced plastics.* Compos. Sci. Technol., vol. **70**, no. 3, pages 472–477, 2010.

[Jukam 2008a] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, Z.-Y. Zhao, S. Hameau, J. Tignon, S. Barbieri, A. Vasanelli, P. Filloux, C. Sirtori et X. Marcadet. *Investigation of spectral gain narrowing in quantum*

cascade lasers using terahertz time domain spectroscopy. Appl. Phys. Lett., vol. **93**, no. 10, page 101115, 2008.

[Jukam 2008b] N. Jukam, S. Dhillon, Z.-Y. Zhao, G. Duerr, J. Armijo, N. Sirmons, 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 J. Sel. Topics Quantum Electron., vol. **14**, no. 2, pages 436–442, 2008.

[Jukam 2009a] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, J. Tignon, R. Colombelli, 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*. Appl. Phys. Lett., vol. **94**, no. 25, page 251108, 2009.

[Jukam 2009b] N. Jukam, S. S. Dhillon, D. Oustinov, J. Madéo, C. Manquest, S. Barbieri, C. Sirtori, S. P. Khanna, E. H. Linfield et A. G. Davies. *Terahertz amplifier based on gain switching in a quantum cascade laser*. Nature Photon., vol. **3**, pages 715–719, 2009.

[Kaindl 2003] R. Kaindl, M. Carnahan, D. Hägele, R. Lövenich et D. Chemla. *Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron – hole gas*. Nature, vol. **423**, page 734, 2003.

[Kazarinov 1971] R. F. Kazarinov et R. A. Suris. *Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice*. Sov. Phys. Semicond, vol. **5**, no. 4, pages 707–709, 1971.

[Khurgin 1988] J. B. Khurgin. *Second-order nonlinear effects in asymmetric quantum-well structures*. Phys. Rev. B, vol. **38**, no. 6, 1988.

[Khurgin 1997] J. B. Khurgin, A. Obeidat, S. J. Lee et Y. J. Ding. *Cascaded optical nonlinearities : Microscopic understanding as a collective effect*. J. Opt. Soc. Am. B, vol. **14**, no. 8, page 1977, Août 1997.

[Kohen 2005] S. Kohen, B. S. Williams et Q. Hu. *Electromagnetic modeling of terahertz quantum cascade laser waveguides and resonators*. J. Appl. Phys., vol. **97**, no. 5, page 053106, 2005.

[Köhler 2002] R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, a. G. Davies, D. a. Ritchie, R. C. Iotti et F. Rossi. *Terahertz semiconductor-heterostructure laser*. Nature, vol. **417**, no. 6885, pages 156–9, Mai 2002.

[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. **1**, pages 1–4, 1997.

[Kröll 2007] J. Kröll, J. Darmo, S. S. Dhillon, X. Marcadet, M. Calligaro, C. Sirtori et K. Unterrainer. *Phase-resolved measurements of stimulated emission in a laser*. Nature, vol. **449**, no. 7163, pages 698–701, Octobre 2007.

[Kumar 2007] S. Kumar, B. S. Williams, Q. Qin, A. W. M. Lee et J. L. Reno. *Surface-emitting distributed feedback terahertz quantum-cascade lasers in metal-metal waveguides Abstract :*. Opt. Express, vol. **15**, no. 1, pages 113–128, 2007.

[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**, no. 13, page 131105, 2009.

[Lee 2008] Y. S. Lee. Principles of Terahertz Science and Technology. Lecture Notes in Physics. Springer, 2008.

[Liu 2010] P. Q. Liu, A. J. Hoffman, M. D. Escarra, K. J. Franz, J. B. Khurgin, Y. Dikmelik, X. Wang, J.-y. Fan et C. F. Gmachl. *Highly power-efficient quantum cascade lasers.* Nature Photon., vol. **4**, pages 262–265, 2010.

[Lu 2012] Q. Y. Lu, N. Bandyopadhyay, S. Slivken, Y. Bai et M. Razeghi. *Widely tuned room temperature terahertz quantum cascade laser sources based on difference-frequency generation.* Appl. Phys. Lett., vol. **101**, no. 25, page 251121, 2012.

[Lu 2013] Q. Y. Lu, N. Bandyopadhyay, S. Slivken, Y. Bai et M. Razeghi. *High performance terahertz quantum cascade laser sources based on intracavity difference frequency generation.* Opt. Express, vol. **21**, no. 1, page 968, Janvier 2013.

[Madéo 2011] J. Madéo. *Spectroscopie dans le domaine temporel et non-linéarités optiques résonantes des lasers à cascade quantique THz.* Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris 6), 2011.

[Madéo 2012] J. Madéo, P. Cavalié, J. R. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, H. E. Beere, D. A. Ritchie, C. Sirtori, J. Tignon et S. S. Dhillon. *All-optical wavelength shifting in a semiconductor laser using resonant nonlinearities.* Nature Photon., vol. **6**, pages 1–6, 2012.

[Mahler 2009] L. Mahler, A. Tredicucci, F. Beltram, C. Walther, B. Witzigmann, H. E. Beere et D. A. Ritchie. *Vertically emitting microdisk lasers.* Nature Photon., vol. **3**, pages 248–251, 2009.

[Maineult 2008] W. Maineult, P. Gellie, A. Andronico, P. Filloux, G. Leo, C. Sirtori, S. Barbieri, E. Peytavit, T. Akalin, J.-F. Lampin, H. E. Beere et D. a. Ritchie. *Metal-metal terahertz quantum cascade laser with micro-transverse-electromagnetic-horn antenna.* Appl. Phys. Lett., vol. **93**, no. 18, page 183508, 2008.

[Martl 2011] M. Martl, J. Darmo, C. Deutsch, M. Brandstetter, M. Andrews, P. Klang, G. Strasser et K. Unterrainer. *Gain and losses in THz quantum cascade laser with metal-metal waveguide.* Opt. Express, vol. **19**, no. 2, pages 733–738, 2011.

[Maysonnave 2012a] J. Maysonnave, N. Jukam, M. S. M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalié, P. Dean, S. P. Khanna, D. P. Steenson, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Tignon et S. S. Dhillon. *Integrated injection seeded terahertz source and amplifier for time-domain spectroscopy.* Opt. Lett., vol. **37**, no. 4, pages 731–733, 2012.

[Maysonnave 2012b] J. Maysonnave, N. Jukam, M. S. M. Ibrahim, K. Maussang, J. Madéo, P. Cavalié, P. Dean, P. Khanna, D. P. Steenson, E. H. Linfield, A. G. Davies, S. S. Dhillon et J. Tignon. *Measuring the sampling coherence of a terahertz quantum cascade laser.* Opt. Express, vol. **20**, pages 698–701, 2012.

[Miller 1984] R. C. Miller, D. A. Kleinman et A. C. Gossard. *Energy-gap discontinuities and effective masses for $Al_x GaAs/Ga_{1-x}As$ quantum wells.* Phys. Rev. B, vol. **29**, no. 12, pages 7085–7087, 1984.

[Miller 1985] D. A. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood et C. A. Burrus. *Electric field dependence of optical absorption near the band gap of quantum-well structures.* Phys. Rev. B, vol. **32**, no. 2, page 1043, 1985.

[Nagai 2005] N. Nagai, R. Kumazawa et R. Fukasawa. *Direct evidence of inter-molecular vibrations by THz spectroscopy.* Chem. Phys. Lett., vol. **413**, no. 4-6, pages 495–500, Septembre 2005.

[Oden 2013] J. Oden, J. Meilhan, J. Lalanne-Dera, J.-F. Roux, F. Garet, J.-L. Coutaz et F. Simoens. *Imaging of broadband terahertz beams using an array of antenna-coupled microbolometers operating at room temperature.* Opt. Express, vol. **21**, no. 4, pages 4817–25, Février 2013.

[Okawachi 2005] Y. Okawachi, M. S. Bigelow, J. E. Sharping, Z. Zhu, A. Schweinsberg, D. J. Gauthier, R. W. Boyd et A. L. Gaeta. *Tunable all-optical delays via Brillouin slow light in an optical fiber.* Phys. Rev. Lett., vol. **94**, no. 15, page 153902, 2005.

[Oustinov 2010] D. Oustinov, N. Jukam, R. Rungsawang, J. Madéo, S. Barbieri, P. Filloux, C. Sirtori, X. Marcadet, J. Tignon et S. Dhillon. *Phase seeding of a terahertz quantum cascade laser.* Nature Comm., vol. **1**, page 69, Janvier 2010.

[Oustinov 2011] D. Oustinov. *Étude de lasers à cascade quantique par spectroscopie térahertz dans le domaine temporel.* Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris 6), 2011.

[Owschimikow 2003] N. Owschimikow, C. Gmachl, A. Belyanin, V. Kocharovsky, D. Sivco, R. Colombelli, F. Capasso et A. Cho. *Resonant Second-Order Nonlinear Optical Processes in Quantum Cascade Lasers.* Phys. Rev. Lett., vol. **90**, no. 4, page 043902, Janvier 2003.

[Page 2001] H. Page, C. Becker, A. Robertson, G. Glastre, V. Ortiz et C. Sirtori. *300 K operation of a GaAs-based quantum-cascade laser at $\lambda \approx 9\,\mu m$.* Appl. Phys. Lett., vol. **78**, no. 22, page 3529, 2001.

[Palik 1998] E. D. Palik. Handbook of Optical Constants of Solids, volume **3**. Academic press, 1998.

[Park 1999] T.-i. Park, G. Gumbs, Y. C. Chen et I. Introduction. *Properties of the second-order nonlinear optical susceptibility $\chi^{(2)}$ in asymmetric undoped AlGaAs/InGaAs double quantum wells.* J. Appl. Phys., vol. **86**, no. 3, 1999.

[Patel 1966] C. K. N. Patel. *Optical Harmonic Generation in the Infrared Using a CO_2 Laser.* Phys. Rev. Lett., vol. **16**, no. 14, pages 613–616, 1966.

[Paul 2001] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, P. Balcou, H. G. Muller et P. Agostini. *Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation.* Science, vol. **292**, no. 5522, pages 1689–92, Juin 2001.

[Pearson 2011] J. C. Pearson, B. J. Drouin, A. Maestrini, I. Mehdi, J. Ward, R. H. Lin, S. Yu, J. J. Gill, B. Thomas, C. Lee, G. Chattopadhyay, E. Schlecht, F. W. Maiwald, P. F. Goldsmith et P. Siegel. *Demonstration of a room temperature 2.48-2.75 THz coherent spectroscopy source.* Rev. Sci. Instrum., vol. **82**, no. 9, page 093105, Septembre 2011.

[Peytavit 2008] E. Peytavit, A. Beck, T. Akalin, J.-F. Lampin, F. Hindle, C. Yang et G. Mouret. *Continuous terahertz-wave generation using a monolithically integrated horn antenna.* Appl. Phys. Lett., vol. **93**, no. 11, page 111108, 2008.

[Pilbratt 2010] G. L. Pilbratt, J. Riedinger, T. Passvogel, G. Crone, D. Doyle, U. Gageur, A. Heras, C. Jewell, L. Metcalfe, S. Ott et M. Schmidt. *An ESA facility for far-infrared and submillimetre astronomy.* arXiv :1005.5331v1, 2010.

[Planken 2001] P. C. M. Planken, H.-K. Nienhuys, H. J. Bakker et T. Wenckebach. *Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe.* J. Opt. Soc. Am. B, vol. **18**, no. 3, page 313, 2001.

[Porer 2012] M. Porer, J.-M. Ménard, A. Leitenstorfer, R. Huber, R. Degl'Innocenti, S. Zanotto, G. Biasiol, L. Sorba et A. Tredicucci. *Nonadiabatic switching of a photonic band structure : Ultrastrong light-matter coupling and slow-down of light.* Phys. Rev. B, vol. **85**, no. 8, pages 2–5, Février 2012.

[Rabanus 2009] D. Rabanus, U. U. Graf, M. Philipp, O. Ricken, J. Stutzki, B. Vowinkel, M. C. Wiedner, C. Walther, M. Fischer et J. Faist. *Phase locking of a 1.5 Terahertz quantum cascade laser and use*

as a local oscillator in a heterodyne HEB receiver. Opt. Express, vol. **17**, no. 3, pages 1159–68, Février 2009.

[Raether 1988] H. Raether. Surface plasmons on smooth and rough surfaces and on gratings. Numéro vol.∼111 de Springer tracts in modern physics. Springer, 1988.

[Rosencher 1996] E. Rosencher, A. Fiore, B. Vinter, V. Berger, P. Bois et J. Nagle. *Quantum Engineering of Optical Nonlinearities.* Science, vol. **271**, no. 5246, pages 168–173, Janvier 1996.

[Rosencher 2002] E. Rosencher et B. Vinter. Optoelectronique 2nd Edition. Dunod, 2002.

[Said 1992] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T. H. Wei, J. Wang, J. Young et E. W. V. Stryland. *Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe.* J. Opt. Soc. Am. B, vol. **9**, no. 3, page 405, Mars 1992.

[Sakai 2010] K. Sakai. Terahertz Optoelectronics. Topics in Applied Physics. Springer, 2010.

[Scalari 2004] G. Scalari, S. Blaser, J. Faist, H. Beere, E. Linfield, D. Ritchie et G. Davies. *Terahertz Emission from Quantum Cascade Lasers in the Quantum Hall Regime : Evidence for Many Body Resonances and Localization Effects.* Phys. Rev. Lett., vol. **93**, no. 23, page 237403, Décembre 2004.

[Scalari 2009] G. Scalari, C. Walther, M. Fischer, R. Terazzi, H. Beere, D. Ritchie et J. Faist. *THz and sub-THz quantum cascade lasers.* Laser & Photon. Rev., vol. **3**, no. 1-2, pages 45–66, 2009.

[Shen 1984] Y.-R. Shen. *The principles of nonlinear optics.* New York, Wiley-Interscience, 1984, 575 p., vol. **1**, 1984.

[Shen 2003] Y. C. Shen, P. C. Upadhya, E. H. Linfield, H. E. Beere et a. G. Davies. *Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters.* Appl. Phys. Lett., vol. **83**, no. 15, page 3117, 2003.

[Shimizu 1992] A. Shimizu, M. Kuwata-Gonokami et H. Sakaki. *Enhanced second-order optical nonlinearity using inter- and intra-band transitions in low-dimensional semiconductors.* Appl. Phys. Lett., vol. **61**, no. 4, page 399, 1992.

[Siegman 1986] A. E. Siegman. *Lasers University Science Books.* Mill Valley, CA, vol. **37**, 1986.

[Sirtori 1994] C. Sirtori, F. Capasso, J. Faist, L. N. Pfeiffer et K. W. West. *Far-infrared generation by doubly resonant difference frequency mixing in a coupled quantum well two-dimensional electron gas system.* Appl. Phys. Lett., vol. **65**, no. 4, page 445, 1994.

[Sirtori 1998] C. Sirtori, P. Kruck, S. Barbieri, P. Collot, J. Nagle, M. Beck, J. Faist et U. Oesterle. *GaAs/$Al_x Ga_{1-x}$As quantum cascade lasers.* Appl. Phys. Lett., vol. **73**, no. 24, page 3486, 1998.

[Strupiechonski 2013] E. Strupiechonski, G. Xu, P. Cavalié, N. Isac, S. Dhillon, J. Tignon, G. Beaudoin, I. Sagnes, A. Degiron et R. Colombelli. *Hybrid electronic-photonic subwavelength cavities operating at terahertz frequencies.* Physical Review B, vol. **87**, no. 4, page 041408, Janvier 2013.

[Sutherland 2003] R. L. Sutherland, D. G. McLean et S. Kirkpatrick. Handbook of nonlinear optics. Optical Engineering - Marcel Dekker. Marcel Dekker Incorporated, 2003.

[Tonouchi 2007] M. Tonouchi. *Cutting-edge terahertz technology.* Nature Photon., vol. **1**, pages 97–105, 2007.

[Tsang 1990] L. Tsang, S. Chuang et S. Lee. *Second-order nonlinear optical susceptibility of a quantum well with an applied electric field.* Phys. Rev. B, vol. **41**, no. 9, pages 5942–5951, Mars 1990.

[Vijayraghavan 2012] K. Vijayraghavan, R. W. Adams, A. Vizbaras, M. Jang, C. Grasse, G. Boehm, M. C. Amann et M. a. Belkin. *Terahertz sources based on Cerenkov difference-frequency generation in quantum cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. **100**, no. 25, page 251104, 2012.

[Vitiello 2005] M. S. Vitiello, G. Scamarcio, V. Spagnolo, B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu et J. L. Reno. *Measurement of subband electronic temperatures and population inversion in THz quantum-cascade lasers*. Appl. Phys. Lett., vol. **86**, no. 11, page 111115, 2005.

[Vitiello 2012] M. S. Vitiello, L. Consolino, S. Bartalini, A. Taschin, A. Tredicucci, M. Inguscio et P. De Natale. *Quantum-limited frequency fluctuations in a terahertz laser*. Nature Photon., vol. **6**, no. 8, pages 525–528, Juillet 2012.

[Volz 2012] T. Volz, A. Reinhard, M. Winger, A. Badolato, K. J. Hennessy, E. L. Hu et A. Imamoglu. *Ultrafast all-optical switching by single photons*. Nature Photon., vol. **6**, pages 605–609, Septembre 2012.

[Vurgaftman 2001] I. Vurgaftman, J. R. Meyer et L. R. Ram-Mohan. *Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys*. J. Appl. Phys., vol. **89**, no. 11, page 5815, 2001.

[Wagner 2011] M. Wagner, H. Schneider, D. Stehr, S. Winnerl, A. M. Andrews, S. Schartner, G. Strasser et M. Helm. *Terahertz nonlinear optics using intra-excitonic quantum well transitions : Sideband generation and AC Stark splitting*. PSS (B), vol. **248**, no. 4, pages 859–862, Avril 2011.

[Wei Min Lee 2007] A. Wei Min Lee, Q. Qin, S. Kumar, B. S. Williams, Q. Hu et J. L. Reno. *High-power and high-temperature THz quantum-cascade lasers based on lens-coupled metal-metal waveguides*. Opt. Lett., vol. **32**, no. 19, pages 2840–2, Octobre 2007.

[Williams 2005] B. Williams, S. Kumar, Q. Hu et J. Reno. *Operation of terahertz quantum-cascade lasers at 164 K in pulsed mode and at 117 K in continuous-wave mode*. Opt. Express, vol. **13**, no. 9, pages 3331–9, Mai 2005.

[Williams 2006] B. S. Williams, S. Kumar, Q. Hu et J. L. Reno. *High-power terahertz quantum-cscade lasers*. Electron. Lett., vol. **42**, no. 2, pages 18–19, 2006.

[Williams 2007] B. S. Williams. *Terahertz quantum-cascade lasers*. Nature Photon., vol. **1**, pages 517–525, 2007.

[Worrall 2006] C. Worrall, J. Alton, M. Houghton, S. Barbieri, H. E. Beere, D. Ritchie et C. Sirtori. *Continuous wave operation of a superlattice quantum cascade laser emitting at 2 THz*. Opt. Express, vol. **14**, no. 1, pages 171–81, Janvier 2006.

[Wu 1997] Q. Wu et X.-C. Zhang. *7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor*. Appl. Phys. Lett., vol. **70**, no. 14, page 1784, 1997.

[Yao 2012] Y. Yao, A. J. Hoffman et C. F. Gmachl. *Mid-infrared quantum cascade lasers*. Nature Photonics, vol. **6**, no. 7, pages 432–439, Juin 2012.

[Yariv 1977] A. Yariv et D. M. Pepper. *Amplified reflection, phase conjugation, and oscillation in degenerate four-wave mixing*. Opt. Lett., vol. **1**, no. 1, page 16, Juillet 1977.

[Yariv 1997] A. Yariv. Optical Electronics in Modern Communications. Numéro vol.∼1 de The Oxford Series in Electrical and Computer Engineering Series. Oxford University Press, Incorporated, 1997.

[Yoo 1995] S. J. B. Yoo, R. Bhat, C. Caneau et M. A. Koza. *Quasi-phase-matched second-harmonic generation in AlGaAs waveguides with periodic domain inversion achieved by wafer-bonding*. Appl. Phys. Lett., vol. **66**, no. 25, pages 3410–3412, 1995.

[Zaks 2012] B. Zaks, R. B. Liu et M. S. Sherwin. *Experimental observation of electron-hole recollisions.* Nature, vol. **483**, no. 7391, pages 580–3, Mars 2012.

[Zaks 2013] B. Zaks, H. Banks et M. S. Sherwin. *High-order sideband generation in bulk GaAs.* Appl. Phys. Lett., vol. **102**, no. 1, page 012104, 2013.

[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**, no. 18, page 183507, 2006.