

UNIVERSITÉ PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE 288 : ONDES ET MATIÈRE

Laboratoire : Laboratoire de Photonique et de Nanostructures-Centre National de la
Recherche Scientifique (LPN-CNRS)

THÈSE DE DOCTORAT

PHYSIQUE

par

Li FANG

**D éveloppement des miroirs absorbants saturables ultra-rapides pour des
applications au traitement de signaux optiques à tr ès haut d ébit et la
génération d'impulsions laser ultra-courtes à 1.55 μm**

Date de soutenance : 12/11/2014

Composition du jury:

Directeur de thèse : M. Jean-Louis OUDAR

Rapporteurs : M. Sébastien FEVRIER

Mme Juliette MANGENEY

Examineurs : M. Patrick GEORGES

M. Ammar HIDEUR

M. Jean-Michel LOURTIOZ

Directeur de recherche émérite (LPN-CNRS)

Maîtres de conférence (XLIM, Université de Limoges)

Chargée de recherche (LPA, Ecole Normale Supérieure)

Directeur de recherche (LCF, institut d'Optique)

Maîtres de conférence (CORIA, Université de Rouen)

Directeur de recherche émérite (IEF, Université Paris-Sud XI)

Résumé

Dans cette thèse, nous avons développé et étudié des miroirs absorbants saturables ultra-rapides, pour des applications au traitement de signaux optiques à très haut débit et la génération d'impulsions laser ultra-courtes à 1.55 μm . Par rapport aux travaux antérieurs nous avons mis l'accent sur une compacité améliorée, des fonctionnalités avancées, et des technologies présentant un coût de fabrication réduit.

Dans une première partie, nous avons développé un miroir absorbant saturable ultra-rapide à semi-conducteur. Le composé massif $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ a été employé comme matériau actif, en raison de la simplicité de sa technique de croissance et de son fort coefficient d'absorption à la longueur d'onde de 1,55 μm . Cependant dans ce matériau InGaAs massif le temps de recouvrement de l'absorption est dominé par la recombinaison radiative des porteurs photoexcités ou la recombinaison Auger à fort niveau d'excitation, ce qui se produit à une échelle temps de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes ou plus. Nous avons utilisé l'implantation par ions lourds pour accélérer cette recombinaison en introduisant des niveaux de défauts dans la bande interdite, et obtenir ainsi un miroir absorbant saturable (MAS) ultra-rapide à base d'InGaAs. Le temps de recouvrement d'absorption du MAS implanté a été caractérisé en fonction de l'espèce implantée, de la dose ionique, et de la température de recuit.

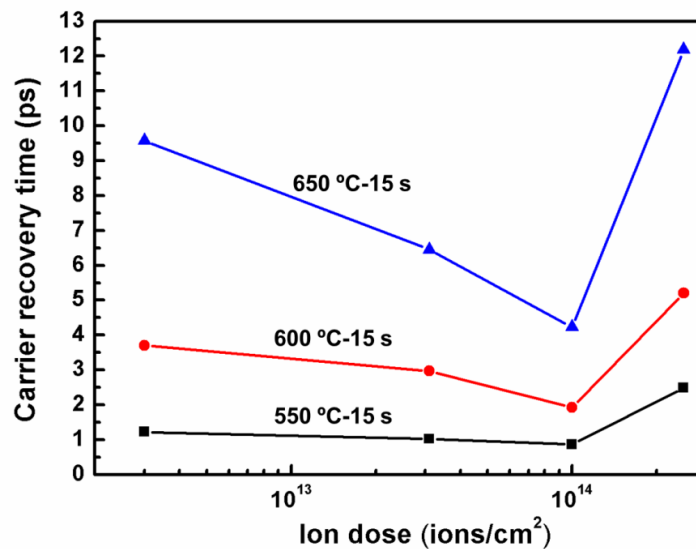


Figure 1 Variation du temps de recouvrement en fonction de la dose d'arsenic, suite à un recuit rapide à 550 °C, 600 °C et 650 °C pendant 15 s.

Des ions As^+ et Fe^+ ont été utilisés pour l'implantation. La figure 1 montre la variation du temps de recouvrement en fonction de la dose d'arsenic, suite à un recuit rapide à 550 °C, 600 °C et 650 °C pendant 15 s. On peut voir que les temps de recouvrement les plus rapides ont été obtenus dans les échantillons implantés avec une dose d'arsenic de 1×10^{14} ions / cm^2 . La figure 2 montre la réflexion transitoire normalisée en fonction du retard entre pompe et sonde pour l'échantillon implanté avec cette dose, après recuit de 15 s à différentes températures. Des temps de recouvrement de 0.58 ps, 0.86 ps, 1.92 ps et 4.23 ps ont été mesurés suite à un recuit à 500 °C, 550 °C, 600 °C et 650 °C respectivement. Pour les échantillons recuits à 600 °C et 650 °C, les courbes présentent un déclin bi-exponentiel, et la réflexion transitoire de la sonde ne revient pas à zéro après un retard de sonde de 23 ps.

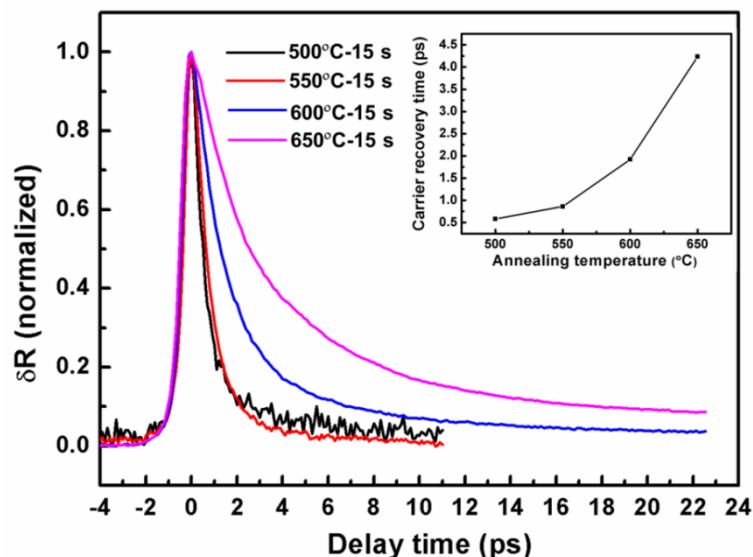


Figure 2 Réflexion transitoire normalisée en fonction du retard entre pompe et sonde pour l'échantillon implanté avec une dose d'arsenic de 1×10^{14} ions / cm^2 après un recuit de 15 s à 500 °C, 550 °C, 600 °C et 650 °C. La courbe en insert montre le temps de recouvrement en fonction de la température de recuit.

En contraste avec le dopant As, qui est un donneur superficiel dans InGaAs, le dopant Fe peut créer des niveaux profonds de type accepteur dans l'InGaAs. Il a été démontré que le dopant Fe est un piège efficace aussi bien pour les électrons que pour les trous dans $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$. Nous avons donc utilisé également l'implantation Fe^+ pour réaliser un MAS ultra-rapide. La figure 3 montre la réflexion transitoire de la sonde en fonction du retard entre pompe et sonde pour des échantillons implantés Fe^+ selon une dose de $2,2 \times 10^{14}$ ions / cm^2 après recuit de 15 s à des températures variant de 500 °C à 700 °C

par pas de 50 °C. Le temps de recouvrement augmente avec la température de recuit et vaut 0.75 ps, 1.17 ps, 1.58 ps, 2.23 ps et 7.02 ps respectivement, comme représenté dans l'insert de la figure 3. En comparaison des échantillons implantés As^+ avec la dose de 1×10^{14} ions/cm², les temps de recouvrement des échantillons implantés Fe^+ sont plus longs après le recuit à 500 °C et 550 °C, tandis qu'après les recuits à 600 °C et 650 °C, les temps de recouvrement des échantillons implantés Fe^+ sont plus courts que ceux des échantillons implantés As^+ . De plus, la réflexion transitoire revient à zéro aux retards inférieurs ou égaux à 23 ps pour les échantillons implantés Fe^+ et recuits à 600 °C et 650 °C.

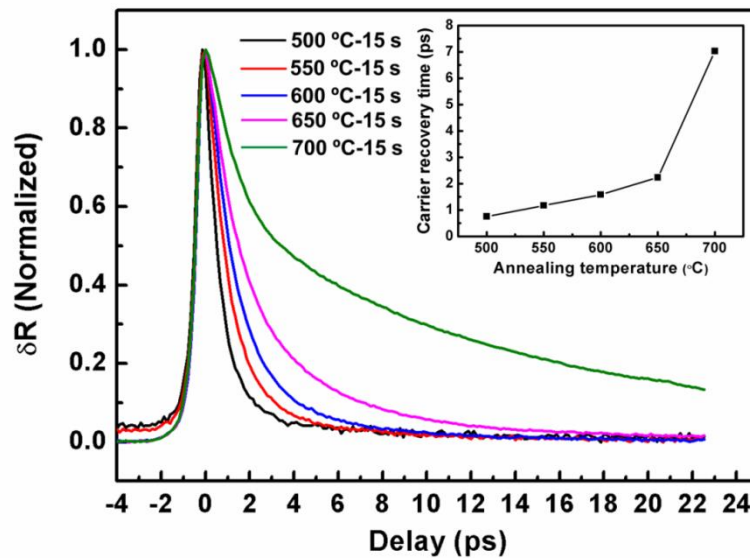


Figure 3 Réflexion transitoire normalisée de la sonde en fonction du retard entre pompe et sonde pour des échantillons implantés Fe^+ selon une dose de $2,2 \times 10^{14}$ ions / cm², après recuit de 15 s à des températures variant de 500 °C à 700 °C par pas de 50 °C. La courbe en insert montre le temps de recouvrement en fonction de la température de recuit.

La réflectivité non-linéaire dépendante de la puissance de l'échantillon implanté Fe^+ a aussi été étudiée, en raison de son temps de recouvrement rapide. La figure 4 montre la variation de réflectivité en fonction de la fluence incidente de ces échantillons après des recuits à différentes températures. On peut voir que la perte non saturable décroît et que l'amplitude de modulation entre faible et forte fluence augmente avec la température de recuit. Suite à la modélisation des données expérimentales, l'amplitude maximale de la modulation de réflectivité (54%) est obtenue après le recuit à 650 °C et 700 °C, valeur inférieure à celle (56,9%) obtenue avec l'échantillon non implanté. Nous attribuons cette différence à la présence des centres profonds créés par

l'implantation, qui donnent lieu à des transitions optiques supplémentaires vers des états de plus haute énergie dans la bande de conduction. En conclusion de cette étude, après implantation Fe^+ et un recuit à $650\text{ }^\circ\text{C}$ pendant 15 s, un miroir absorbant saturable présentant une relaxation rapide de 2,23 ps et une forte amplitude de modulation de 54% a été obtenu, moyennant une faible dégradation de modulation (3%) par rapport à un échantillon non implanté

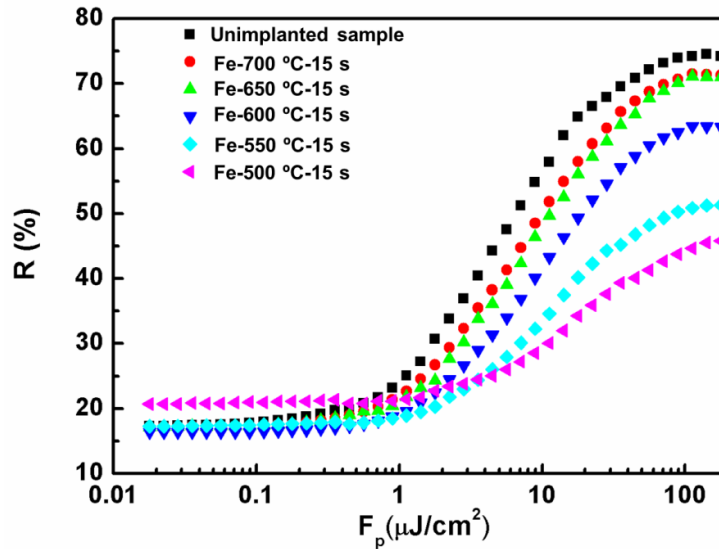


Figure 4 Variation de la réflectivité en fonction de la fluence incidente de l'échantillon non-implanté et des échantillons implantés Fe^+ après recuit de 15 s à des températures variant de $500\text{ }^\circ\text{C}$ à $700\text{ }^\circ\text{C}$ par pas de $50\text{ }^\circ\text{C}$.

Dans une seconde partie, la gravure par faisceau d'ions focalisés (FIB) a été utilisée pour fabriquer une structure en biseau ultrafin sur de l'InP cristallin, pour réaliser un dispositif photonique multi-longueur d'onde à cavité verticale. La meilleure performance d'un MAS comportant une microcavité résonnante est obtenue lorsque le signal incident est au voisinage immédiat de la longueur d'onde de résonance de la microcavité, ce qui limite sa bande passante optique. Pour traiter les signaux des systèmes de communication optique multiplexés en longueur (WDM), la possibilité d'une régénération tout-optique avec un composant MAS unique efficace sur une grande plage de longueurs d'onde serait extrêmement attractive du point de vue coût, simplicité d'architecture et fiabilité. La longueur d'onde de résonance du MAS peut être contrôlée moyennant un ajustement d'épaisseur de la couche de phase (couche d'InP en surface). Par conséquent, la fabrication d'un biseau de cette couche de phase,

procurant une variation latérale linéaire de son épaisseur, doit permettre de réaliser sur une puce unique une microcavité à résonances multiples. Les différents canaux en longueur d'onde peuvent en effet être traités sur différentes zones du MAS en biseau, moyennant un simple démultiplexage en longueur d'onde effectué par un réseau de diffraction. Les calculs montrent que la longueur d'onde résonnante de notre MAS peut être décalée par pas de 1 nm en réduisant l'épaisseur de la couche de phase par pas de 0.95 nm. De plus la dispersion de notre système à réseau de diffraction est de 10 μm par nm de longueur d'onde. Pour réaliser le traitement tout-optique de 40 canaux WDM espacés de 1 nm sur un composant MAS unique avec notre dispositif expérimental, il faut fabriquer sur la couche de phase en InP une structure en biseau avec une pente horizontale de 1:10500 (0.95 nm pour 10 μm), comme représenté sur la figure 5.

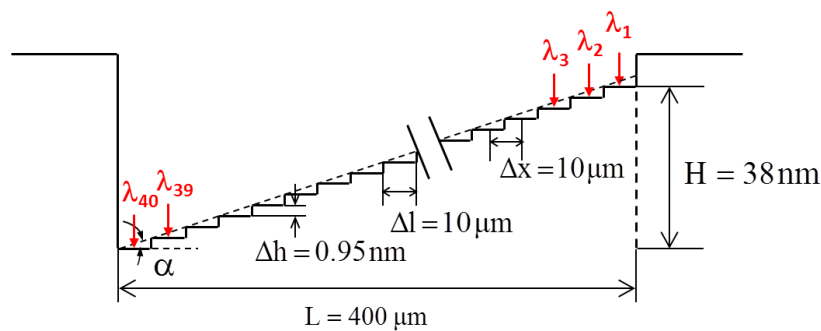


Figure 5 Schéma de principe d'une structure en biseau (vue en coupe).

La gravure par faisceau d'ions focalisés (FIB) a été utilisée pour fabriquer une telle structure en biseau sur une couche de phase en InP. Dans un premier temps nous avons utilisé une large plage de doses ioniques de 1×10^{14} à $7,5 \times 10^{16}$ ions / cm^2 pour explorer la réponse des ions Ga^+ sur l'InP cristallin. Douze régions carrées ont été irradiées avec douze doses différentes. Les zones irradiées ont été caractérisées par microscopie à force atomique (AFM). Les mesures de rugosité de surface ont montré que la rugosité de toutes les zones était d'environ 1 à 2 nm en écart quadratique moyen. De ce test nous avons pu conclure que nos paramètres de gravure ainsi que le procédé de balayage permettaient un bon contrôle du re-dépôt du matériau et l'obtention d'une surface gravée bien plane. La figure 6 montre la profondeur moyenne d'un carré en fonction de la dose ionique incidente, en échelle semi-logarithmique. Pour les doses inférieures à 5×10^{14} ions / cm^2 , les profondeurs de gravure n'ont pu être mesurées, ce qui indique

l'absence d'un gonflement de surface dû à l'amorphisation du matériau sous l'effet du bombardement ionique. Pour les doses supérieures à cette valeur, l'effet de pulvérisation devient évident. La courbe en insert de la figure 6 montre une relation bien linéaire entre la profondeur de gravure et la dose ionique, sur la plage de $2,5 \times 10^{15}$ à 5×10^{16} ions / cm^2 . Le rendement de pulvérisation calculé est d'environ 3,27 atomes / ion incident. Ce rendement déterminé expérimentalement, ainsi que la plage de doses ioniques correspondantes ont été utilisés pour fabriquer la structure en biseau. Celle-ci consiste en 40 rectangles voisins, irradiés selon 40 doses différentes, comme indiqué sur la figure 7. La caractérisation par AFM indique une rugosité de surface d'environ 2 nm. La figure 8 montre que la profondeur de gravure augmente précisément et progressivement de 24 nm à 54 nm lorsque la dose ionique augmente de $1,5 \times 10^{16}$ à $2,5 \times 10^{16}$ ions / cm^2 . La pente horizontale est d'environ 1:13000.

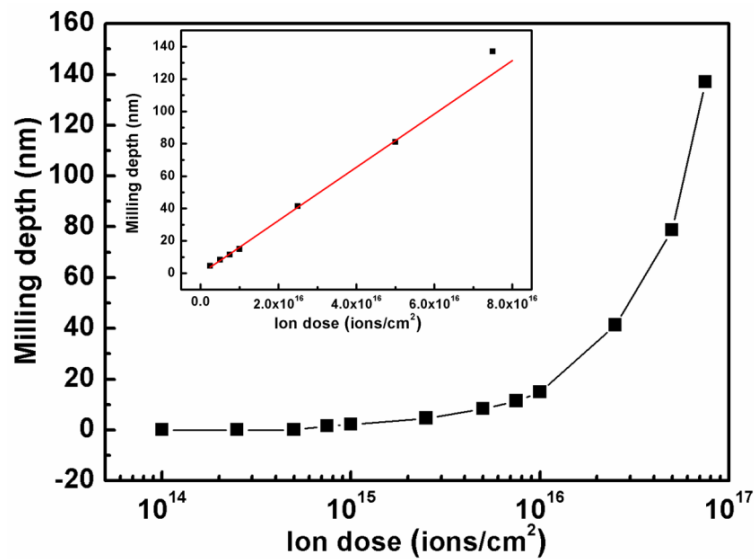


Figure 6 Variation de la profondeur de gravure en fonction de la dose ionique incidente, en échelle semi-logarithmique. La courbe en insert montre la relation entre la profondeur de gravure et la dose ionique en échelle linéaire, sur la plage de $2,5 \times 10^{15}$ à 5×10^{16} ions / cm^2

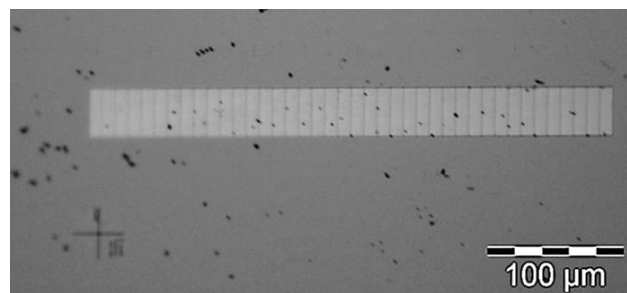


Figure 7 Image au microscope optique de la structure en biseau fabriqué avec les doses ioniques variant sur la plage de $1,5 \times 10^{16}$ (à gauche) à $2,5 \times 10^{16}$ ions / cm^2 (à droite). La taille de chaque rectangle est de $35 \times 10 \mu\text{m}^2$

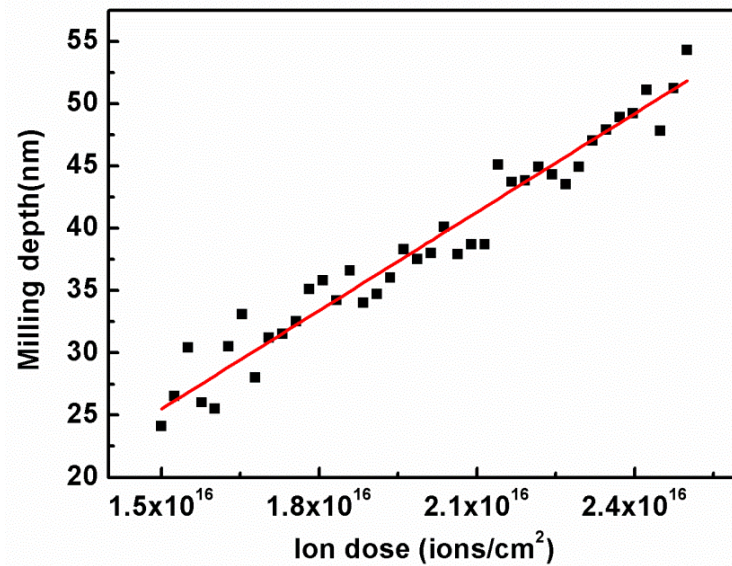


Figure 8 Variation de la profondeur de gravure moyenne en fonction de la dose ionique incidente, sur la plage de $1,5 \times 10^{16}$ à $2,5 \times 10^{16}$ ions / cm^2 en échelle linéaire.

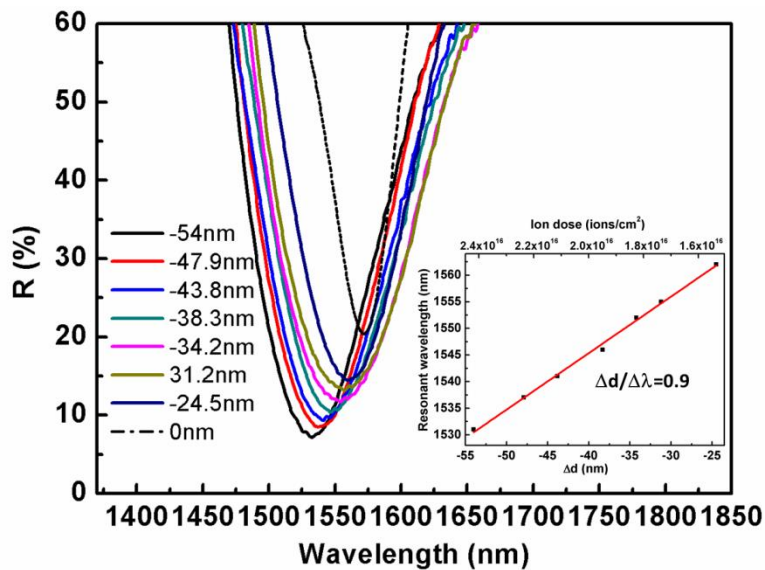


Figure 9 Spectre de la réflexion optique mesuré sur une zone non gravée (courbe en tiret), et sur différentes zones du biseau (courbes en trait plein). La courbe en insert indique les longueurs d'onde de résonance correspondant aux différentes profondeurs de gravure et doses ioniques.

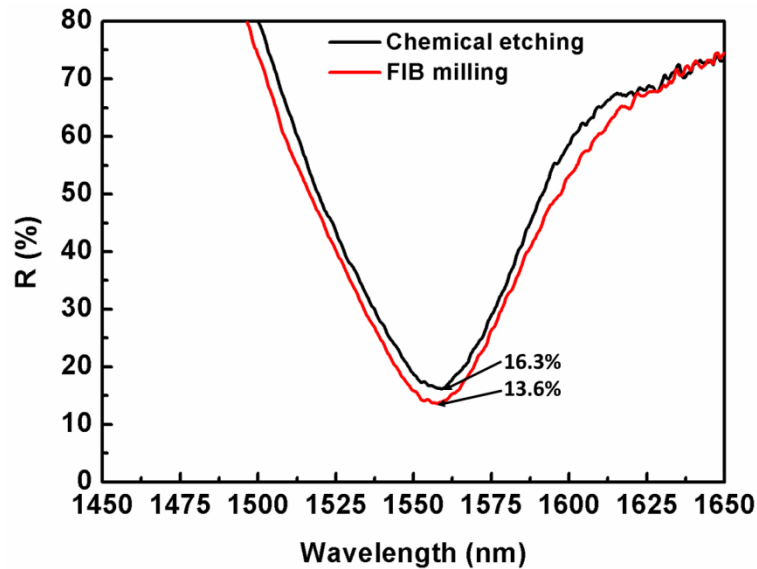


Figure 10 Spectre de la réflexion optique mesuré sur la zone carré gravé par FIB (courbe en rouge), comparé à celle mesuré sur une zone obtenue par gravure chimique de la structure absorbant saturable (courbe en noir). La longueur d'onde de résonance est de 1558 nm.

Suite à la fabrication de la structure en biseau, le décalage de la longueur d'onde de résonance sur le MAS en biseau a été mesuré, afin de tester l'efficacité du procédé. La figure 9 représente le spectre de la réflexion optique mesuré sur une zone non gravé (courbe en tiret), et sur différentes zones du biseau (courbes en trait plein). La courbe en tiret indique que la longueur d'onde de résonance de la zone non gravée est de 1572 nm. Un bon décalage de résonance, de 1561 nm à 1532 nm est ainsi obtenu, pour une variation de profondeur de gravure de 24,5 nm à 54 nm. La courbe en insert indique les longueurs d'onde résonnantes correspondant aux profondeurs de gravure (ainsi que les doses ioniques), et donne aussi le taux de variation d'épaisseur de la couche de phase par unité de variation de longueur d'onde. La valeur est d'environ 0,9, en bon accord avec la valeur théorique de 0,95 obtenue dans notre simulation initiale.

On constate sur la figure 9 que les courbes de résonance mesurées sur les zones gravées sont significativement plus larges (de typiquement 40%) que celle mesuré sur une zone non gravé. Cet élargissement spectral peut être attribué au fait que la taille du spot optique illuminant l'échantillon est plus grand que la taille d'un rectangle sur la structure en biseau. Cette interprétation est confirmée par les résultats montrés en figure 10. Sur la figure 10, la courbe en rouge montre le spectre de la réflexion optique mesuré sur une zone carré de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ gravé par FIB sur le MAS, tandis que la

courbe en noir montre celle mesurée sur une autre zone du MAS, gravée par une solution chimique pour atteindre la même longueur d'onde résonnante que celle de la courbe en rouge. En comparant ces deux spectres, on voit que l'élargissement spectral n'est pas présent. On voit également qu'une perte optique d'environ 3% est introduite sur la zone gravée par FIB. Cette perte est tout à fait tolérable pour notre application. Elle est attribuée à la présence de centres de diffusion optique induits dans la couche de phase en InP par l'implantation d'ions Ga^+ .

En conclusion de cette partie, la caractérisation optique de ce dispositif en biseau a confirmé le comportement multi-longueur d'onde de notre dispositif et montré que les pertes optiques induites par le procédé de gravure FIB sont négligeables.

Dans une troisième partie, nous avons développés des MAS à base de graphène. Le graphène a été utilisé pour le verrouillage de modes de différents types de lasers, en raison de son temps de recouvrement ultra-rapide et de ses propriétés d'absorbant saturable sur une plage de longueur d'onde étendue. Cependant sa faible non-linéarité optique, qui nécessite de fortes intensités incidentes, rend problématique l'utilisation du graphène pour le verrouillage de modes de certains lasers qui nécessitent de faibles puissances de saturation, et limitent également son potentiel pour d'autres applications. Dans ce travail, nous avons intégré du graphène dans une microcavité verticale comportant un miroir supérieur diélectrique, pour augmenter les propriétés optiques non linéaires du graphène et réduire son intensité de saturation. Contrairement au cas des matériaux semiconducteurs III-V, il n'est pas facile de déposer une couche diélectrique directement sur le graphène, en raison de son épaisseur d'une couche atomique. Par conséquent dans notre fabrication d'un dispositif en microcavité à base de graphène, une couche mince de Si_3N_4 d'épaisseur 25 à 35 nm, a été déposée selon un procédé spécifique de dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD), qui protège le graphène avant le dépôt ultérieur des couches constituant le miroir supérieur. La longueur d'onde résonnante du dispositif a été fixée à 1550nm. Un ensemble de quatorze paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$ déposées sur une plaque de silicium a été utilisé comme miroir inférieur. Une couche d'épaisseur quart d'onde en SiO_2 a ensuite été déposée par PECVD sur le miroir inférieur, pour localiser le feuillet

de graphène sur un ventre de l'onde optique intracavité. Après croissance par CVD, une monocouche de graphène a été transférée sur le miroir inférieur. Le miroir supérieur est constitué de plusieurs paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$ déposées par PECVD, suite au dépôt de la couche protectrice en Si_3N_4 .

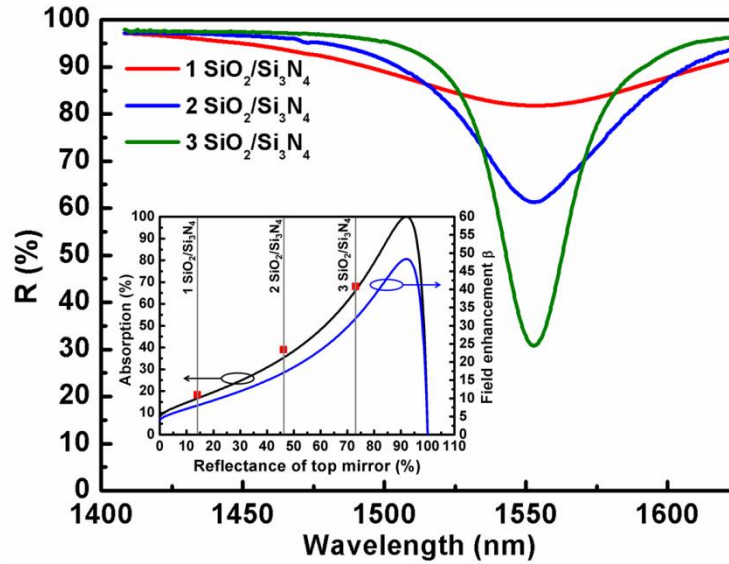


Figure 11 Spectres de réflectivité linéaire des dispositifs à couche de graphène intégrée en microcavité pour des miroirs supérieurs comportant 1, 2 et 3 paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$. Les courbes en insert représentent la dépendance de l'absorption optique dans le graphène (courbe en noir) et le facteur de renforcement du champ à la position du graphène (courbe en bleu), en fonction de la réflectivité du miroir supérieur. Les courbes sont les résultats calculés, et les carrés rouges sont les valeurs d'absorption mesurées.

Après la fabrication, la réflectivité linéaire des dispositifs à monocouche de graphène intégrée en microcavité a été caractérisée en mesurant leur spectre de réflexion et en utilisant un point sans graphène du même échantillon comme spectre de référence. La figure 11 présente le résultat mesuré sur les dispositifs comportant un miroir supérieur à 1, 2 et 3 paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$, respectivement. On note que la réflectance diminue quand le nombre de paires de couches du miroir supérieur augmente. Les courbes en insert représentent la dépendance de l'absorption optique dans le graphène (courbe en noir) et le facteur de renforcement du champ à la position du graphène (courbe en bleu), en fonction de la réflectivité du miroir supérieur. Ces courbes ont été calculées par la méthode des matrices de transfert, en utilisant pour l'indice de réfraction complexe du graphène la formule $n(\lambda) = 3.0 + i(C1/3)\lambda$, où $C1 = 5.446 \mu\text{m}^{-1}$. Les carrés rouges sont les valeurs d'absorption mesurées, pour chaque valeur du

nombre de paires du miroir supérieur. On observe que l'absorption et le renforcement du champ augmentent avec le nombre de paires du miroir supérieur. Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec les valeurs calculées.

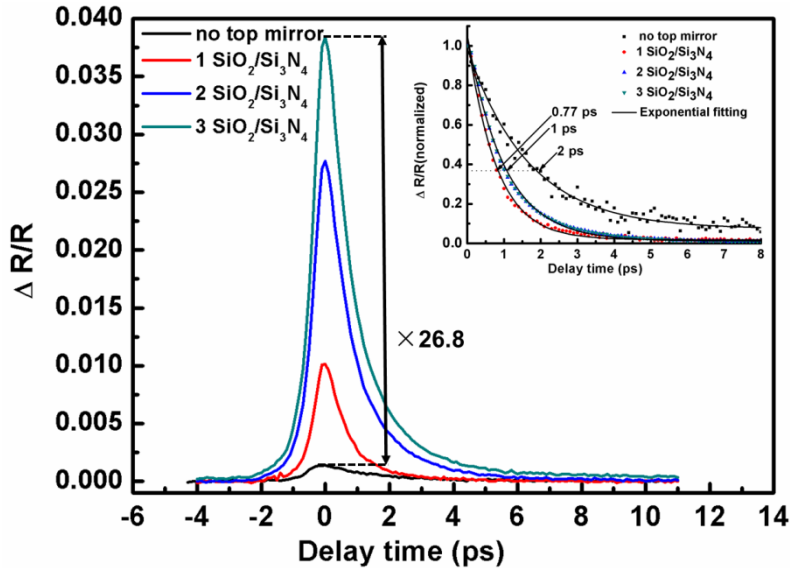


Figure 12 Changement de réflexion en fonction du retard entre pompe et sonde pour les dispositifs à monocouche intégrée en microcavité avec les miroirs supérieurs à 0, 1, 2 et 3 paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$, respectivement. Les courbes en insert montrent les changements de réflexion normalisés en fonction du retard entre pompe et sonde et les courbes obtenues par ajustement des données selon une loi exponentielle décroissante.

La réponse dynamique des dispositifs fut ensuite étudiée à l'aide d'un dispositif de mesure pompe-sonde dégénéré en longueur d'onde. Sur les résultats présentés en figure 12, on voit qu'au retard nul, (où les impulsions de pompe et de sonde se recouvrent temporellement), l'intensité du signal de sonde réfléchi augmente avec le nombre de paires du miroir supérieur. A cause de la résonance de microcavité davantage de porteurs sont photo-excités par le signal de pompe, réduisent le nombre d'états vacants dans la bande de conduction, et causent l'augmentation de la réflexion de la sonde. En comparaison du dispositif sans miroir supérieur, celui possédant 3 paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$ présente un facteur multiplicatif de renforcement de la réponse non-linéaire de 26,8. Les temps de recouvrement ont été obtenus par ajustement des données selon une loi exponentielle décroissante, comme représenté dans l'insert de la figure 12. On observe une réduction du temps de recouvrement, de 2 ps pour le dispositif sans miroir supérieur, à 0,77 ps pour celui ayant une paire de couche. Ensuite on observe une légère augmentation à 1 ps du temps de recouvrement pour le dispositif

ayant 3 paires de couches. Nous attribuons cette réduction aux défauts cristallins introduits lors du dépôt de la couche protectrice en Si_3N_4 , défauts qui agissent comme pièges à porteurs. Avec l'augmentation du nombre de paires de couches, la densité de porteurs photoexcités augmente. L'augmentation du temps de recouvrement est probablement le résultat d'une saturation des pièges dans cette circonstance.

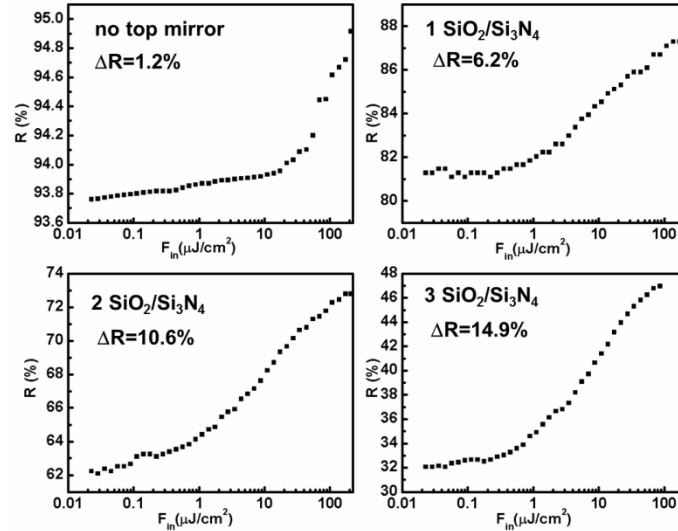


Figure 13 Réflectivité non linéaire en fonction de la fluence des impulsions incidentes, pour les dispositifs à monocouche intégrée en microcavité avec les miroirs supérieurs à 0, 1, 2 et 3 paires de couches $\text{SiO}_2 / \text{Si}_3\text{N}_4$, respectivement.

La réflectivité non linéaire des dispositifs en fonction de la fluence des impulsions incidentes a été caractérisée à l'aide d'un système de mesure de réflexion dépendante de la puissance incidente, en utilisant comme référence un échantillon ne comportant que le miroir inférieur. La figure 13 montre la réflectivité non linéaire mesurée, en fonction de la fluence incidente. On peut voir que le changement maximal de réflectivité des dispositifs augmente avec le nombre de paires du miroir supérieur.

En conclusion de cette troisième partie, nous avons montré que la combinaison d'une monocouche de graphène avec une microcavité permet d'obtenir une profondeur de modulation aussi grande que 14,9%. Cette valeur est beaucoup plus élevée que la valeur d'environ 2% décrite dans des travaux précédents. Cette approche permet d'envisager des applications au verrouillage de mode des lasers, à la commutation optique et à la mise en forme d'impulsions optiques.