



HAL
open science

Optique non-linéaire résonante dans les lasers à cascade quantique

Sarah Houver

► **To cite this version:**

Sarah Houver. Optique non-linéaire résonante dans les lasers à cascade quantique. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2017. Français. NNT : 2017PA066046 . tel-01575036

HAL Id: tel-01575036

<https://theses.hal.science/tel-01575036>

Submitted on 17 Aug 2017

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.

**THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE**

Spécialité : Physique de la matière condensée

École doctorale : « Physique et Chimie des Matériaux »

réalisée au

Laboratoire Pierre Aigrain

présentée par

Sarah HOUVER

pour obtenir le grade de :

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

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

soutenue le 27 avril 2017

devant le jury composé de :

M.	Jérôme FAIST	Rapporteur
M.	Giuseppe LEO	Rapporteur
Mme	Anne AMY-KLEIN	Examinatrice
Mme	Angela VASANELLI	Examinatrice
M.	Sylvain GIGAN	Examineur
M.	Jérôme TIGNON	Directeur de thèse
M.	Sukhdeep DHILLON	Encadrant de thèse

A mes parents,

Résumé

Les lasers à cascade quantiques (LCQ) sont des sources puissantes de rayonnement térahertz (THz) et moyen infrarouge (MIR). Elles reposent sur une transition intersousbande i.e. une transition entre des niveaux électroniques confinés dans la bande de conduction des nanostructures semiconductrices constituant le LCQ. Le développement de ces sources contribue à cette région du spectre électromagnétique difficile d'accès et ouvre la voie vers de multiples applications.

Ce travail de thèse présente une étude fondamentale de l'optique non-linéaire résonante dans les LCQ. La génération de mélange de fréquences entre un LCQ THz ou MIR et un faisceau proche infrarouge (NIR) est démontrée dans la cavité même du LCQ. Les non-linéarités des puits quantiques constituant la zone active du LCQ sont exaltées grâce à une excitation NIR résonante avec les transitions interbandes et grâce au photon du LCQ résonant avec les transitions intersousbandes de la structure. Ces excitations résonantes entraînent une forte exaltation de la susceptibilité non-linéaire, permettant une interaction efficace sans considération pour l'accord de phase. De précédentes études limitées aux températures cryogéniques, ont mis en évidence le mélange d'ondes résonant entre un LCQ THz basé sur GaAs et un faisceau NIR à 800 nm.

Le travail novateur de cette thèse montre que le mélange d'ondes résonant dans les LCQ peut être étendu à la gamme des LCQ MIR et à des excitations de pompe dans le domaine télécom, à température ambiante. De plus, les limites liées à l'absorption sous excitation résonante ont été en partie dépassées.

Ce manuscrit présente tout d'abord, les premières démonstrations de génération de mélange de fréquences dans un LCQ MIR basé sur GaAs, jusqu'à température ambiante. Ces développements permettent d'étendre le concept aux LCQ basés sur InP, qui offrent de meilleures performances dans le MIR à température ambiante et qui ont une transition interbande dans la gamme télécom. Grâce l'optimisation de ces structures et du dispositif expérimental, la génération de mélange d'ondes dans des LCQ THz et MIR basés sur InP sous excitation résonante dans la gamme télécom a été démontrée. Bien que les interactions non-linéaires aient été clairement mises en évidence, ces résultats très prometteurs sont limités à une plage de longueurs d'onde accessible restreinte par l'absorption sous excitation résonante. Pour dépasser ces limites, une nouvelle géométrie, mettant en œuvre une excitation en réflexion par la surface du LCQ, a été proposée et réalisée. Grâce à cette géométrie, le mélange d'ondes dans les LCQ a été démontré sur une plage de longueurs d'onde bien plus large, permettant de réduire significativement les effets d'absorption.

Ces démonstrations expérimentales sont appuyées par un formalisme théorique de la susceptibilité non-linéaire. Ce dernier, en bon accord avec les résultats expérimentaux, a permis une meilleure compréhension des phénomènes résonants impliqués. Par exemple, nous avons mis en évidence un possible phénomène d'annulation de la susceptibilité non-linéaire, par combinaison des différentes transitions impliquées dans le mélange de fréquences.

Ce travail a permis une compréhension approfondie des non-linéarités interbandes et intersousbandes résonantes dans les LCQ, ouvrant la voie vers des applications potentielles au décalage de longueurs d'ondes tout-optique pour les télécommunications et à la conversion des photons THz et MIR vers la gamme NIR, technologiquement bien plus mature.

Abstract

Quantum cascade lasers (QCLs) are powerful terahertz (THz) and mid-infrared (MIR) sources. Their emission relies on intersubband transitions i.e. transitions between confined electronic states in the conduction band of these semiconductor nanostructure-based lasers. This concept has permitted laser sources in previously difficult-to-access spectral regions, and has opened up a myriad of applications.

This PhD thesis presents a fundamental study of resonant nonlinear optics in QCLs. Non-linear frequency mixing between a THz or MIR QCL photon and a near infrared (NIR) pump has been shown within the QCL cavity. Nonlinearities from the QCL active region, composed of a set of quantum wells, can be enhanced owing to a NIR excitation that is resonance with interband transitions, and with the QCL photon in resonance with intersubband transitions. These resonant excitations permit a strong exaltation of the nonlinear susceptibility, allowing an efficient interaction without considerations of phase matching. Previous studies, limited to cryogenic temperatures, have shown nonlinear frequency mixing between a GaAs based THz QCL and an 800 nm NIR beam.

This thesis presents an original work highlighting that resonant nonlinear optics in QCLs can be extended to the MIR, and to telecom range pump excitations, at room temperature. Furthermore, previously limits related to absorption at resonant excitations have also been partially overcome.

This manuscript begins with the first demonstrations of frequency mixing generation in GaAs based MIR QCL, up to room temperature. These developments permitted the concept to be extended to InP based QCLs, which offer considerably better performance in the MIR and that have an interband transition in the telecom range. Owing to these optimised structures and experiments, nonlinear frequency mixing within a large fraction of the telecom range has been demonstrated, using InP based THz and MIR QCLs. Although the nonlinear interactions are clearly observed, these promising results are nonetheless limited to small pump excitation range owing to absorption at the resonant excitations. To overcome these limits, a new geometry involving a pump excitation in a surface reflection set-up is proposed and realised. With this geometry, efficient nonlinear frequency mixing is demonstrated over a much wider range, permitting to reduce significantly the effect of absorption.

These experimental demonstrations are supported by a theoretical formalism of the nonlinear susceptibility. This has permitted an enhanced understanding of the resonant excitations and this is in good agreement with experimental results. For example, we have highlighted a potentially important phenomenon of deconstructive interference of the nonlinear susceptibility between the different transitions involved in the nonlinear frequency mixing process.

As well as proving an in-depth understanding of interband and intersubband nonlinearities in QCLs, this work paves the way to potential applications such as all optical wavelength shifting for telecommunications, and the up-conversion of THz and MIR photons into the technologically mature NIR range.

REMERCIEMENTS

Après quatre années passées au laboratoire Pierre Aigrain, il y a de nombreuses personnes que je souhaiterais remercier pour m'avoir accompagné tout au long de cette aventure. La liste est longue mais les soutiens ont été nombreux et tous précieux.

Je souhaiterais tout d'abord remercier les membres de mon jury, Jérôme Faist et Giuseppe Leo qui ont accepté d'être rapporteurs de ce travail et avec qui j'ai pu avoir des discussions approfondies intéressantes, ainsi que Angela Vasanelli, Anne Amy-Klein et Sylvain Gigan qui ont accepté d'être examinateurs de cette thèse.

Les résultats obtenus dans cette thèse sont le fruit d'un important travail de collaboration. Autour du projet ANR RELINQ, je voudrais remercier Isabelle et Grégoire du C2N Marcoussis et Carlo, Maria, Margaux, Alireza et Zahra du MPQ pour la croissance et le process des échantillons et les discussions scientifiques très intéressantes autour du projet. Je remercie également Lianhe, Giles et Edmund de l'université de Leeds et Raffaele du C2N Orsay.

J'ai voulu développer des aspects théoriques pendant cette thèse et j'ai eu la chance de compter sur les discussions et la collaboration avec Teldo et surtout Robson de l'équipe théorique du LPA avec qui j'ai beaucoup appris.

Je suis très contente et fière de ces années de travail de thèse et de tout ce que j'y ai appris. Et ce résultat a été possible en grande partie grâce à l'encadrement, à la patience, au soutien et aux conseils avisés de Sukhy. Grâce à lui, j'ai beaucoup appris aussi bien sur la physique et les expériences que sur la communication de mon travail. Sa confiance (malgré de fréquents "tu es sûre?") m'a permis de bien progresser et de gagner en autonomie et je le remercie très chaleureusement pour ces quatre années de travail ensemble.

J'ai eu la chance d'être soutenue tout au long de cette thèse par les conseils et la bienveillance de Jérôme, qui m'a toujours encouragée dans mes projets et appuyée dans mes démarches pour l'après-thèse, je le remercie sincèrement.

Les conditions dans lesquelles j'ai pu poursuivre ma thèse au laboratoire Pierre Aigrain

ont été vraiment excellentes, grâce au soutien de nombreux collègues. Pour cette ambiance de travail chaleureux, je souhaiterais remercier : Jean-Marc pour son accueil, au service administratif Fabienne, Olga et bien sûr Anne pour leur efficacité de gestion, à l'atelier mécanique Jules et Mathieu pour leur diligence dans la fabrication, au bureau d'études Anaëlle et bien sûr Pascal pour leur patience et leur confiance concernant nos idées diverses et variées, au service de cryogénie Aurélien, Florent et Olivier pour leur disponibilité pour nous fournir de l'hélium au plus vite, à la salle blanche José et Michael pour leur confiance lorsqu'on voulait déposer du graphène sur les QCL, au service d'électronique Anne et Philippe avec qui nous avons réalisé de beaux projets pour les futurs doctorants et bien sûr David qui a développé toutes les caméras que j'ai utilisées et avec qui j'ai beaucoup apprécié travailler, sans oublier Claude pour la réalisation de logiciels sur mesure et Yann pour un soutien informatique sans faille. Je me trouve très chanceuse d'avoir pu travailler avec tous ces bons collègues et je les remercie pour leur appui continu.

L'équipe de spectroscopie THz a beaucoup évolué mais en gardant toujours un esprit d'accueil et d'entre-aide, je souhaiterais remercier Juliette pour sa bonne humeur et ses encouragements, Pierrick bien sûr qui m'a formé en 2 mois sur tout ce qu'il connaissait et a supporté patiemment mes questions naïves de début de thèse, Armand avec qui j'ai été très heureuse de travailler étroitement pendant 2 ans dans la bonne humeur, la musique et le soutien dans les coups durs (les QCL cramés), Kenneth toujours prêt à filer un coup de main et des bons conseils, Feihu avec qui on s'est serrés les coudes dans nos thèses en parallèle (depuis le premier jour), Jean pour son sourire au quotidien et son enthousiasme, Matthieu pour son soutien et ses blagues plus ou moins drôles et tous les autres anciens ou nouveaux, Josh, Djamal, Grégory, Anais, Hanond, Valentino, Panhui et Sylvain (co-bureau, reprends bien la relève).

La chance d'être au laboratoire Pierre Aigrain, c'est de travailler aux côtés de nombreux doctorants et post-doctorants sympathiques et ouverts, avec qui j'ai eu plaisir à discuter et dont certains sont aujourd'hui des amis. En désordre Camille, Simon, Thanya, Arthur, Andreas, Holger, Adrien, Omblin, Raphaël, Théo, Romaric, Christophe, Tom, Danijela, Quentin, Nathanaël, Federico, Lauriane, Tino, Matmat. C'est aussi de croiser tous les jours des chercheurs bienveillants et attentifs, je remercie pour leur soutien Takis, Christophe, Emmanuel, Gabriel, Robson, Francesca, Gwendal, Bernard.

L'expérience de la thèse permet de nombreuses rencontres enrichissantes aussi bien sur le plan scientifique que humain. J'ai eu la chance d'échanger avec la team de l'IEF, Jean-Michel, Bruno, Stefano, Pierre et de rencontrer Marianne et Marion, aujourd'hui des amies.

Dans ces années d'effort, j'ai pu compter sur le soutien de mes amis et ils ont été très présents : les amis d'Antony Béatrice, Julie, Eline, Marine, les amis de Lyon, Eloïse, Maëlle, Diane, Arthur, Olivier, Aude, Amélie, Pauline, Louis, la team Centrale, Anne-Laure, Claire, Sophie, Arthur, Amaury, Charlotte, Cédric, Aude, Nicolas, Clémence, Antoine, la team prépa, Maëlle, Thibault, Aglaé, Solenne, Anne, Adrien, Tom et Ariane, les copines du hand, les copines de la danse et Alice et Marie pour les aprem's thé revigorants. Je remercie bien sûr Stéphane pour son soutien sans faille.

Je souhaiterais finir cette longue liste de remerciements par ma famille et particulièrement mes parents qui m'ont toujours soutenue dans mon parcours, remotivée quand je perdais

espoir, encouragée quand j'avançais et conseillée avec bienveillance.

NOTATIONS SPÉCIFIQUES

LCQ : Laser à cascade quantique

THz : Téraherz

MIR : Moyen infrarouge

NIR : Proche infrarouge

DFG : Différence de fréquences

SFG : Somme de fréquences

HH : Trou lourd

LH : Trou léger

TM : Transverse magnétique

TE : Transverse électrique

LO-phonon : Phonon optique longitudinal

MBE : Epitaxie par jet moléculaire

MOCVD : Epitaxie en phase vapeur aux organométalliques

$\chi^{(2)}$: Susceptibilité non-linéaire d'ordre 2

E : Énergie d'un état ou d'un photon

f : Fréquence

ω : Fréquence angulaire

Δk : Désaccord de phase

Γ : Élargissement spectral

ρ : Population d'un état

TABLE DES MATIÈRES

Introduction Générale	1
I Lasers à Cascade Quantique	5
I.1 Transition optique dans des hétérostructures semi-conductrices 2D	6
I.1.1 États électroniques dans un puits quantique	7
I.1.2 Transition optique dans un puits quantique	10
I.1.3 Transition interbande	12
I.1.4 Transition intersousbande	13
I.2 Ingénierie quantique des LCQ	14
I.2.1 Principe schématique de fonctionnement des LCQ	14
I.2.2 Inversion de population	15
I.3 Guides d'ondes pour un LCQ	18
I.3.1 Guides d'ondes des LCQ MIR	19
I.3.2 Guides d'ondes des LCQ THz	21
I.4 Géométrie et fabrication des LCQ	22
I.4.1 Géométrie des LCQ	22
I.4.2 Croissance des couches nanométriques	23
I.4.3 Processus de fabrication des rubans et montage	24
I.5 État de l'art des différents LCQ	26
II Optique non-linéaire résonante	29
II.1 Optique non-linéaire classique	31
II.1.1 Propagation et polarisation du milieu	31
II.1.2 Optique non-linéaire d'ordre 2	33
II.1.3 Accord de phase	35
II.1.4 Mélange de fréquences et absorption	36
II.2 Optique non-linéaire résonante	37
II.2.1 Historique et symétrie	37
II.2.2 Théorie quantique de la susceptibilité non-linéaire	38

II.2.3	Comprendre les mécanismes de résonance	41
II.3	Simulations de la susceptibilité non-linéaire	45
II.3.1	État de l'art des calculs théoriques	45
II.3.2	Approximations mises en œuvre	45
II.3.3	Coefficient d'élargissement Γ	46
II.3.4	Calcul de $\chi^{(2)}$ dans un système simple	47
III	Etat de l'art en optique non-linéaire THz-NIR	51
III.1	État de l'art du mélange de fréquences THz-NIR	53
III.2	Précédents travaux de l'équipe	58
III.3	Motivations de mon travail de thèse	60
IV	Mélange d'ondes dans les LCQ MIR basés sur GaAs	63
IV.1	Principe et dispositif expérimental	64
IV.1.1	Principe de l'expérience	64
IV.1.2	Montage en transmission	65
IV.1.3	Mesure de photoluminescence en réflexion	66
IV.2	Caractérisation du LCQ	67
IV.2.1	Structure de bandes	67
IV.2.2	Guide d'ondes adapté pour le mélange de fréquences	68
IV.2.3	Caractéristique LIV	70
IV.3	Première démonstration et étude en énergie	72
IV.3.1	Génération de la différence de fréquences à 210 K	72
IV.3.2	Évolution en fonction de l'énergie de pompe	74
IV.4	Efficacité comparée du mélange d'ondes dans les LCQ THz et MIR	78
IV.4.1	Détermination de l'efficacité et de $\chi^{(2)}$	78
IV.4.2	Effet de la température	80
IV.4.3	Effet quantique sur la structure de bandes THz ou MIR	81
IV.4.4	Rôle du désaccord de phase	82
IV.5	Démonstration à température ambiante	84
V	Mélange d'ondes dans les LCQ basés sur InP	87
V.1	Caractérisation des LCQ MIR basés sur InP	89
V.1.1	Structure de bandes	89
V.1.2	Adaptation du guide d'ondes pour le mélange d'ondes	90
V.1.3	Optimisation des performances des LCQ	92
V.2	Mélange de fréquences dans les LCQ basés sur InP	95
V.2.1	Adaptation du montage expérimental	95
V.2.2	Mélange d'ondes dans les LCQ MIR	97
V.2.3	Mélange d'ondes dans les LCQ MIR à température ambiante	106
V.3	Caractérisation des LCQ THz basés sur InP	108
V.3.1	Structure de bandes	108
V.3.2	Caractéristiques LIV	109
V.4	Mélange d'ondes dans les LCQ THz	109
V.5	Efficacité et $\chi^{(2)}$	112
V.5.1	$\chi^{(2)}$ par la mesure de l'efficacité	112
V.5.2	Calcul théorique de $\chi^{(2)}$	114

VI Mélange d'ondes en excitation par la surface d'un LCQ	117
VI.1 Vers une excitation en réflexion par la surface	118
VI.1.1 Caractéristique du LCQ L773	118
VI.1.2 Ouverture gravée à la surface du LCQ	120
VI.1.3 Adaptation du montage expérimental	121
VI.2 Mise en évidence du mélange d'ondes au-delà de l'absorption	122
VI.2.1 Evolution théorique attendue	123
VI.2.2 Étude en fonction de l'énergie de pompe	126
VI.2.3 Quantifier la puissance	128
VI.2.4 Prise en compte de l'absorption en réflexion	129
VI.3 Étude en transmission et $\chi^{(2)}$ massif	131
VI.3.1 Mélange d'ondes en transmission	131
VI.3.2 Mesure de $\chi^{(2)}$ non-résonant (massif)	132
 Conclusion générale	 135
 Annexes	 141
 Bibliographie	 151

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Les lasers à cascade quantique (LCQ) sont des sources à semiconducteurs qui émettent un rayonnement dans l'infrarouge, entre le domaine de l'optique et le domaine de l'électronique, comme présenté sur la figure .1. Inventées il y a une vingtaine d'années, ces sources photoniques sont compactes et puissantes.

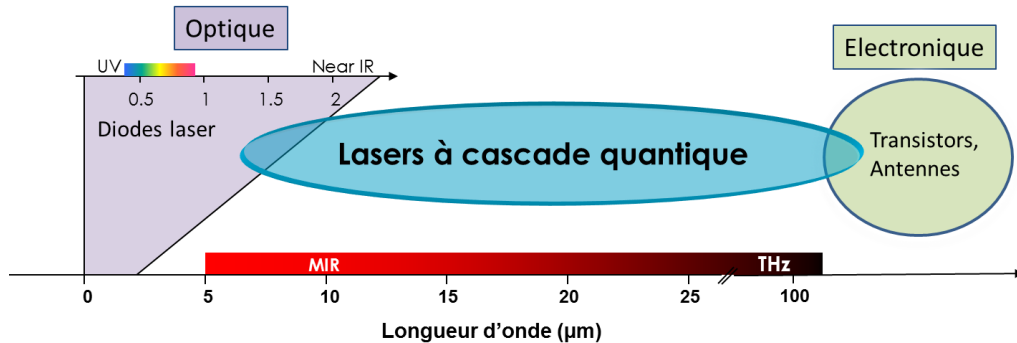


FIGURE .1 – *Domaine d'émission des lasers à cascade quantique*

Ces lasers sont constitués de nanostructures semiconductrices et sont unipolaires (le seul type de charge impliqué est l'électron). Leur émission radiative repose sur une transition entre les sous-bandes de la bande de conduction des puits quantiques formés par l'alternance des couches de semiconducteurs d'énergies de gap différentes (on parle de transition intersous-bande). Les puits quantiques couplés sont regroupés par périodes, au niveau desquelles un électron émet un photon par transition électronique puis est transmis à la période suivante. Un électron peut alors émettre plusieurs photons lors de son transport à travers la structure complète, on parle de schéma en cascade.

Les LCQ diffèrent des diodes lasers développées précédemment car l'émission de ces dernières repose sur une transition radiative entre la bande de conduction et la bande de valence. L'énergie des photons émis est limitée par l'énergie de gap du semiconducteur et dépend fortement du matériau utilisé. Pour les LCQ, l'énergie d'émission ne dépend que de l'écart

entre les niveaux électroniques confinés dans un puits quantique, elle peut donc être modifiée en variant la largeur du puits (ou l'épaisseur de la couche). Elle est ainsi indépendante du matériau utilisé et un même matériau permet de réaliser des lasers émettant sur une large bande de longueurs d'onde allant de quelques microns à une centaine de microns.

Les LCQ ont d'abord été mis au point dans le domaine moyen-infrarouge (MIR) en 1994 [1], émettant un rayonnement dans la gamme [5 - 30 μm] soit [50 - 250 meV]. Les LCQ MIR émettent de fortes puissances ($> 1 \text{ W}$) à température ambiante depuis plusieurs années. Ces sources sont particulièrement appropriées pour des applications à la spectroscopie de molécules, en sondant la gamme d'énergies vibrationnelles.

En 2002 [2], les LCQ se sont développés dans le domaine térahertz (THz), [40 - 200 μm] soit [5 - 20 meV]. Bien que les LCQ THz soient limités à des températures de fonctionnement cryogéniques, ils sont aujourd'hui le centre d'intérêt pour de nombreuses applications telles que la détection d'explosifs ou l'imagerie biomédicale.

Le domaine de l'optique non-linéaire a permis de mettre en évidence de nouveaux effets lorsqu'un faisceau optique intense interagit avec certains milieux. S'il s'est développé dès les années 1960 pour des faisceaux dans la gamme proche infrarouge, il faut attendre la fin des années 1990 pour voir les premières expériences d'optique non-linéaire dans la gamme THz.

Dans ce manuscrit, nous nous intéressons aux propriétés d'optique non-linéaire des LCQ, dans le cas d'une excitation résonante qui permet d'exalter les non-linéarités bien au-delà de celles du matériau massif. On étudiera l'interaction entre un LCQ et un faisceau proche infrarouge (NIR) résonant avec les transitions interbandes, couplé dans la cavité du LCQ. On réalisera ainsi des expériences d'optique non-linéaire entre le domaine NIR et le domaine THz-MIR dans un dispositif compact, démontrant la génération de bandes latérales issues du mélange des fréquences du faisceau NIR et du LCQ. On s'intéressera plus particulièrement à la somme de fréquences (SFG) et à la différence de fréquences (DFG).

Les expériences d'optique non-linéaire entre le domaine NIR et le domaine THz ont été réalisées précédemment dans plusieurs équipes grâce à des rayonnements THz intenses provenant de lasers à électrons libres. Ces effets non-linéaires conduisent à la génération de bandes latérales issues du mélange du faisceau NIR et du faisceau THz, à des énergies $E_{NIR} \pm nE_{THz}$, telles que la SFG et la DFG. Ces effets non-linéaires d'ordre 2, habituellement interdits dans les milieux centro-symétriques, sont rendus possibles grâce à l'ingénierie quantique des structures qui permet de briser la symétrie [3]. Ces effets ont alors pu être démontrés expérimentalement dans des multi-puits quantiques couplés. De plus, une exaltation de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 a été mise en évidence, grâce à une excitation résonante avec des transitions interbandes et intersousbandes des puits quantiques. Dans la plupart des démonstrations, il s'agit de transitions vers des états excitoniques et interexcitoniques [4], démontrant de fortes efficacités de conversion de l'ordre de 0.1 % entre le faisceau de pompe et par exemple le faisceau de SFG [5].

Plutôt que d'utiliser ces sources encombrantes et coûteuses, il a été proposé d'exploiter le champ THz intracavité des LCQ [6] [7], dispositif bien plus compact, dont l'intensité approche celle utilisée avec les lasers à électrons libres. A partir de ces premiers résultats, notre équipe a proposé de confiner un champ proche infrarouge résonant dans la cavité d'un LCQ, employant ainsi le LCQ à la fois comme source THz et comme milieu non-linéaire, composé de puits quantiques. Une première réalisation de génération de la différence de fréquences entre

un faisceau NIR et un LCQ THz doté d'un guide simple-plasmon a montré une efficacité de l'ordre de 0.1 %, comparable à celle obtenue avec des lasers à électrons libres [8]. Une seconde réalisation dans un LCQ THz doté d'un guide double-métal, permettant un meilleur confinement du champ THz dans la cavité du LCQ, a permis de montrer la génération d'ordres supérieurs jusqu'à $E_{NIR} - 3E_{THz}$ [9].

Cependant, ces démonstrations étaient limitées aux LCQ THz, maintenus à des températures cryogéniques. Je propose dans ce manuscrit d'étendre ces expériences d'optique non-linéaire résonante dans les LCQ, vers d'autres domaines de longueurs d'onde et vers un fonctionnement à température ambiante. Ce processus permet de sonder les états électroniques et les transitions, il est intéressant de pouvoir le mettre en œuvre dans d'autres gammes de longueurs d'onde. Les applications potentielles à la génération d'un faisceau décalé en longueur d'onde seraient d'autant plus variées et plus facilement implémentables à température ambiante. Mon travail de thèse s'articule autour de 3 réalisations centrales :

- des expériences d'optique non-linéaire entre un faisceau NIR et un LCQ MIR basé sur GaAs à 9 μm , démontrant la génération de DFG sous excitation interbande vers 800 nm, jusqu'à température ambiante [10],
- le développement d'un nouveau dispositif expérimental et l'optimisation de LCQ basés sur InP pour obtenir du mélange de fréquences avec une excitation dans la gamme télécom (1.3 μm – 1.6 μm). Ces expériences inédites, menées sur des LCQ MIR jusqu'à température ambiante et sur des LCQ THz, ouvrent la voie vers des applications possibles au décalage de longueur d'onde tout-optique dans les fibres optiques,
- la mise en place d'une nouvelle géométrie d'excitation pour générer du mélange de fréquences dans les LCQ, permettant de dépasser les limites liées à l'absorption, mises en évidence dans les précédentes démonstrations.

Toutes ces expériences s'appuient sur des simulations théoriques de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2, reposant sur un modèle adéquat, adapté aux processus d'optique non-linéaire dans les LCQ.

Le **chapitre 1** présente les concepts de base du fonctionnement des lasers à cascade quantique THz et MIR. Nous détaillerons les transitions radiatives dans les puits quantiques et l'ingénierie des structures de bandes permettant l'inversion de population et l'émission d'un LCQ. Nous nous intéresserons à la géométrie de ces dispositifs ainsi qu'aux guides d'ondes mis en place à ces longueurs d'onde, avant de conclure en présentant l'état de l'art de ces sources lasers.

Le **chapitre 2** détaille les principes théoriques décrivant les phénomènes d'optique non-linéaire. On s'intéressera dans un premier temps au cas classique, notamment lorsque le faisceau de pompe est absorbé, puis on décrira le traitement quantique qui met en évidence le cas de l'optique non-linéaire résonante et le modèle complet permettant de calculer la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2. On présentera enfin des premières simulations dans le cas THz et le cas MIR, mettant en évidence une meilleure efficacité de conversion pour le THz.

Le **chapitre 3** propose un état de l'art approfondi des expériences d'optique non-linéaire dans le domaine THz et plus particulièrement de mélange de fréquences entre un faisceau

NIR résonant ou non et un faisceau THz. On verra comment les non-linéarités peuvent être exaltées dans ces expériences, grâce à une excitation interbande résonante. Nous montrerons comment ces expériences peuvent être implémentées dans les LCQ et les motivations de ce travail.

Le **chapitre 4** présente la démonstration expérimentale de la génération de la différence de fréquences dans un LCQ MIR basé sur GaAs à 9 μm , montrant ainsi que ce processus peut être adapté à une gamme de longueurs d'onde de LCQ plus étendue. On étudiera le caractère résonant du processus en fonction de l'énergie de pompe NIR et on montrera le mélange de fréquences jusqu'à température ambiante.

Dans le **chapitre 5**, nous étendrons les expériences de mélange d'ondes à la gamme télécom, en mettant en place un nouveau montage expérimental et en développant par MOCVD des LCQ MIR basés sur InP, dont les performances ont été améliorées pour nos mesures. On montrera pour la première fois la SFG et la DFG dans un LCQ, avec une excitation dans le domaine télécom. Ces démonstrations dans les LCQ MIR à température ambiante permettent d'envisager des applications telles que la transition tout-optique entre 1.3 μm et 1.55 μm . L'obtention de mélange d'ondes dans les LCQ THz basés sur InP dans les mêmes conditions expérimentales met en évidence une plus forte efficacité de conversion que pour dans les LCQ MIR.

Le **chapitre 6** propose une nouvelle géométrie d'excitation pour le mélange d'ondes dans les LCQ, permettant ainsi de dépasser les limites dues à l'absorption que l'on a rencontrées dans la précédente géométrie en transmission. Cette approche permet d'étendre la plage d'énergies de pompe accessible, mettant évidence des effets inattendus à plus haute énergie comme une annulation ponctuelle de la susceptibilité par interférence de différentes contributions. Grâce aux simulations numériques complètes, nous mettrons en évidence le rôle des différentes contributions de $\chi^{(2)}$.

Forts de ces démonstrations, on avancera en **conclusion** de ce travail que les LCQ sont aujourd'hui des sources bien adaptées pour la réalisation d'expériences d'optique non-linéaire, dans le THz et le MIR. On proposera des perspectives de mise en œuvre de ces expériences.

CHAPITRE I

LASERS À CASCADE QUANTIQUE

Ce premier chapitre a pour objectif de présenter les lasers à cascade quantique. On rappellera pour cela le principe des transitions optiques dans les puits quantiques et nous montrerons que l'ingénierie quantique de ces structures permet de réaliser des dispositifs émettant dans le THz et le MIR. Nous nous intéresserons à la géométrie et aux guides dont sont équipés les LCQ et qui permettent de confiner les champs dans la cavité. Enfin, nous présenterons un état de l'art actuel non-exhaustif des LCQ.

Introduction

Les sources lasers à semiconducteurs se sont développées à partir des années 60, offrant une nouvelle solution technologique compacte et efficace pour générer de la lumière laser du domaine ultra-violet au domaine proche infrarouge. Les premiers lasers basés sur une jonction p-n [11] reposent sur l'application d'un potentiel électrique à un système de GaAs dopé, ce qui permet de recombiner un électron et un trou, entraînant l'émission d'un photon. L'énergie de ce photon est de l'ordre de l'énergie de la bande interdite, intrinsèque au matériau. L'ajout d'une hétérojonction GaAs/AlGaAs, au niveau de la jonction p-n, permet en 1975 [12] d'augmenter la densité de porteurs et donc de diminuer considérablement le courant seuil, auparavant très contraignant. Grâce au progrès des techniques de croissance par épitaxie, la taille des puits quantiques a diminué, entraînant un meilleur confinement des électrons et à nouveau une importante diminution du courant seuil, ouvrant le champ des possibles en terme d'applications.

Bien que le développement des diodes lasers soit spectaculaire, ces dernières reposent sur une transition interbande dont l'énergie est astreinte à l'énergie du gap. Il n'existe pas de matériau dont l'énergie de gap soit suffisamment faible pour atteindre une émission radiative dans le domaine THz et MIR. Pour atteindre ce domaine, l'idée de s'appuyer sur une transition intersousbande (de faible énergie) plutôt que sur une transition interbande fait son chemin. En 1971, Suris et Kazarinov [13] proposent de réaliser un laser unipolaire, ne faisant intervenir que des électrons, utilisant les transitions intersousbandes. Ces derniers s'appuyaient sur la découverte récente du super-réseau [14]. La première démonstration expérimentale d'absorption dans des transitions intersousbandes est apportée en 1985 dans des puits quantiques de GaAs/AlGaAs [15]. Elle est bientôt suivie par la première observation d'émission radiative d'une telle transition en 1988 [16]. Enfin, grâce au développement de l'épitaxie par jets moléculaires, la première réalisation expérimentale d'un laser à cascade quantique, dont l'émission repose sur une transition intersousbande de la bande de conduction, est obtenue par Jérôme Faist et al. dans les laboratoires Bell aux Etats-Unis [1]. Ce premier dispositif permettait une émission dans le MIR. En 2002, le premier LCQ émettant dans le domaine THz est réalisé par Köhler et al. [2]. Ces nouveaux dispositifs participent à combler le gap technologique en matière de sources dans ce domaine de longueurs d'onde.

Dans ce premier chapitre, nous présenterons les bases du fonctionnement d'un LCQ. On s'attachera à détailler les transitions possibles dans un puits quantique et comment grâce à l'ingénierie de ces structures quantiques, on peut obtenir un transport contrôlé des électrons conduisant à l'émission de photons dans le THz et le MIR. La géométrie de la cavité et les guides d'ondes mis en place dans les LCQ sont des éléments très importants pour garantir une émission laser. Enfin, nous terminerons ce chapitre par un état de l'art des différents LCQ et des défis à venir concernant le fonctionnement de ces structures.

I.1 Transition optique dans des hétérostructures semi-conductrices 2D

Dans cette section, nous allons détailler le principe d'émission des lasers à cascade quantique et comprendre comment ce fonctionnement est rendu possible grâce l'interaction lumière-matière dans les hétérostructures. Nous décrirons les états électroniques dans les puits quantiques de semiconducteur et les différentes transitions possibles entre ces états. Cette description des propriétés quantiques des états électroniques permettra de comprendre non seulement

l'émission du LCQ mais aussi l'origine physique d'autres phénomènes que nous expliciterons dans cette thèse comme la photoluminescence ou l'excitation optique résonante interbande ou intersousbande. Un ouvrage de référence sur les problématiques décrites dans l'ensemble de cette section est "Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures" de Gérard Bastard [17].

I.1.1 États électroniques dans un puits quantique

Le constituant élémentaire des hétérostructures 2D est le puits quantique. Après avoir été pendant longtemps un objet d'études théoriques, ce dernier a pu être fabriqué grâce aux progrès des techniques de croissance [18]. En effet, ce puits de potentiel est créé lorsqu'on assemble des couches fines de semiconducteurs ayant des bandes interdites (énergies de gap) différentes, illustré sur la figure I.1 par des matériaux notés I et II. En alternant ainsi des couches de gaps différents, on crée au niveau de la bande de conduction une alternance de barrières et de puits de potentiel dans lesquels les électrons sont confinés. Le même schéma s'opère au niveau de la bande de valence où les trous sont confinés dans les "barrières" de potentiel.

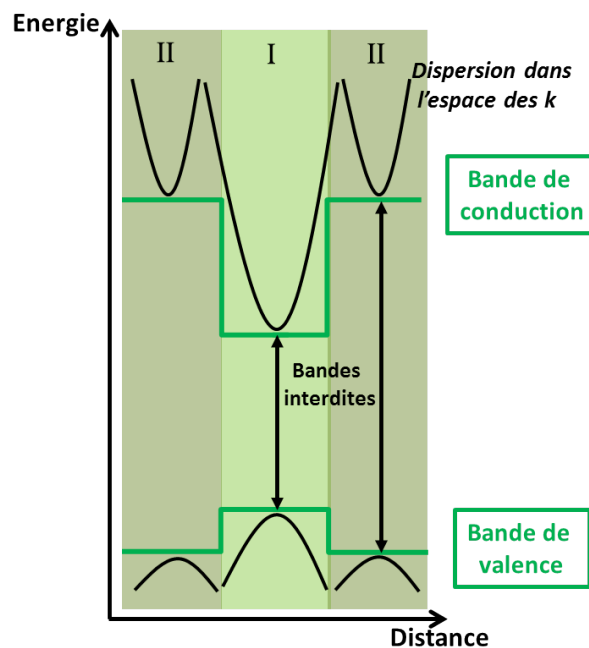


FIGURE I.1 – Schéma de la formation d'un puits quantique au niveau de la bande de conduction, suite à l'alternance de couches de semiconducteurs (I et II) de bandes interdites différentes.

On parle d'hétérostructures à 2 dimensions car les électrons ne sont confinés que selon l'axe de croissance mais ils sont libres dans le plan des couches. On qualifiera ce dernier de plan parallèle et on notera alors $\mathbf{k}_{//}$ le vecteur d'onde et $\mathbf{r}_{//}$ le vecteur direction dans ce plan.

Pour décrire les électrons dans les solides, plutôt que de considérer des électrons de masse m_0 fixée soumis à un potentiel, ces derniers sont traités comme des électrons libres dont la

masse effective m^* est donnée par :

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial^2 E(k)}{\partial k^2}$$

où $E(k)$ est l'énergie de l'électron qui suit la relation de dispersion. Si cette dernière est parabolique, (cas général pour les semiconducteurs, représenté en noir sur la figure I.1), m^* est une constante, positive ou négative, que l'on peut écrire en fonction de m_0 .

Le confinement des électrons dans ce type d'hétérostructures peut être décrit par le modèle simple d'un électron de masse m^* , dans un puits de potentiel $V(\mathbf{r})=V(z)$. L'équation de Schrödinger stationnaire gouvernant les états électroniques dans le puits s'écrit :

$$H_0\psi(\mathbf{r}) = \left(\frac{p^2}{2m^*} + V(\mathbf{r}) \right) \psi(\mathbf{r}) = E\psi(\mathbf{r}) \quad (\text{I.1})$$

L'électron est décrit par sa fonction d'onde $\psi(\mathbf{r})$. Dans l'approximation de la fonction enveloppe, la fonction d'onde de l'électron s'écrit :

$$\psi(\mathbf{r}) = f_n(\mathbf{r})u_{n,k}(\mathbf{r})$$

où $u_{n,k}(\mathbf{r})$ est la fonction de Bloch de la bande n , au point k , qui reproduit la périodicité du réseau cristallin du matériau et $f_n(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \phi_n(z)$ est la fonction enveloppe variant lentement à l'échelle atomique, S est la surface de l'échantillon. Les fonctions $\phi_n(z)$ sont les solutions de l'équation unidimensionnelle issue de l'équation I.1 :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{d^2}{dz^2} + V(z) \right] \phi_n(z) = E_n \phi_n(z) \quad (\text{I.2})$$

où n décrit les différentes sous-bandes de la bande considérée. On présente sur la figure I.2, le module au carré des états propres confinés dans une couche de GaAs de 20 nm, entre deux couches de $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$. Ces solutions sont calculées en résolvant numériquement l'équation de Schrödinger, en prenant les énergies de gap et les masses effectives appropriées selon les matériaux, pour les électrons et les trous (lourds ou légers).

L'équation I.2 se résout analytiquement dans le cas d'un puits infini. Cette approximation permet de mettre en évidence les paramètres intervenants dans la quantification des états dans un puits quantique. Les énergies quantifiées E_n s'écrivent dans ce cas :

$$E_n = \frac{\hbar^2}{\pi^2} \frac{n^2}{m^* L_z^2} \quad (\text{I.3})$$

Les énergies propres évoluent comme le carré du nombre quantique n et sont inversement proportionnelles au carré de la largeur L_z du puits quantique. L'énergie séparant deux états électroniques confinés dans un puits quantique dépend donc directement de la largeur du puits. On peut ajuster l'énergie de la transition entre deux états en choisissant habilement l'épaisseur de la couche de puits (i.e. de la largeur du puits), cela constitue le principal levier de l'ingénierie quantique. Pour les LCQ, les largeurs typiques des puits sont de quelques nanomètres pour une transition MIR (100 à 200 meV) et d'une vingtaine de nanomètres pour une transition THz (quelques meV). La dépendance avec la masse effective explique les différences de confinement entre les trous lourds ($m_{HH}^*=0.5m_0$, non-représentés ici) et les

électrons ($m_e^*=0.067m_0$). Les trous légers ont une masse effective ($m_{LH}^*=0.08m_0$) proche de celle des électrons, donc un confinement équivalent, comme on peut le voir sur la figure I.2.

On peut remarquer que pour des transitions d'énergie plus importante, comme celles dans le MIR de l'ordre de 100-200 meV, il faudra non seulement un puits étroit pour espacer suffisamment les états mais aussi un fort contraste entre les énergies de la bande de conduction $\Delta E_{conduction}$ des deux matériaux constituant les puits et les barrières, afin que les puits soient assez profonds pour assurer le confinement des états séparés de plus de 100 meV.

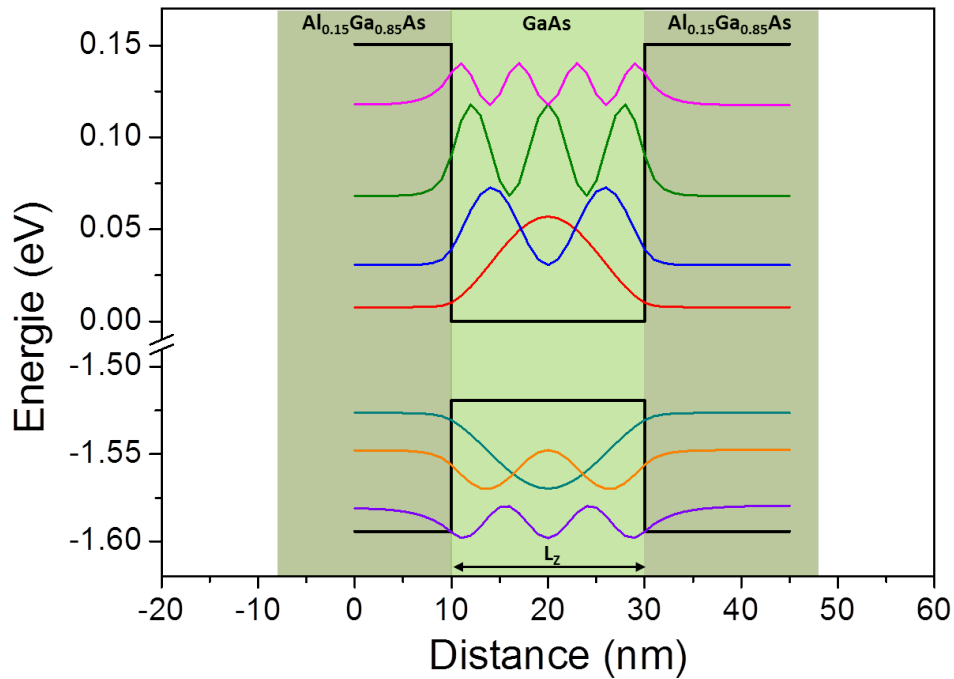


FIGURE I.2 – Modules au carré des fonctions d'onde des états confinés dans la bande de conduction et dans la bande de valence (trous légers) d'un puits quantique $GaAs/Al_{0.15}Ga_{0.85}As$ de taille L_z .

Considérons maintenant deux puits quantiques séparés par une barrière. Si la barrière est suffisamment large, les deux puits sont indépendants et chacun se comporte comme dans le cas d'un puits unique présenté figure I.2. Les états d'énergie dans chaque puits sont alors dégénérés. Cependant, si la barrière est assez fine comme présentée figure I.3, les puits sont couplés par effet tunnel et les électrons confinés sont délocalisés entre les deux puits. Les états électroniques de puits couplés sont alors une combinaison des états propres de chaque puits indépendant. L'exemple figure I.3 présente deux puits de 10 nm de large, séparés par une barrière de 1 nm. Les états électroniques ne sont plus dégénérés, les deux premiers états (vert et orange) sont par exemple séparés de 12 meV. Ce couplage entre les puits quantiques ajoute un nouveau degré de liberté pour l'ajustement de l'énergie des niveaux électroniques impliqués dans les transitions radiatives.

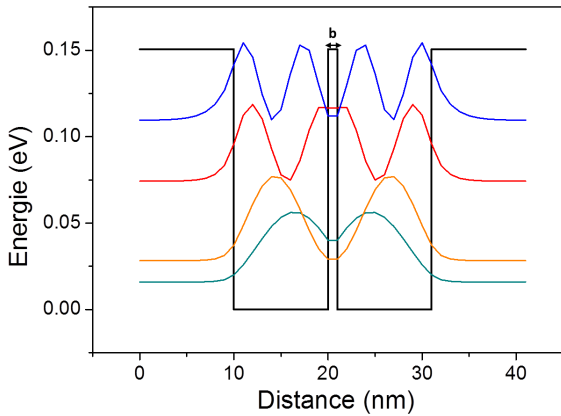


FIGURE I.3 – États électroniques dans deux puits quantiques couplés de GaAs, couplés par une barrière fine (1 nm) d' $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$.

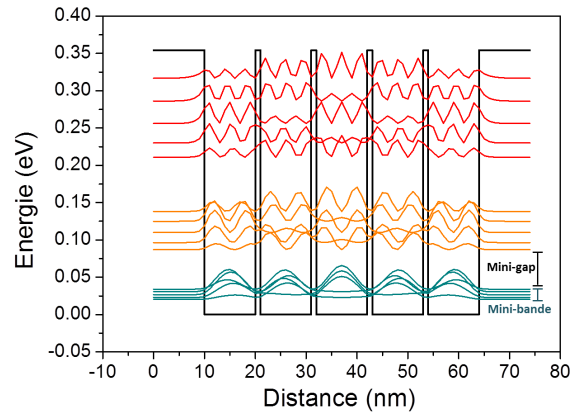


FIGURE I.4 – Super-réseau constitué de puits quantiques GaAs/ $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$, couplés par effet tunnel. Les états électroniques forment un continuum d'énergie appelé mini-bande.

Lorsqu'un grand nombre de puits quantiques, séparés par des barrières fines, sont couplés par effet tunnel, ils forment un super-réseau [14] comme présenté figure I.4. Dans cette structure, du fait du couplage par effet tunnel, l'ensemble des états électroniques d'énergie initialement dégénérée, forme un continuum d'énergie appelé mini-bande. Ces mini-bandes sont séparées en énergie par des bandes interdites de faible énergie appelées mini-gap. Les électrons peuvent se propager facilement le long de la structure d'un super-réseau par effet tunnel. Dans l'exemple présenté figure I.4, 5 puits quantiques de 10 nm sont séparés par des barrières de 1 nm de $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{As}$. On voit bien les mini-bandes et les mini-gaps apparaître.

I.1.2 Transition optique dans un puits quantique

On va détailler dans cette partie les équations régissant les transitions optiques dans un puits quantique. On parlera à la fois du phénomène d'absorption, où l'onde électromagnétique interagissant avec le milieu entraîne le transfert d'un électron vers un état de plus haute énergie, mais aussi du phénomène réciproque de l'émission d'une onde électromagnétique suite à la désexcitation d'un électron vers un état de plus basse énergie. On verra les transitions interbandes qui ont lieu entre la bande de valence et la bande de conduction et les transitions intersousbandes qui ont lieu à l'intérieur d'une même bande (ici la bande de conduction). C'est sur ces dernières que fonctionne l'émission d'un LCQ.

Pour décrire les transitions optiques ayant lieu dans un puits quantique, on va s'intéresser à l'interaction d'une onde électromagnétique $\mathbf{F}(\mathbf{r},t)$ avec un milieu d'indice n_0 . Pour simplifier la description aux cas qui nous intéresseront dans ce manuscrit, mettons tout de suite en place la géométrie du problème sur la figure I.5. L'onde électromagnétique interagit (c'est-à-dire qu'elle est absorbée/générée) selon la direction de l'axe x avec un système composé de puits quantiques. On décrira la situation d'un électron dans un puits quantique de ce système.

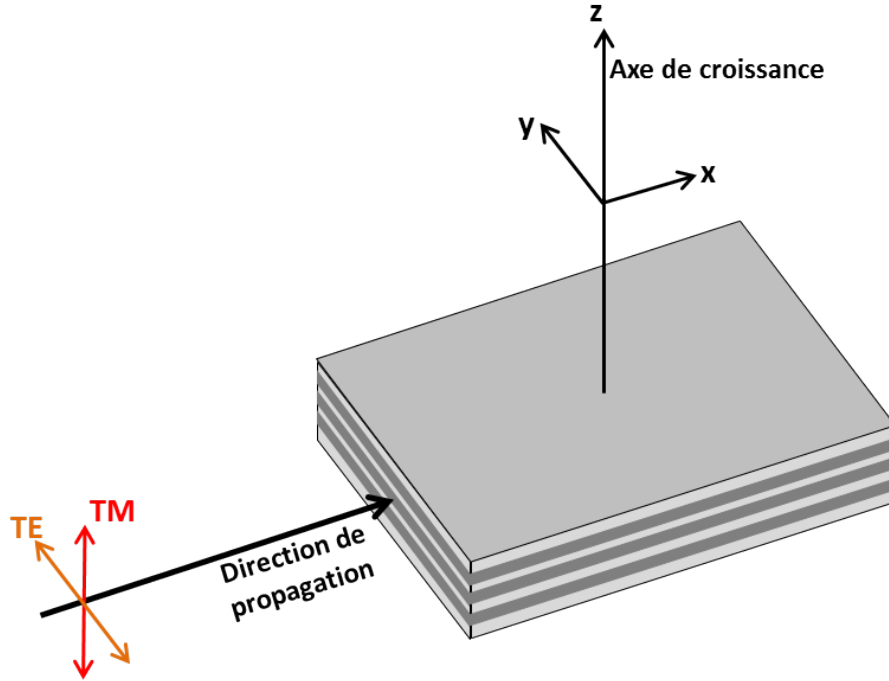


FIGURE I.5 – Schéma de la géométrie de l'interaction entre une onde électromagnétique et un milieu composé de puits quantiques. L'onde se propage selon l'axe x . Le plan des couches est défini par le plan (x,y) et z est l'axe de croissance.

Le champ électrique est supposé assimilé à une onde plane se propageant selon l'axe x , monochromatique de fréquence angulaire ω et polarisée linéairement selon l'axe y (TE, transverse électrique) ou l'axe z (TM, transverse magnétique). On appellera ϵ cette polarisation. On peut donc écrire ce champ électrique de la façon suivante :

$$\mathbf{F}(x, t) = F\epsilon \cos(\omega t - qx)$$

Plutôt que d'utiliser le champ électrique et son potentiel électrique ϕ , on fait le choix de la jauge de de Coulomb où ϕ est nul et où $\mathbf{F} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$. Le potentiel vecteur \mathbf{A} s'écrit :

$$\mathbf{A}(x, t) = -\frac{\epsilon c F}{2i\omega} \left(e^{i(\omega t - qx)} - e^{-i(\omega t - qx)} \right)$$

En présence du potentiel vecteur, le moment \mathbf{p} de l'électron du puits quantique considéré, peut être remplacé par $\mathbf{p} + \frac{e\mathbf{A}}{c}$ dans les équations du mouvement. L'hamiltonien décrivant l'électron de notre hétérostructure peut donc s'écrire :

$$H = H_0 + \frac{e}{2m_0c} [\mathbf{p} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{p}]$$

où H_0 est l'hamiltonien en absence d'onde électromagnétique.

Nous traiterons le problème en perturbation dépendant du temps et nous considérerons des transitions entre les états $|i\rangle$ et $|f\rangle$, états propres du système décrit par H_0 , d'énergies $E_i < E_f$ respectivement. La règle d'or de Fermi nous donne la probabilité de transition suivante :

$$P_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | V | i \rangle|^2 \delta(E_f - (E_i + \hbar\omega))$$

Dans l'approximation dipolaire électrique (le potentiel \mathbf{A} décrivant l'onde électromagnétique varie lentement par rapport à la dimension caractéristique de l'électron, la maille cristalline), le potentiel d'interaction V s'écrit :

$$V = \frac{ieF}{2m_0\omega} \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p}$$

C'est l'élément de matrice $\langle f | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | i \rangle$ qui va nous permettre de poser les règles de sélection qui régissent les transitions optiques dans les hétérostructures. On verra quelles transitions sont autorisées ou interdites entre un état initial et un état final. Comme on l'a vu précédemment, les états propres sont décrits par le formalisme de la fonction enveloppe de la manière suivante : $\psi(\mathbf{r}) = f_n(\mathbf{r})u_{n,k}(\mathbf{r})$, avec $f_n(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{S}} e^{i\mathbf{k}_{//} \cdot \mathbf{r}_{//}} \phi_n(z)$. Les fonctions enveloppes variant lentement à l'échelle atomique, on peut réécrire l'élément de matrice tel que :

$$\langle i | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | f \rangle = \boldsymbol{\epsilon} \langle u_i | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | u_f \rangle \int f_i^* f_f d^3r + \boldsymbol{\epsilon} \langle u_i | u_f \rangle \int f_i^* \mathbf{p} f_f d^3r \quad (\text{I.4})$$

A partir de cette équation, on peut envisager deux types de transitions : les transitions interbandes et les transitions intersousbandes que nous allons détailler dans les sous-parties suivantes.

1.1.3 Transition interbande

Pour une transition interbande, la transition a lieu de la bande de valence vers la bande de conduction (ou inversement). On remplacera les indices i et f indiquant l'état initial ou final par les indices v et c caractérisant la bande de valence ou de conduction. On a alors $u_v \neq u_c$, or comme les fonctions de Bloch sont orthonormées, $\langle u_v | u_c \rangle = 0$. L'élément de matrice décrit par l'équation I.4 se simplifie et on peut expliciter les fonctions enveloppes de manière suivante :

$$\langle i | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | f \rangle = \boldsymbol{\epsilon} \langle u_v | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | u_c \rangle \frac{1}{S} \int e^{i(\mathbf{k}_{c, //} - \mathbf{k}_{v, //}) \cdot \mathbf{r}_{//}} d^2 \mathbf{r}_{//} \int \phi_{v,n}(z) \phi_{c,n'}(z) dz \quad (\text{I.5})$$

où n et n' sont les indices des sous-bandes respectivement de la bande de valence et de la bande de conduction.

L'équation I.5 nous impose plusieurs règles pour que l'élément de matrice soit non nul. Les premières sont définies par la partie enveloppe de la fonction d'onde. La première intégrale nous donne la conservation de l'impulsion de l'électron dans le plan parallèle lors de la transition (l'impulsion du photon étant très faible devant celle de l'électron). L'intégrale peut s'écrire :

$$\int e^{i(\mathbf{k}_{c, //} - \mathbf{k}_{v, //}) \cdot \mathbf{r}_{//}} d^2 \mathbf{r}_{//} = \delta(\mathbf{k}_{c, //} - \mathbf{k}_{v, //})$$

Les transitions doivent donc être verticales dans l'espace des k . Pour un système à gap direct (cas des semiconducteurs considérés ici), la deuxième intégrale correspond au recouvrement des fonctions d'onde selon l'axe z . Dans le cas d'un puits quantique infini, on a : $\int \phi_{v,n}(z) \phi_{c,n'}(z) dz = 0$ si n et n' sont de parités différentes. Les transitions telles que $n=n'$ sont particulièrement plus intenses et seules de telles transitions ont pu être observées expérimentalement. La règle de même parité est extrêmement résistante et seuls des puits très asymétriques peuvent conduire à des transitions de parités différentes.

Un dernier ensemble de règles de sélection est imposé par la polarisation de l'excitation. Il y a de nombreux cas différents, dépendant de la polarisation, de la direction de propagation, des symétries des bandes mises en jeu. L'ensemble de ces règles est énoncé dans la référence

[17], page 248. Nous reportons dans le tableau 5 les cas spécifiques abordés dans ce manuscrit, lorsque la propagation se fait selon x (géométrie des chapitres IV et V) ou selon z (géométrie du chapitre VI). Pour chaque propagation, on regarde pour une polarisation ϵ donnée quelles sont les transitions impliquées et en quelle proportion.

	Polar. ϵ_x	Polar. ϵ_y	Polar. ϵ_z	Transitions
Propagation selon x	impossible	63 %	interdite	HH-E
Propagation selon x	impossible	37 %	100 %	LH-E
Propagation selon z	63 %	63 %	impossible	HH-E
Propagation selon z	37 %	37 %	impossible	LH-E

Table 5 – Règles de sélection en polarisation, pour les transitions interbandes

Pour la propagation selon x , si le faisceau est polarisé selon z (axe de croissance, polarisation TM), seuls les trous légers (LH) contribuent à l'élément de matrice, ce sont les seules transitions optiques permises. Si le faisceau est polarisé selon y (dans le plan des couches, polarisation TE), les deux bandes de trous contribuent avec un facteur $\sqrt{3}$ plus important pour les trous lourds (HH).

Pour la propagation selon z , les polarisations selon x et selon y sont équivalentes (dans les deux cas dans le plan des couches). A nouveau, les deux bandes de trous contribuent, les trous lourds avec une part plus importante d'un facteur $\sqrt{3}$.

I.1.4 Transition intersousbande

Dans cette sous-partie, on s'intéresse aux transitions intersousbandes. On va surtout se concentrer sur l'émission d'une onde électromagnétique suite à la transition d'un électron entre deux sous-bandes, dans la bande de conduction. Il s'agit du processus d'émission des lasers à cascade quantique. On reprend l'équation I.4 pour décrire cette transition. Dans le cas d'une transition entre deux sous-bandes, $\langle u_c | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | u_c \rangle = 0$, il ne reste donc que le deuxième terme de l'équation I.4. Ce dernier se réduit de manière suivante :

$$\langle i | \boldsymbol{\epsilon} \cdot \mathbf{p} | f \rangle = \boldsymbol{\epsilon} \langle u_i | u_f \rangle \int f_i^* \mathbf{p} f_f d^3 r \quad (\text{I.6})$$

$$= \frac{1}{S} \int \phi_{c,n}(z) e^{-i\mathbf{k}_{c, //} \cdot \mathbf{r}_{ //}} [\epsilon_x p_x + \epsilon_y p_y + \epsilon_z p_z] \phi_{c,n'}(z) e^{i\mathbf{k}'_{c, //} \cdot \mathbf{r}_{ //}} d^3 \mathbf{r} \quad (\text{I.7})$$

$$= (\epsilon_x \hbar k_x + \epsilon_y \hbar k_y) \delta_{n,n'} \delta_{\mathbf{k}_{c, //}, \mathbf{k}'_{c, //}} + \epsilon_z \delta_{\mathbf{k}_{c, //}, \mathbf{k}'_{c, //}} \cdot \int \phi_{c,n}(z) p_z \phi_{c,n'}(z) dz \quad (\text{I.8})$$

Le premier terme de l'équation I.8 est nul dans le cas qui nous intéresse, si la transition a lieu d'une sous-bande vers une sous-bande différente, c'est-à-dire $n \neq n'$ ou $\omega \neq 0$. Le deuxième terme nous donne la même condition que pour les transitions interbandes, la transition doit être verticale dans l'espace des k : $\mathbf{k}_{c, //} = \mathbf{k}'_{c, //}$. Seule une émission polarisée selon l'axe z , orthogonale au plan des couches (polarisation TM) et se propageant dans le plan des couches, est autorisée. Enfin du fait de l'action du potentiel p_z , seules les transitions entre sous-bandes de parités différentes sont autorisées. A titre d'exemple, la transition $n=2$ vers $n=1$ est autorisée mais la transition $n=3$ vers $n=1$ est interdite.

De nombreux processus non-radiatifs peuvent entrer en compétition avec une transition radiative intersousbande, tels que l'émission spontanée de phonons optiques longitudinaux (LO-phonons), l'interaction avec des défauts d'interface ou des interactions électron-électron.

Ces processus ont des temps de vie très courts, sous-picosecondes à quelques picosecondes. Il est également possible que les porteurs libres absorbent un photon THz. Ces différents processus sont résumés sur la figure I.6.

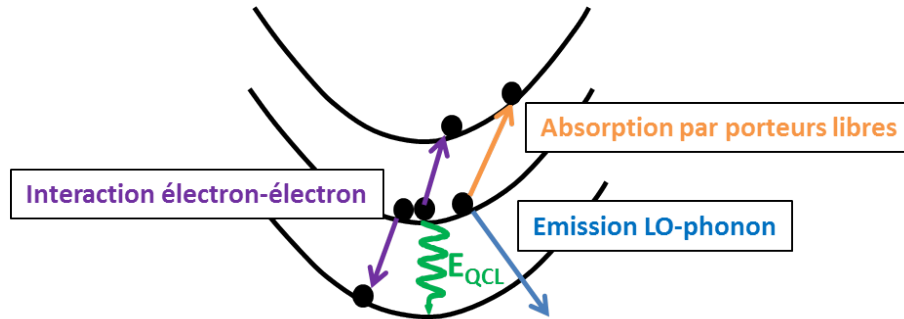


FIGURE I.6 – Schéma représentant les processus non-radiatifs entrant en compétition avec une transition laser intersousbande.

Grâce à une bonne connaissance des puits quantiques et une bonne compréhension des transitions optiques possibles, nous allons voir maintenant comment manipuler ces structures pour en faire des lasers à cascade quantique.

I.2 Ingénierie quantique des LCQ

L'émission des lasers à cascade quantique repose sur une transition intersousbande, transition entre deux états électroniques de la bande de conduction d'un puits quantique de semi-conducteur. Seuls les électrons sont impliqués et la transition peut être accordée en fonction de la taille du puits quantique. Nous allons voir que pour avoir du gain laser, il faut une inversion de population entre les états impliqués dans la transition laser. Le gain est renforcé grâce à l'effet cascade permettant à un électron de générer plusieurs photons. L'ajustement des états électroniques par ingénierie quantique des puits et des barrières permet d'obtenir les conditions nécessaires à l'émission du LCQ. C'est ce que nous allons détailler dans cette partie.

I.2.1 Principe schématique de fonctionnement des LCQ

Les lasers à cascade quantique se composent de couches nanométriques de 2 types de semi-conducteurs, formant alternativement des puits quantiques et des barrières. On présentera dans ce manuscrit deux couples de matériaux puits/barrière qui sont la base des LCQ utilisés dans nos expériences : GaAs/AlGaAs et InGaAs/AlInAs. Comme on l'a détaillé dans la partie I.1.1, dans les puits quantiques, les états électroniques sont confinés et on peut contrôler l'énergie qui sépare ces niveaux en jouant sur l'épaisseur des couches et donc sur la largeur des puits.

La figure I.7 présente schématiquement deux puits quantiques, encadrés de barrières, où sont confinés des états électroniques. Si on arrive à injecter sélectivement des électrons dans l'état de plus haute énergie, ces derniers peuvent se désexciter vers un niveau inférieur en émettant un photon d'énergie égale à l'écart entre les niveaux. Pour obtenir un effet laser, il faut imposer une inversion de population entre les états 3 et 2, impliqués dans la transition (on parlera d'état haut et d'état bas pour désigner ces états). Pour cela, on aura besoin à la fois de peupler préférentiellement l'état haut, état 3, mais aussi d'extraire efficacement les

électrons de l'état bas, état 2. On pourra ainsi maintenir un temps de vie des électrons dans l'état 3 supérieur à celui des électrons dans l'état 2 et garantir l'inversion de population.

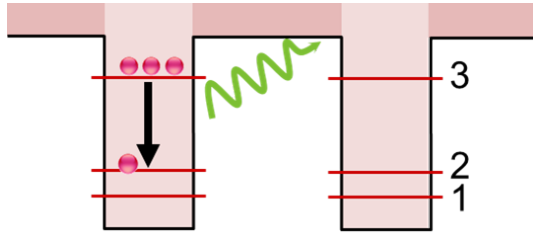


FIGURE I.7 – Schéma de fonctionnement d'un LCQ : alternance de puits quantiques et de barrières, transition intersous-bande permettant l'émission d'un photon de faible énergie.

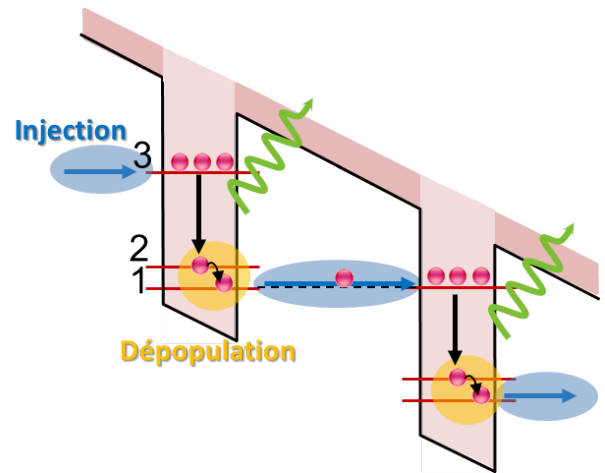


FIGURE I.8 – Schéma de fonctionnement d'un LCQ : sous application d'un champ électrique, la structure des puits/barrière s'aligne pour permettre la transition par effet tunnel.

En appliquant un champ électrique à la structure composée des puits quantiques, on assure le transport électronique et on favorise l'injection d'électrons (surlignée en bleu) dans l'état haut de la transition par effet tunnel résonant, comme présenté dans le schéma figure I.8. L'électron se désexcite vers l'état bas puis un processus non-radiatif permet de dépeupler l'état 2 vers l'état 1 (dépopulation surlignée en orange). On crée ainsi une inversion de population entre les états 3 et 2, nécessaire pour obtenir un effet laser. On détaillera les processus d'injection et de dépopulation contribuant à l'inversion de population dans la sous-partie suivante. La zone responsable de l'émission est répétée un grand nombre de fois. Cette structure périodique garantit un effet cascade, pour lequel un électron, passant d'une période à la suivante, peut être à l'origine de plusieurs photons. Tous les électrons présents dans les puits quantiques de la structure subissent ce même processus en même temps.

I.2.2 Inversion de population

Nous avons vu le fonctionnement schématique d'un LCQ dans la partie précédente. La structure d'un LCQ est en réalité bien plus complexe et les étapes d'injection et de dépopulation sont permises grâce à plusieurs puits quantiques.

Zone d'émission

La zone d'émission se compose en général de quelques puits couplés, dans lesquels sont confinés les états électroniques impliqués dans la transition laser. Celle-ci peut être verticale, les électrons impliqués dans la transition sont localisés dans les mêmes puits, ou bien diagonale dans l'espace réel, les états impliqués dans la transition se trouvent dans des puits voisins. Une telle transition est plus ajustable encore car chacun des états peut être adapté indépendamment. De plus, pour une transition diagonale, le temps de vie de l'état haut est allongé et donc l'inversion de population est plus importante. Cependant la force d'oscillateur, qui caractérise

le couplage quantique entre deux états, est plus faible pour une transition diagonale. Elle dépend principalement du recouvrement entre les fonctions d'onde des états concernés. Le gain de la transition entre deux sous-bandes électroniques i et j permet de comparer l'efficacité des différentes régions actives. Il s'exprime [19] :

$$g(\nu_0) \propto \frac{\Delta N \cdot f_{ij}}{\Delta \nu} \quad (\text{I.9})$$

où ΔN est l'inversion de population, $\Delta \nu$ est la largeur de la transition et f_{ij} est la force d'oscillateur. On peut voir grâce à cette formule que l'efficacité d'une transition est un compromis entre l'inversion de population (le temps de vie de l'état haut) et la force d'oscillateur (le recouvrement entre les niveaux).

Assurer l'inversion de population est un point crucial pour permettre l'effet laser. Pour cela, on injecte sélectivement des porteurs dans l'état haut de la transition grâce à un état électronique ou une minibande (ensemble d'états couplés sur plusieurs puits) présent dans le puits adjacent. L'état injecteur est ajusté en modifiant le champ électrique jusqu'à atteindre l'énergie de l'état haut. La structure est alors alignée et le transport par effet tunnel résonant de l'injecteur vers l'état haut peut avoir lieu sélectivement, à travers la barrière d'injection (5 à 10 fois plus épaisse que les autres barrières). Les couches servant d'injecteur sont dopées n par des atomes de silicium pendant la croissance. Pour maintenir l'inversion de population, il faut aussi extraire rapidement les électrons de l'état bas de la transition laser, il existe pour cela plusieurs dessins possibles de dépopulation que nous allons détailler.

Dépopulation des LCQ MIR

Le dessin de la première démonstration du LCQ [1] propose un mécanisme de dépopulation par émission de phonons optiques longitudinaux (LO-phonons). Ce mécanisme non-radiatif, très rapide (de l'ordre de 0.1 ps), permet de dépeupler efficacement l'état bas.

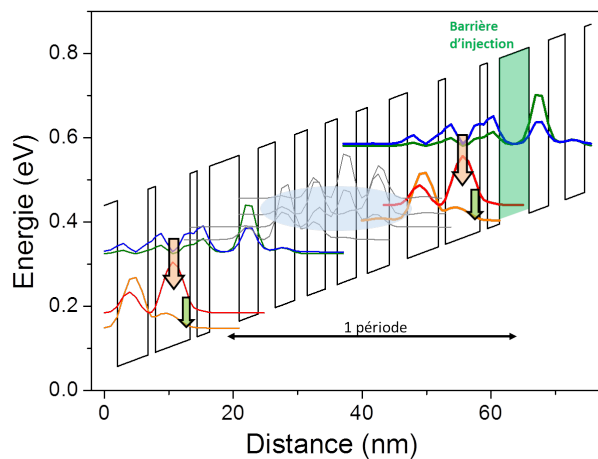


FIGURE I.9 – Exemple de dessin d'un LCQ MIR avec dépopulation par LO-phonon (flèche verte). L'état injecteur (vert) permet de peupler l'état haut (bleu). La transition (flèche orange) a lieu vers l'état rouge. Le transport est assuré grâce à une minibande, surlignée en bleu.

Pour cela le dessin est réalisé de sorte qu'il y ait une transition égale à l'énergie d'un LO-phonon entre l'état bas de la transition laser et un état de plus basse énergie. Après la dépopulation vers l'état inférieur, le transport est assuré par une minibande jusqu'à l'état injecteur de la période suivante. La figure I.9 présente un exemple d'un tel processus de dépopulation, pour le LCQ MIR basé sur GaAs étudié au chapitre IV, d'après [20].

Pour améliorer les performances des LCQ MIR et obtenir de fortes puissances émises en continu, un autre dessin a été développé. Ce dessin s'appuie sur l'association résonante de 2 LO-phonons pour dépeupler encore plus efficacement l'état bas de la transition. Ce dessin est présenté sur la figure I.10, d'après la structure de LCQ MIR basé sur InP qui sera étudiée au chapitre V, d'après [21].

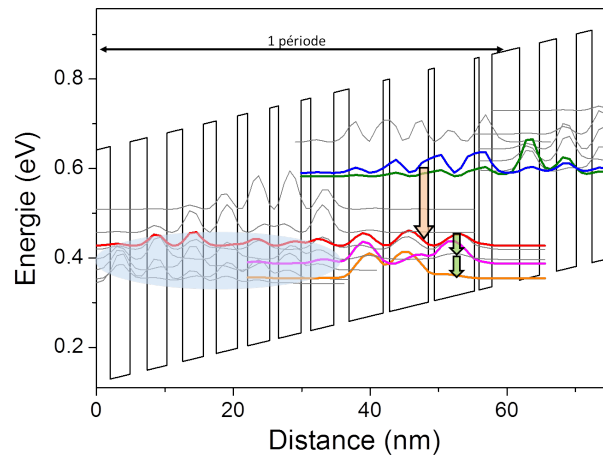


FIGURE I.10 – Exemple de dessin avec dépopulation en résonance avec 2 LO-phonons (flèches vertes). L'état injecteur (vert) permet de peupler l'état haut (bleu). La transition (flèche orange) a lieu vers l'état rouge. Le transport est assuré grâce à une minibande, surlignée en bleu.

L'état bas (rouge) est dépeuplé vers un état inférieur (rose) séparé de l'énergie du phonon. La structure est construite de manière à ce qu'un deuxième état inférieur (orange) soit séparé du premier par l'énergie du phonon, permettant de dépeupler le premier état (rose) pour maintenir une extraction efficace de l'état bas vers le premier niveau inférieur.

Il existe d'autres types de dépopulation comme le type "bound-to-continuum" où l'état bas se dépeuple par effet tunnel vers une minibande. On ne le détaille pas ici car il n'est pas employé dans les structures des LCQ étudiés dans cette thèse.

Dépopulation des LCQ THz

Il existe plusieurs mécanismes de dépopulation pour les LCQ THz. Le mécanisme de dépopulation par émission de LO-phonon a également été mis en place pour les LCQ THz et a permis d'obtenir de bonnes performances en puissance et en température. Le fonctionnement est analogue au mécanisme décrit pour les LCQ MIR, l'état bas se dépeuple de manière résonante vers un état de plus basse énergie, séparé par l'énergie d'un LO-phonon. La dépopulation de type "bound-to-continuum" est également utilisée pour les LCQ THz.

Le dessin présenté sur la figure I.11, d'après la structure de [22], est la structure du LCQ basé sur GaAs qui sera étudié au chapitre VI. Il s'agit d'une structure hybride entre un mécanisme "bound-to-continuum" (dépopulation par effet tunnel de l'état rouge vers l'état violet) et un mécanisme LO-phonon, entre l'état violet et l'état orange. Les structures de ces LCQ sont composées de peu de puits quantiques mais nécessitent un fort champ électrique pour aligner les états sur l'énergie du phonon.

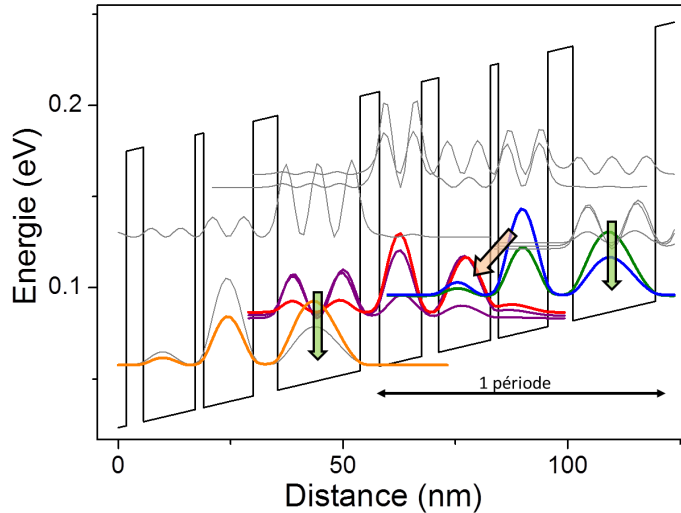


FIGURE I.11 – Exemple de dessin d'un LCQ THz avec dépopulation hybride "bound-to-continuum" et LO-phonon. L'état injecteur représenté en vert permet de peupler l'état haut (bleu). La transition a lieu vers l'état rouge. La dépopulation est assurée couplage tunnel vers les états violet puis l'émission d'un phonon (flèche verte) vers l'état orange qui est l'injecteur de la période suivante.

Nous avons vu différents éléments d'ingénierie quantique : l'ajustement de l'émission, l'injection de porteurs, le transport des électrons et le maintien de l'inversion de population par divers mécanismes de dépopulation. Le contrôle précis et subtil de ces différents points est crucial pour obtenir l'émission d'un LCQ. Pour cela, la résolution numérique de l'équation de Schrödinger dans le potentiel constitué des puits et barrières de la structure est d'une grande aide. L'étape de croissance parfaitement contrôlée des couches très fines de semiconducteur sur de nombreuses périodes est aussi cruciale que le dessin pour les performances d'un LCQ.

La zone active est bien sûr le cœur d'un laser à cascade quantique mais ce dernier ne pourrait pas émettre de façon efficace sans un guide d'ondes permettant de confiner une grande partie des photons dans la cavité.

I.3 Guides d'ondes pour un LCQ

Nous avons vu dans la partie précédente comment le rayonnement THz ou MIR était émis à partir des couches nanométriques de semiconducteur. Pour garantir le fonctionnement comme laser de ce dispositif, il faut un guide d'ondes efficace pour confiner le champ dans la cavité. On pourra ainsi assurer un bon recouvrement entre les modes de la cavité et la région active du LCQ (le milieu à gain). Nous verrons plus en détails dans la partie suivante la géométrie en ruban de la cavité Fabry-Perot d'un LCQ. Le schéma figure I.12 en donne un aperçu. Le mode généré dans la zone active est confiné latéralement et longitudinalement

par contraste d'indice entre le semiconducteur et l'air mais le confinement vertical doit être assuré à l'aide d'un guide d'ondes adapté.

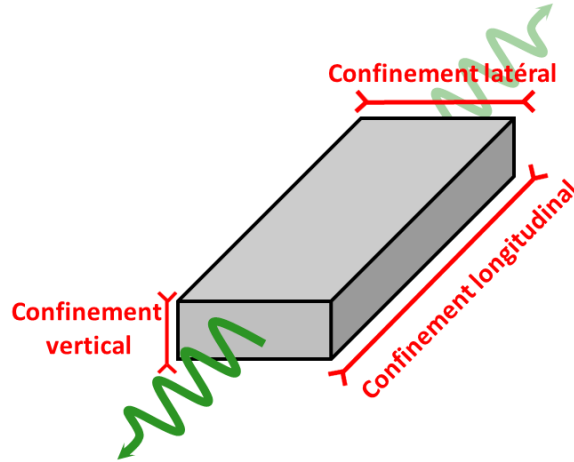


FIGURE I.12 – LCQ en forme de ruban. Le confinement latéral et longitudinal est garanti par contraste d'indice, le guide d'ondes garantit le confinement vertical.

Le rôle d'un guide d'ondes est de garantir un bon recouvrement des modes avec la région active tout en permettant la propagation des photons le long de la cavité avec le moins de pertes possible. Il a donc un rôle déterminant sur le courant seuil du dispositif. La qualité d'un guide se caractérise par le recouvrement entre les modes de la cavité et la région active (nommé Γ) et les pertes du guide (pertes intrinsèques α_g et pertes par les extrémités de la cavité (par les miroirs) α_m , en cm^{-1}). La densité de courant au seuil est reliée au gain du laser (nommé g , en $cm.A^{-1}$) et à ces paramètres par la relation suivante :

$$J_{seuil} = \frac{\alpha_g + \alpha_m}{g\Gamma}$$

Les pertes par les miroirs α_m sont nécessaires pour assurer une puissance émise en dehors de la cavité. On peut les considérer équivalentes quel que soit le LCQ (sauf cas particulier du guide double-métal) car le coefficient de réflectivité de l'interface air-semiconducteur est sensiblement le même (≈ 0.3). Pour comparer la qualité des guides, on définit le facteur de mérite ξ tel que : $\xi = \frac{\Gamma}{\alpha_g}$.

On s'intéresse maintenant aux guides d'ondes spécifiques pour le confinement vertical du mode MIR et du mode THz dans la cavité d'un LCQ.

I.3.1 Guides d'ondes des LCQ MIR

Pour les LCQ MIR, les longueurs d'onde impliquées sont de l'ordre de 10 μm , il est donc possible de confiner le champ MIR dans la zone active par simple guidage diélectrique. On juxtapose de part et d'autre de la zone active des couches de semiconducteur dont l'indice dans le MIR est plus faible que celui de la zone active. On obtient ainsi un contraste d'indice suffisant entre la zone active et les couches de guide, permettant de confiner le mode MIR en majeure partie dans la zone active.

Il est possible de simuler le confinement du champ MIR dans la structure. Ces simulations peuvent être menées en 2 dimensions (axe de croissance et largeur du ruban) à l'aide de COMSOL, ou en 1D selon l'axe vertical (axe de croissance) grâce à des calculs des modes du champ sous MATLAB. Dans ce deuxième cas, on peut supposer les directions, autres que l'axe de croissance, comme infinies. Ces codes existant, sont basés sur la méthode des matrices de transfert [23]. Pour prendre en compte l'absorption par porteurs libres, on considère un indice complexe, modifié par modèle de Drude. La région active est modélisée par une couche unique dont la composition en aluminium et le dopage sont moyennés sur l'ensemble des couches nanométriques qui la composent.

Pour les LCQ MIR dont la région active est composée de couches InGaAs/AlInAs, le

guidage diélectrique est habituellement assuré par des couches d'InP dopées (accord de maille sur InGaAs) dont l'indice est plus faible que la zone active. De fines couches d'InGaAs dopées encadrent généralement la zone active. Elles augmentent le contraste d'indice entre la zone active et les couches d'InP, et sont très utiles pour le transfert de la zone active vers un autre substrat lors de croissance en plusieurs étapes. Une simulation 1D d'un guide classique pour ces dispositifs est présentée figure I.13. Ce guide présente une fine épaisseur de couches InGaAs dopées à $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, près de la zone active, puis une épaisseur de couches InP dopées à $5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Enfin une fine couche supplémentaire d'InP dopée à $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ sert de connexion ohmique. Dans ce guide classique, le recouvrement est de 63 % et les pertes sont de 6 cm^{-1} , donnant un facteur de mérite $\xi = 10.5$.

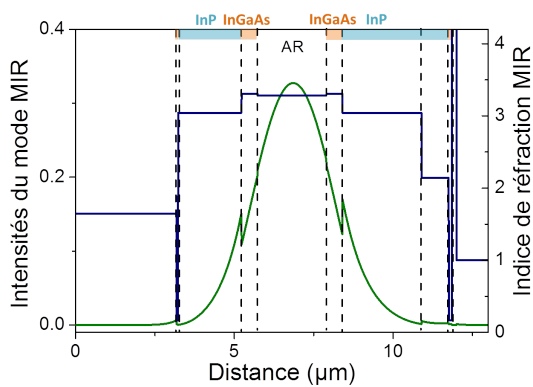


FIGURE I.13 – Simulation 1D du guidage diélectrique habituel du champ MIR dans un LCQ basé sur InP. Axe de gauche : Intensité du mode MIR. Axe de droite : Indice de réfraction MIR.

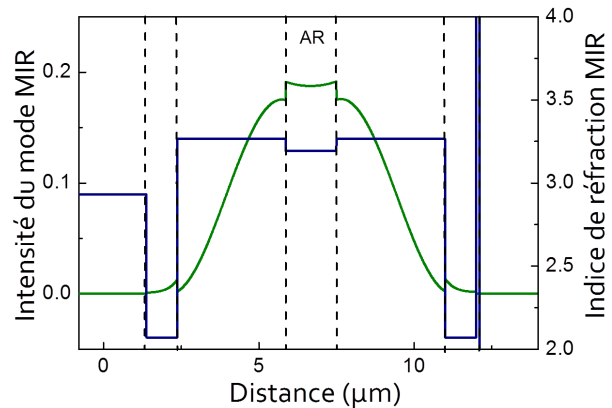


FIGURE I.14 – Simulation 1D du guidage diélectrique habituel du champ MIR dans un LCQ basé sur GaAs. Axe de gauche : Intensité du mode MIR. Axe de droite : Indice de réfraction MIR.

Pour les LCQ MIR dont la région active est composée de couches GaAs/AlGaAs, le guidage diélectrique est plus difficile à obtenir car l'indice de la zone active est particulièrement bas à cause des couches de AlGaAs. Contrairement aux LCQ basés sur InP, le substrat de GaAs ne peut pas servir à confiner le mode dans la zone active. Une solution typique est d'assurer le guidage par "renforcement par plasmon" dans des couches de GaAs extrêmement dopées, permettant une bonne dissipation thermique. Pour éviter des pertes par absorption et conserver un bon recouvrement entre le mode MIR et la zone active, on intercale des couches tampon de GaAs moins dopées entre la zone active et la couche servant au plasmon. La forte variation de dopage dans les couches de GaAs implique un fort contraste d'indice pour la fréquence plasmon. Une simulation 1D d'un guide classique pour ces dispositifs est présentée figure I.14. Les couches tampon de GaAs sont dopées à $8 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ et les couches externes à $6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Dans ce guide classique, le recouvrement est de 35 %, bien plus faible que dans l'exemple précédent et les pertes sont de 13.4 cm^{-1} , donnant un facteur de mérite $\xi = 2.6$, plus faible que pour les LCQ basés sur InP.

Dans la suite du manuscrit, nous verrons que ces guides peuvent être adaptés selon les besoins des expériences.

I.3.2 Guides d'ondes des LCQ THz

Contrairement aux guides d'ondes des LCQ MIR, le confinement vertical du champ THz dans la cavité ne peut être réalisé par guidage diélectrique (contraste d'indices). En effet, pour ce type de guidage, 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 des couches aussi épaisses par épitaxie.

La solution qui a été trouvée et qui a permis de réaliser les premiers LCQ THz [2] est la propagation du THz par plasmon de surface formé entre le plan métallique supérieur et la zone active. Les plasmons de surface sont des solutions particulières des équations de Maxwell qui apparaissent à une interface entre deux matériaux dont les parties réelles des constantes diélectriques sont de signes opposés. Dans un LCQ THz, le plasmon est une onde évanescente de part et d'autre de l'interface métal/zone active. L'épaisseur de peau de cette onde évanescente est très faible dans le métal en raison d'une très forte absorption mais suffisamment grande dans les couches de semiconducteurs pour recouvrir toute la région active. On distingue deux types de guides plasmoniques pour les LCQ THz : le guide simple-plasmon et le guide double-métal. Ces guides peuvent être mis en place sur des LCQ de zone active GaAs/AlGaAs ou de zone active InGaAs/AlInAs. Dans cette thèse, on présentera des expériences utilisant des LCQ THz avec ces deux couples de matériaux mais dans les deux cas, les LCQ seront dotés de guides double-métal.

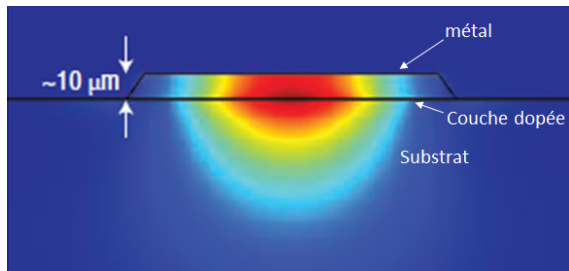


FIGURE I.15 – Simulation en 2D du champ THz confiné dans une cavité à guide simple-plasmon. Figure issue de [19].



FIGURE I.16 – Simulation en 2D du champ THz confiné dans une cavité à guide double-métal. Figure issue de [19].

Les guides simple-plasmon consistent à confiner le champ THz entre d'un côté la couche métallique supérieure par plasmon de surface et de l'autre une couche mince fortement dopée située entre la région active et le substrat. La couche dopée confine en partie le mode THz pour garantir un bon recouvrement spatial avec la zone active mais le mode THz s'étale tout de même dans le substrat. Une simulation 2D du mode THz dans une cavité dotée d'un guide simple-plasmon est présentée figure I.15. On voit bien le mode THz être en partie confiné et en partie s'étaler dans le substrat à travers la couche dopée.

Les guides double-métal sont constitués de deux couches métalliques situées de part et d'autre de la zone active. Le confinement du mode THz dans la cavité est quasiment total, comme on peut le voir dans la simulation 2D du mode THz sur la figure I.16, ce qui permet d'atteindre de meilleures performances en température. L'inconvénient de ce type de guides est la forte désadaptation d'impédance qui en résulte entre la zone active et l'air libre. Le mode THz est confiné dans une épaisseur de 10 μm , bien plus faible que sa longueur d'ondes, conduisant à des effets de forte diffraction. Les champs lointains observés sont bien plus divergents et diffractés dans ce cas.

I.4 Géométrie et fabrication des LCQ

Nous allons détailler dans cette partie comment la croissance de la zone active et des guides s'intègrent au dispositif pour conduire à une émission efficace du THz et du MIR.

I.4.1 Géométrie des LCQ

La figure I.17 présente de façon schématique la géométrie typique d'un LCQ muni d'une cavité de type Fabry-Pérot. Le processus de fabrication de ces rubans sera détaillé dans la partie I.4.3. L'épaisseur totale des structures est toujours de l'ordre de la dizaine de microns pour les LCQ THz et les LCQ MIR. La longueur de la structure est différente d'un échantillon à l'autre, variant de 1 mm à 5 mm. Une augmentation de la longueur de l'échantillon permet une augmentation de la puissance émise car le gain sera plus important pour un milieu amplificateur plus long. Cependant, une augmentation de la longueur contribue à augmenter également le courant de seuil, courant nécessaire pour obtenir l'effet laser. La densité de courant de seuil est reliée au gain du laser (nommé g , en $cm.A^{-1}$) par la relation suivante :

$$J_{seuil} = \frac{\alpha}{g\Gamma}$$

avec Γ le recouvrement entre les modes de la cavité et la région active et α les pertes du guide d'onde du LCQ. On détaillera l'origine des pertes à la fin de ce paragraphe.

La longueur adaptée pour un LCQ est un compromis entre une bonne puissance émise et un courant de seuil "raisonnable". La largeur du dispositif est très différente entre les LCQ THz et MIR. Les LCQ THz ont différentes largeurs de rubans allant de quelques dizaines à une centaine de microns. La largeur des LCQ MIR quant à eux, est limitée à une dizaine de microns maximum pour éviter l'apparition de modes latéraux. Nous verrons dans la partie I.4.3 que le processus de fabrication est de ce fait très différent pour les deux types de LCQ. L'injection électrique est permise grâce à une fine couche fortement dopée ($\sim 1e18 cm^{-3}$) qui assure la connexion ohmique puis un dépôt métallique sur le dessus de la croissance épitaxiée.

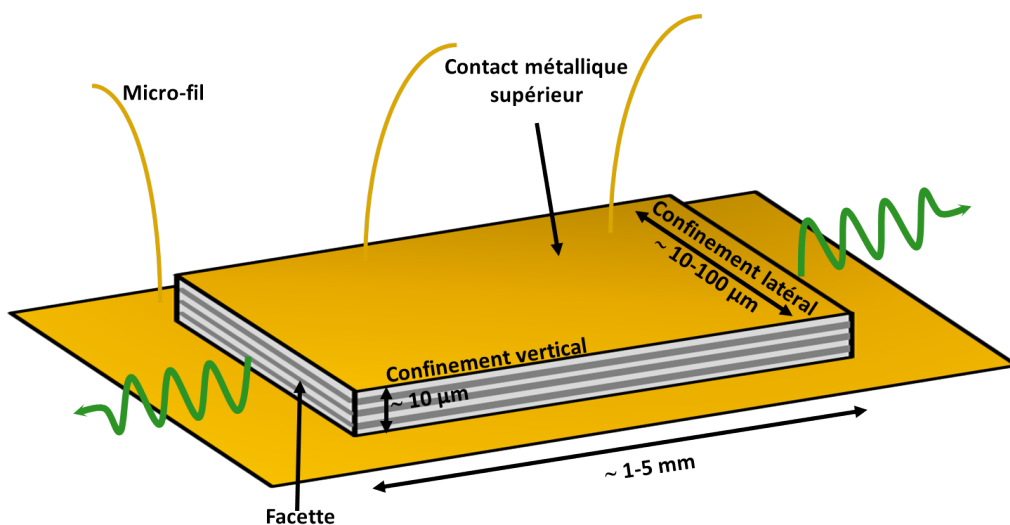


FIGURE I.17 – Schéma d'un LCQ à géométrie Fabry-Pérot. La région active est représentée par les couches grises, matérialisant les couches de semiconducteurs.

Les rubans ainsi formés sont ensuite divisés ("clivés") à la longueur désirée. Les interfaces air/semiconducteur forment les miroirs de la cavité Fabry-Pérot, on les appelle facettes. La formation de ces facettes par "clivage" conduit à une bonne qualité de la surface du miroir, ce qui permet à la puissance d'être émise de manière identique par chacune des facettes, aux extrémités du LCQ. Les coefficients de réflexion à ces interfaces sont de l'ordre de 0.3 pour le THz comme pour le MIR (malgré une certaine dépendance selon le guide d'ondes). Il est possible d'augmenter ou de diminuer ce coefficient par revêtement pour obtenir des dispositifs émettant par une seule facette. La puissance est alors émise en totalité par cette facette et non séparée entre les deux extrémités. Dans cette thèse, les facettes ne sont pas traitées et le rayonnement du LCQ peut émaner de chacune des facettes.

Les pertes optiques α jouent un rôle décisif dans le bon fonctionnement du LCQ. Comme pour les lasers traditionnels, le seuil auquel le LCQ émet de la puissance est atteint lorsque le gain est égal aux pertes. On distingue deux types de pertes : les pertes par les facettes α_m et les pertes par absorption par les porteurs libres α_g .

Les pertes par les facettes sont nécessaires pour permettre l'extraction de la puissance vers le milieu extérieur. Une bonne approximation de ces pertes est :

$$\alpha_m = \frac{1}{2L} \ln \left(\frac{1}{R_1 R_2} \right)$$

où L est la longueur de la cavité et R_1 et R_2 sont les réflectivités des facettes, définies par le contraste d'indice entre l'air et le semiconducteur : $R = \frac{(n_1 - n_2)^2}{(n_1 + n_2)^2}$. Cette expression est valable pour les LCQ MIR et les LCQ THz à guide simple-plasmon mais elle doit être affinée pour les LCQ THz à guide double-métal, dans lesquels la réflectivité doit être traitée comme une désadaptation d'impédance.

Dans un LCQ, les pertes sont dominées par l'absorption par les porteurs libres. Ces pertes s'expriment sous la forme :

$$\alpha_g = \frac{4\pi \text{Im}(n)}{\lambda}$$

où λ est la longueur d'onde d'émission du LCQ et n l'indice de réfraction complexe du semiconducteur. Ce dernier peut être décrit à l'aide du modèle de Drude pour des couches dopées, à partir des constantes du matériau.

L'étape de croissance bien contrôlée des couches de semiconducteur est une étape cruciale pour les performances d'un LCQ. C'est d'ailleurs grâce aux améliorations technologiques des techniques de croissance que les premiers LCQ ont pu voir le jour.

1.4.2 Croissance des couches nanométriques

L'épitaxie par jet moléculaire (Molecular Beam Epitaxy, MBE, en anglais) est une technique séquentielle de dépôt de fines couches de grande qualité cristalline. Elle a été initialement développée par A.Y. Cho et J. R. Arthur dans les laboratoires Bell dans les années 70 [18]. Dans un bâti d'épitaxie par jet moléculaire, les sources solides telles que le gallium ou l'arsenic, sont chauffées dans des cellules séparées puis sublimées en jet contrôlés. Quand les éléments gazeux atteignent la surface du substrat cristallin, ils se condensent et peuvent interagir ensemble pour former une couche épitaxiée cristalline. Le vide poussé permet d'obtenir le meilleur niveau de pureté. Le contrôle fin des jets permet d'atteindre une grande précision sur l'épaisseur des couches, leur dopage et leur composition. Des mesures sensibles in-situ permettent un suivi en temps réel de la croissance. Cette technique est cependant lente (0.5 μm

par heure), coûteuse et très sophistiquée, ce qui la rend moins accessible pour des productions plus massives de LCQ.

A la différence de l'épithaxie par jet moléculaire, l'épithaxie en phase vapeur aux organométalliques (Metal-Organic Chemical Vapor Deposition, MOCVD, en anglais) est basée sur des réactions chimiques et non sur un dépôt physique. La première croissance de région active d'un LCQ par MOCVD est plus récente et date de 2003 [24]. La croissance épithaxiée est initialisée en introduisant des quantités contrôlées de précurseurs d'organométalliques (groupe III) et d'hydrides (groupe V), portés par un gaz (H_2 ou N_2) dans la chambre de réaction. La décomposition des espèces introduites sur le substrat chauffé libère les éléments III et V et les espèces dopantes, initialisant la croissance cristalline. Aujourd'hui, grâce aux progrès constants, les LCQ dont la croissance a été faite par MOCVD ont des performances comparables aux LCQ de croissance par MBE [25]. Cette technique présente de plus un taux de dépôt de 1 μm par heure, plus rapide que la MBE et nul besoin de vide ultra poussé. On peut ainsi croître une structure complète pour les dérivés du phosphore en une seule étape lorsqu'il faut un transfert entre la croissance de la zone active et celle des guides par MBE. Cependant, sans réel contrôle in-situ des conditions de croissance, il est difficile d'optimiser les systèmes de MOCVD. Dans ces conditions, on peut également craindre un dopage résiduel ainsi que des interfaces moins abruptes qu'en croissance MBE.

Pour les LCQ MIR, la zone active est composée d'une quarantaine de périodes, pour une épaisseur totale de 2 μm . La croissance des couches de guides (directe ou après transfert) conduit à une épaisseur totale de l'ordre de 10 μm . Pour les LCQ THz, le mode THz serait trop large pour une zone active de 2 μm d'épaisseur, la croissance de cette dernière est donc plus épaisse pour atteindre une épaisseur totale de l'ordre de 10 μm .

1.4.3 Processus de fabrication des rubans et montage

Dans cette sous-partie, nous allons détailler rapidement les principales étapes de process. Pour plus d'informations, on pourra se référer à [26].

A partir d'une plaque de la croissance épithaxiée (zone active et éventuelles couches de guide), il faut fabriquer la forme de ruban de la cavité Fabry-Pérot. Pour cela, on commence par réaliser un masque qui nous permettra de faire une lithographie pour préserver la forme du ruban au moment de la gravure. Il existe deux possibilités : la gravure humide qui donne des flans latéraux obliques et la gravure sèche qui permet d'obtenir des rubans plus étroits, avec des flans droits.

Pour les LCQ THz, les rubans font quelques dizaines à une centaine de microns de large. Pour les guides simple-plasmon, on fait une seconde lithographie pour assurer un dépôt d'or uniquement sur la surface supérieure du ruban et sur les côtés pour le contact de la masse. Des couches de contacts recuits permettent une meilleure accroche de l'or. On peut alors connecter le microfil sur la surface du LCQ car la largeur est suffisante. Pour les LCQ THz dotés de guide double métal, une première couche d'or est déposée sur l'ensemble de la croissance puis celle-ci est "retournée" sur un nouveau substrat (la partie supérieure passe en dessous). On grave alors sélectivement le précédent substrat puis la forme de ruban. Le dépôt d'or se fait ensuite de la même manière que pour les guides simple-plasmon.

Pour les LCQ MIR, comme ceux-ci ne font que 10 μm de large, la connexion du microfil (environ 25 μm de large), directement sur la surface supérieure est difficile sans risquer de sérieux dommages sur la croissance. On réalise une première lithographie qui protège une partie de la surface supérieure du ruban. On dépose ensuite une couche d'isolant (SiN ou

SiO₂) puis on grave (par gravure sèche) une ouverture dans le SiN sur la surface supérieure du LCQ. Le SiN ne recouvre donc que les bords du ruban et une très petite partie de la surface supérieure, comme indiqué en vert sur la figure I.18. On peut ensuite déposer une couche d'or qui assure le contact avec la partie supérieure du LCQ. On peut ainsi, comme indiqué sur le schéma I.18, connecter le microfil à côté du ruban, sans risquer des dommages sur celui-ci. La couche d'or qui permet le contact peut être renforcée par une couche plus épaisse (quelques microns) d'or électrolytique qui permet une meilleure dissipation thermique et garantit de meilleures performances en température pour le LCQ [27].

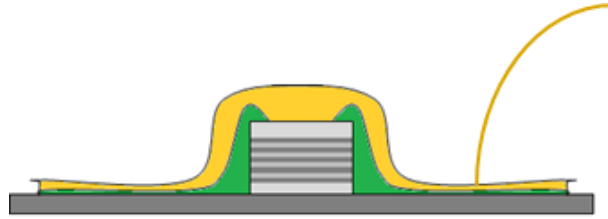


FIGURE I.18 – Schéma du processus de fabrication des rubans très étroits pour les LCQ MIR. La croissance est représentée par des couches de gris successifs. La couche d'isolant (SiN ou SiO₂) est représentée en vert et la couche d'or en jaune.

Un fois les rubans de LCQ fabriqués, il nous reste à les cliver à la longueur voulue grâce à une pointe de diamant. On monte ensuite les LCQ (souvent 3 à 5 sur une même plaque) sur une embase de cuivre, à l'aide d'indium chauffé jusqu'à son point de fusion puis refroidi. L'indium assure un bon contact thermique avec le doigt froid du cryostat ainsi qu'un bon contact électrique. On colle sur l'embase deux plots en céramique recouverts d'or. Les contacts métalliques de l'échantillon permettant de polariser le LCQ, sont connectés à ces plots par micro-soudure aux ultrasons. Ces plots macroscopiques sont plus faciles à connecter ensuite aux fils du cryostat pour assurer l'alimentation électrique. Un schéma de l'embase est représenté figure I.19. L'embase est ensuite fixée sur le doigt froid d'un cryostat à flux continu (hélium ou azote selon les températures souhaitées). On renforcera le contact thermique entre le doigt froid et l'embase grâce à une feuille d'indium ou à de la pâte thermique.

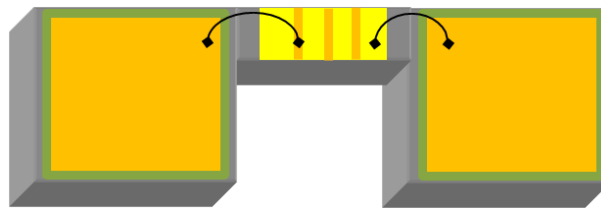


FIGURE I.19 – Schéma d'une embase en cuivre avec deux plots en céramique recouverts d'or et un échantillon avec 3 LCQ. Un microfil connecte un LCQ au plot de céramique de gauche et un autre connecte la masse à celui de droite.

Cette thèse s'appuie sur des collaborations très fortes. La croissance des LCQ dont la zone active se compose de couches GaAs/AlGaAs (THz et MIR), a été réalisée par épitaxie par jet moléculaire chez nos collaborateurs de l'université de Leeds en Angleterre, Lianhe Li, Edmund Lindfield et Giles Davies. La croissance des LCQ MIR dont la zone active est composée de couches InGaAs/AlInAs, a été réalisée par MOCVD chez nos collaborateurs du Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN) à Marcoussis en France, Isabelle Sagnes et Grégoire

Beaudoin. Enfin, la croissance du LCQ THz de zone active InGaAs/AlInAs a été réalisée par MBE à Thalès, par Olivier Parillaud.

Les processus de fabrication décrits ci-dessus ont été réalisés pour les LCQ MIR chez nos collaborateurs au laboratoire Matériaux et Phénomènes Quantiques de Paris 7, Margaux Renaudat Saint-Jean, Zahra Asghari, Alireza Mottaghizadeh, Maria Amanti et Carlo Sirtori. La fabrication des LCQ THz, a été réalisée à l'Institut d'électronique fondamentale, à Orsay, par l'équipe de Raffaele Colombelli.

1.5 État de l'art des différents LCQ

Depuis plus de 20 ans pour les LCQ MIR et près de 15 ans pour les LCQ THz, les lasers à cascade quantique se sont développés, leurs performances se sont améliorées et leur fonctionnement, leurs guides, leurs matériaux et même leur géométrie ont évolué. On présentera dans cette partie un certain nombre de références pour donner une vision globale et des ordres de grandeur caractéristiques des LCQ. On s'appuiera pour cela sur la récente revue sur les lasers à cascade quantique de Miriam Vitiello et al. [28]. La figure I.20 résume les températures maximales de fonctionnement des différentes réalisations de LCQ pour la gamme de 2 μm à 300 μm , on distingue les fonctionnements en continu, en pulsé ou assisté par champ magnétique.

En principe, les LCQ peuvent être réalisés à partir de puits quantiques de n'importe quel système de matériaux semiconducteurs. Cependant, les meilleures performances ont été obtenues en utilisant l'un des 4 systèmes de matériaux suivants : InGaAs/AlInAs sur InP [29], GaAs/AlGaAs sur GaAs [30], AlSb/InAs sur InAs [31], InGaAs/AlInAsSb, InGaAs/GaAsSb ou InGaAs/AlInGaAs sur InP (par exemple [32]). Le gain est influencé par la masse effective des électrons et l'émission pour de très courtes longueurs d'onde est limitée par le contraste de la bande de conduction $\Delta E_{conduction}$.

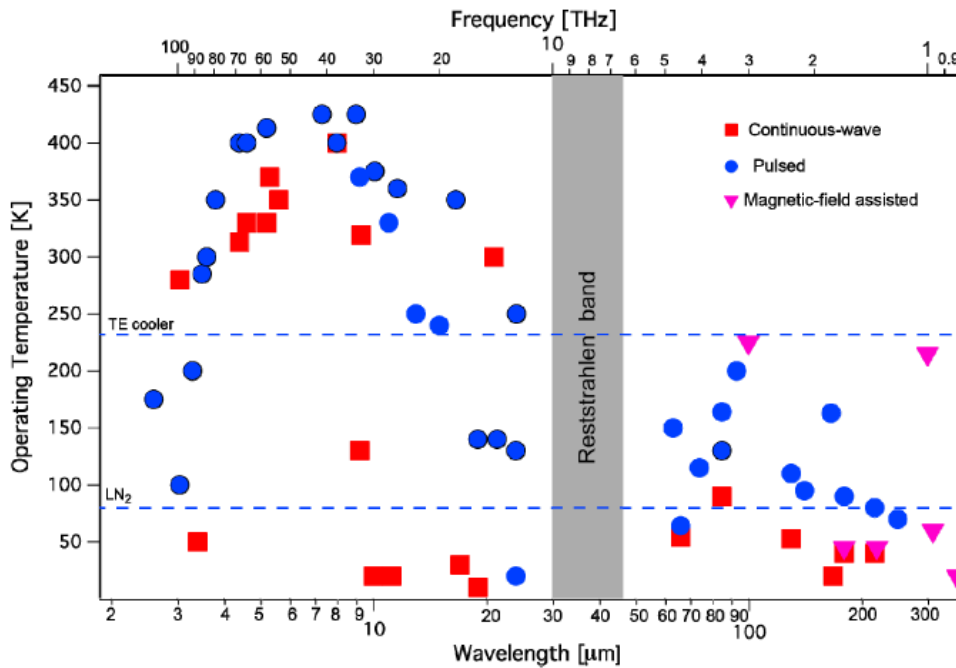


FIGURE I.20 – Résumé des températures maximales d'opération des LCQ en fonction de la longueur d'onde d'émission.

Depuis deux décennies, les LCQ MIR ont atteint des niveaux de performances impressionnants. Ils sont maintenant commercialisés par plusieurs entreprises et intéressent de nombreux industriels pour des applications. Le fonctionnement en continu à température ambiante a été obtenu il y a plus de 10 ans [33] mais les performances se sont encore améliorées avec une puissance émise de 5 W en continu à température ambiante [34]. Ces LCQ peuvent avoir un mode très fin accordable ou au contraire être très large bande. Récemment, des peignes de fréquences dans le MIR ont d'ailleurs été démontrés [35]. De nouvelles géométries telles que les cavités en anneau émettant par la surface [36] ou de nouveaux guides basés sur les DFB se sont développés et sont très prometteurs pour des applications à la spectrométrie et des applications "sur puce".

Les LCQ THz ont connu un développement plus récent, depuis leur première démonstration en 2002 [2]. Il a été montré récemment qu'ils pouvaient émettre jusqu'à 1 W de puissance [37]. La grande limite des LCQ THz reste leur température d'opération, toujours limitée à 200 K en mode pulsé [38] et 130 K en mode continu [39]. Une autre limite des LCQ THz est la divergence du champ en sortie du laser. En effet, à cause d'une forte désadaptation d'impédance, particulièrement avec les guides double-métal, le champ en sortie est très diffracté et divergent. Pour cela de nombreuses techniques ont été proposées, reposant par exemple sur des antennes métalliques (différentes approches) ou des lentilles en silicone [40] pour améliorer la convergence en champ lointain. De nouvelles cavités s'inspirant des cristaux photoniques se sont également développées, du type DFB ou GPH [41], aboutissant à un meilleur champ lointain ou une émission par la surface. Les zones actives elles-mêmes ont évolué et une récente publication fait état d'une émission très large bande (plus de 1 THz) grâce à la combinaison de différentes zones actives au sein d'une même croissance [42]. Aujourd'hui, il est également possible de générer des impulsions THz de quelques picosecondes grâce à des LCQ THz bloqués en mode [43]. Enfin il est à noter qu'une nouvelle approche a été proposée pour émettre du THz à température ambiante grâce aux LCQ en s'appuyant sur des processus non-linéaires [44]. Deux fréquences distinctes sont émises au sein d'un même LCQ MIR puissant. Par effet non-linéaire, la différence de ces deux fréquences, qui se trouve dans le THz, est générée à température ambiante.

Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre le fonctionnement des lasers à cascade quantique. Ces dispositifs reposent sur une transition intersousbande, dans laquelle on maintient une inversion de population, contrôlée grâce à l'ingénierie quantique des puits et barrières. Des guides d'ondes et une géométrie particulière, adaptés à l'émission THz et MIR, font qu'aujourd'hui les LCQ sont des sources THz et MIR compactes et puissantes, idéales pour la réalisation d'expériences d'optique non-linéaire dans cette gamme.

CHAPITRE II

OPTIQUE NON-LINÉAIRE RÉSONANTE

Ce chapitre aborde les différents points théoriques nécessaires à la compréhension des expériences d'optique non-linéaire qui seront présentées dans la suite de ce manuscrit. On s'intéresse tout d'abord à l'optique non-linéaire classique et plus particulièrement à la génération de la différence de fréquences. On verra le rôle de l'absorption et du désaccord de phase sur le mélange de fréquences non-linéaire. Dans un second temps, on abordera le mélange d'ondes comme phénomène quantique et nous mettrons en évidence le phénomène d'optique non-linéaire résonante. Nous verrons que dans le cas appliqué aux LCQ, il faut intervenir des transitions interbandes et intersousbandes. J'ai participé au développement du cadre théorique global permettant de calculer la susceptibilité non-linéaire pour le mélange de fréquences dans les LCQ. On présentera enfin les conditions de calcul et les premières simulations de $\chi^{(2)}$ dans le cas de mélange d'ondes NIR-THz et NIR-MIR, cas qui seront étudiés expérimentalement par la suite.

Introduction

Depuis la découverte du laser en 1960 [45], les domaines de recherche liés à l'optique ont connu un développement et une diversité très importants. De nouveaux phénomènes ont été mis en évidence grâce à cette source puissante et cohérente. On ne peut lister toutes les applications utilisant les lasers tant ces derniers font aujourd'hui partie intégrante de notre quotidien. Nous allons nous concentrer ici sur le développement du domaine de l'optique non-linéaire. Ce terme très large désigne un certain nombre de phénomènes qui ont lieu lorsqu'un faisceau, interagissant avec la matière, induit une polarisation non-proportionnelle au champ incident. Cette interaction lumière-matière particulière permet notamment la génération de faisceaux dont la fréquence est une combinaison des fréquences incidentes. La première démonstration d'expériences d'optique non-linéaire a été obtenue très rapidement après la découverte du laser. En 1961, Franken et al. ont montré pour la première fois la génération d'un faisceau de fréquence doublée, on parle de second harmonique, après interaction d'un faisceau à 694 nm, avec un cristal de quartz [46]. Depuis, les phénomènes mis en évidence sont nombreux, tels que la génération de la somme et de la différence de fréquences ou la rectification optique qui sont aujourd'hui à leur tour utilisés pour des applications (laser monochromatique accordable OPO, pointeurs laser, génération/détection de THz...). Le développement des impulsions ultra-brèves a également permis la découverte de nouveaux phénomènes non-linéaires car la puissance est extrêmement concentrée dans une impulsion très courte. C'est le cas de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, examinée dans les années 90 [47], [48]. Nous reviendrons plus en détails sur ce phénomène dans les perspectives.

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser aux processus non-linéaires permettant la génération de la somme et de la différence de fréquences. On peut distinguer deux configurations pour ces expériences : un premier cas où les énergies des faisceaux sont non-résonantes et un second cas où les énergies des faisceaux impliqués sont en résonance avec des transitions propres du milieu d'interaction. Dans le cas d'une excitation hors résonance, pour qu'un processus non-linéaire soit efficace, il faut des puissances lumineuses et des longueurs d'interaction importantes ainsi que des matériaux bien précis présentant une forte susceptibilité non-linéaire. Cette dernière peut être très différente selon l'axe du cristal considéré. De plus, il est crucial dans ce cas que les faisceaux se propagent avec le minimum de pertes et que les conditions d'accord de phase soient remplies. Les premières démonstrations de processus non-linéaires ont été réalisées dans des conditions hors résonance à l'aide de matériaux intrinsèquement non-linéaires tel que le quartz ou le BBO (borate de baryum). Grâce à la biréfringence, propagation anisotrope de la lumière selon sa polarisation, dans ces milieux diélectriques, il est possible de réaliser l'accord de phase. On reviendra sur ces conditions dans le paragraphe II.1.3.

Lorsque l'énergie des faisceaux d'excitation est résonante avec des transitions particulières de la matière, l'interaction lumière-matière est plus forte. Il est possible dans ces conditions d'exalter la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2, $\chi^{(2)}$, la grandeur qui caractérise la polarisation non-linéaire à cet ordre. Ces effets non-linéaires peuvent être d'autant plus exaltés dans des puits quantiques asymétriques de semiconducteurs. Dans de tels systèmes et en présence à la fois d'un champ NIR et d'un champ THz, on peut exploiter non seulement les résonances interbandes mais aussi les résonances intersousbandes, pour obtenir des non-linéarités géantes.

On s'intéresse dans ce manuscrit à l'interaction non-linéaire d'un faisceau NIR et d'un faisceau THz-MIR issu d'un LCQ dans un milieu composé de puits quantiques de semi-conducteur, zone active des LCQ. Le faisceau NIR est résonant avec des transitions inter-bandes du puits quantique asymétrique permettant d'exalter les non-linéarités, comme on va le voir. Cela conduit à la génération de la somme de fréquences (SFG) ou de la différence de fréquences (DFG) entre le NIR et le THz-MIR. La figure II.1 ci-contre présente une vision schématique en énergie de la génération de la différence de fréquences. Le faisceau NIR incident (en rouge) est résonant avec la transition entre trou et électron. Il interagit avec le faisceau issu du LCQ (en vert) pour conduire à la génération de la DFG (en orange).

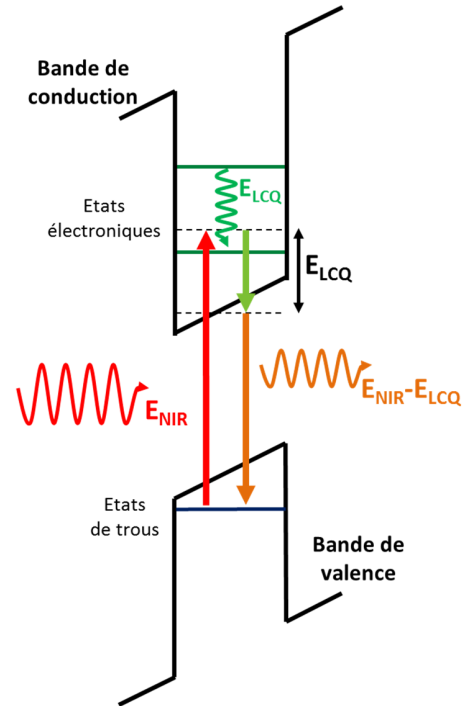


FIGURE II.1 – Schéma de génération de la différence de fréquences.

Ce chapitre met en place les bases théoriques pour comprendre les expériences d'optique non-linéaire que l'on décrira dans les chapitres suivants. Dans une première partie, on s'intéressera à l'optique non-linéaire classique, en se concentrant principalement sur la différence de fréquences. On verra notamment le rôle de l'accord de phase et de l'absorption dans ce type d'expériences. On s'appuiera pour cela sur le cours très complet de Manuel Joffre à l'école Polytechnique [49]. Dans une seconde partie, on traitera le mélange de fréquences grâce aux équations de la mécanique quantique, permettant une compréhension plus approfondie du phénomène d'optique non-linéaire résonante. J'ai contribué à développer dans cette thèse un cadre théorique complet permettant de décrire et comprendre les expériences de mélange de fréquences dans les LCQ, en collaboration avec Robson Ferreira. On décrira dans cette partie les conditions dans lesquelles sont menées les simulations numériques ainsi que les résultats obtenus sur des systèmes simples de deux puits couplés.

II.1 Optique non-linéaire classique

II.1.1 Propagation et polarisation du milieu

Lorsqu'un faisceau lumineux se propage dans un milieu, il faut prendre en compte deux aspects couplés. D'une part, il faut considérer la réponse du milieu suite à l'excitation de l'onde. Dans le cas d'un matériau diélectrique, les charges libres du milieu se mettent en mouvement sous l'action du champ électromagnétique oscillant associé au faisceau lumineux. D'autre part, l'oscillation de ces charges rayonne un champ électromagnétique qui vient s'ajouter à l'onde incidente. Il faut considérer les deux aspects simultanément étant donné que le champ rayonné induit lui-même une polarisation du milieu diélectrique, qui rayonne un nouveau champ et ainsi de suite. Pour traiter ce problème, nous nous placerons dans un modèle semi-classique

et nous considérerons que la réponse du milieu au champ incident se fait sous forme d'une polarisation non-linéaire, pour rendre compte des effets observés.

Lorsqu'une onde électromagnétique \mathbf{E} se propage dans un milieu, celui-ci répond en se polarisant avec une polarisation \mathbf{P} , qui joue elle-même le rôle d'une source. A partir des équations de Maxwell, on peut écrire l'équation de propagation de l'onde \mathbf{E} dans le milieu :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (\text{II.1})$$

avec ϵ_0 la permittivité du vide. On peut effectuer un développement de la polarisation auto-induite comme :

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

où $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, t)$ est la polarisation linéaire et les $\mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{r}, t)$ sont des fonctions n-linéaires par rapport aux champs électriques présents dans le milieu. On peut décomposer la polarisation en approche perturbative, comme son premier ordre et un terme non-linéaire.

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{NL} \\ &= \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}^{NL} \end{aligned}$$

Par définition, $\chi^{(n)}$ est le tenseur de susceptibilité d'ordre n. A l'ordre 1 qui caractérise la réponse linéaire du milieu et pour un milieu isotrope, $\chi^{(1)}$ est un scalaire. On peut définir l'indice du milieu tel que $n = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$. Pour prendre en compte proprement le caractère dispersif du milieu, on doit considérer le champ et la polarisation chaque composante en fréquence, tels que :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= \sum_n \mathbf{E}_n(\mathbf{r}) e^{-i\omega_n t} + cc. \\ \mathbf{P}^{NL}(\mathbf{r}, t) &= \sum_n \mathbf{P}_n^{NL}(\mathbf{r}) e^{-i\omega_n t} + cc. \end{aligned}$$

Pour chaque composante ω_n , on peut donc réécrire l'équation de propagation II.1 de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \Delta \mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} &= \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 (\mathbf{P}_n^{(1)}(\mathbf{r}, t) + \mathbf{P}_n^{NL}(\mathbf{r}, t))}{\partial t^2} \\ &= \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega_n) \frac{\partial^2 \mathbf{E}_n(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_n^{NL}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \end{aligned}$$

En simplifiant le facteur temporel, on obtient :

$$\Delta \mathbf{E}_n(\mathbf{r}) + n^2(\omega_n) \frac{\omega_n^2}{c^2} \mathbf{E}_n(\mathbf{r}) = - \frac{\omega_n^2}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{P}_n^{NL}(\mathbf{r}, \omega_n) \quad (\text{II.2})$$

Plutôt que de se placer dans le cas général où le calcul est très complexe, on se placera dans un cas particulier en faisant les hypothèses courantes suivantes : les faisceaux incidents sont décrits pas des ondes planes monochromatiques se propageant selon l'axe x, on se placera dans l'approximation paraxiale où le champ électrique peut s'écrire sous la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(x, y, z) = \mathbf{A}(x, y, z) e^{ik(\omega)x}$$

soit comme le produit de l'enveloppe \mathbf{A} , lentement variable et d'une porteuse optique ayant pour vecteur d'onde \mathbf{k} dans le milieu, avec $k(\omega) = \frac{\omega n(\omega)}{c}$. L'enveloppe varie lentement de sorte que la dérivée seconde est négligeable : $\frac{\partial^2 A}{\partial x^2} \ll k(\omega) \frac{\partial A}{\partial x}$. Dans la suite de cette section, on s'intéressera uniquement à la dépendance selon la direction de propagation x . On peut simplifier l'équation II.2 :

$$(-Ak^2(\omega) + 2ik(\omega) \frac{\partial A}{\partial x} + \frac{\partial^2 A}{\partial x^2})e^{ikx} + n(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} A e^{ikx} = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} P^{NL}(x, \omega)$$

Après simplifications, on obtient :

$$\frac{dA}{dx} = \frac{i\omega^2}{2k\epsilon_0 c^2} P^{NL}(x, \omega) e^{-ikx} = \frac{i\omega}{2n(\omega)\epsilon_0 c} P^{NL}(x, \omega) e^{-ikx} \quad (\text{II.3})$$

Cette expression nous servira à écrire le système d'équations qui décrit les phénomènes d'optique non-linéaires auxquels on s'intéresse.

II.1.2 Optique non-linéaire d'ordre 2

L'ordre 2 est le premier ordre non-linéaire et normalement le plus fort, il est donc plus facile d'observer des effets d'optique non-linéaire à cet ordre. Lorsqu'un faisceau se propage dans un milieu matériel, le processus d'ordre 2 va permettre de générer un nouveau faisceau dont la fréquence est une combinaison de deux fréquences incidentes. Pour un faisceau monochromatique de fréquence ω , un nouveau faisceau pourra ainsi être généré à la fréquence 2ω . Pour deux faisceaux incidents de fréquences ω_1 et ω_2 , on s'attend à retrouver le doublage de fréquences, mais aussi des faisceaux aux fréquences $\omega_1 + \omega_2$ et $\omega_1 - \omega_2$, comme représenté sur le schéma figure II.2.

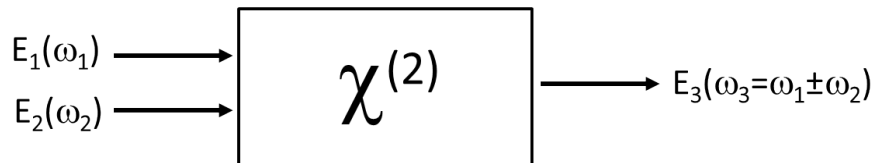


FIGURE II.2 – Mélange d'ondes schématique pour un processus d'optique non-linéaire d'ordre 2 : deux ondes interagissent pour générer une onde de fréquence $\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2$.

On traitera dans cette partie le cas général du mélange à trois ondes, les deux champs incidents, de fréquences ω_1 et ω_2 différentes et le champ résultant. Il y a plusieurs effets possibles mais nous ne nous intéresserons qu'au faisceau généré à la différence de fréquences (raisonnement similaire pour la somme de fréquences). La polarisation non-linéaire s'écrit :

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

où l'on n'a conservé que les termes contribuant préférentiellement au mélange de fréquences (SFG et DFG). On peut en déduire les polarisations non-linéaires intervenant dans l'équation

de propagation de chacune des trois ondes :

$$\begin{aligned} P_{(1)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} E_2 E_3 = \epsilon_0 \chi^{(2)} A_2 A_3 e^{i(k_2+k_3)x} \\ P_{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_3^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} A_1 A_3^* e^{i(k_1-k_3)x} \\ P_{(3)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2^* = \epsilon_0 \chi^{(2)} A_1 A_2^* e^{i(k_1-k_2)x} \end{aligned}$$

A partir de l'équation II.3 et de l'expression de la polarisation pour chacune des ondes, on obtient le système d'équations :

$$\begin{aligned} \frac{dA_1}{dx} &= \frac{i\omega_1}{2n_1c} \chi^{(2)} A_2 A_3 e^{-i\Delta kx} \\ \frac{dA_2}{dx} &= \frac{i\omega_2}{2n_2c} \chi^{(2)} A_1 A_3^* e^{-i\Delta kx} \\ \frac{dA_3}{dx} &= \frac{i\omega_3}{2n_3c} \chi^{(2)} A_1 A_2^* e^{-i\Delta kx} \end{aligned}$$

$\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$ est le désaccord de phase. C'est un paramètre important qui va influencer sur l'efficacité.

On suppose que la conversion est suffisamment faible pour négliger la déplétion des faisceaux incidents. A partir de ce système, on peut montrer que la puissance totale se conserve [50], le milieu matériel ne sert que d'intermédiaire pour la conversion mais n'absorbe pas d'énergie. En absence d'absorption, on peut résoudre ce système pour en déduire l'efficacité de conversion du mélange à partir du faisceau incident de fréquence ω_1 pour générer la différence de fréquence à ω_3 . L'efficacité s'exprime donc :

$$\eta_{diff} = \frac{I_3}{I_1} = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 I_2}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_3^2} \frac{\sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{(\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (\text{II.4})$$

avec I_j et n_j la densité optique et l'indice associés aux amplitudes A_j où $I_j = 2\epsilon_0 n_j |A_j|^2$, L est la longueur de l'échantillon où a lieu l'interaction et λ_3 est la longueur d'onde du faisceau généré. On appellera η_0 l'efficacité pour un désaccord de phase nul :

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

On voit dans l'expression II.4 que l'efficacité dépend de deux paramètres sur lesquels on peut intervenir : la susceptibilité $\chi^{(2)}$ et le désaccord de phase Δk . La figure II.3 montre l'évolution (suivant un sinus cardinal au carré) de l'efficacité en fonction du désaccord de phase, défini comme $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$. On observe un maximum d'efficacité pour $\Delta k=0$ puis une rapide diminution.

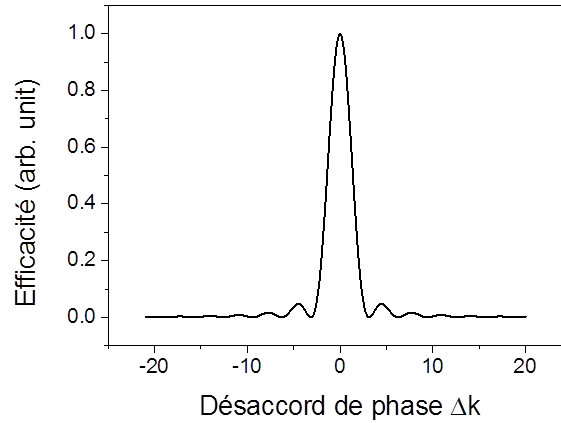


FIGURE II.3 – Évolution de l'efficacité en fonction du désaccord de phase.

Nous reviendrons dans le paragraphe suivant sur les conditions d'accord de phase et nous verrons par la suite que celui-ci devient négligeable dans des fortes conditions d'absorption de la pompe. Dans une configuration hors résonance, la susceptibilité $\chi^{(2)}$ est seulement dépendante du matériau mais nous verrons que celle-ci peut être exaltée pour une excitation résonante et dépend alors de la longueur d'onde d'excitation. L'efficacité est proportionnelle à l'intensité du faisceau de fréquence ω_2 . Dans notre expérience, il s'agit du faisceau térahertz généré par le LCQ (le faisceau de pompe $\omega_1 = \omega_{NIR}$ et le faisceau généré $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ sont dans le proche infrarouge).

II.1.3 Accord de phase

Nous avons vu précédemment (équation II.4) que le désaccord de phase est un paramètre important sur lequel on peut agir pour améliorer l'efficacité du processus de conversion. Dans le cas de la génération de la différence de fréquences à partir d'une excitation résonante, nous verrons dans la partie II.1.4 qu'il est très fréquent de se trouver dans la situation où le désaccord de phase est négligeable devant les pertes de pompe ($\alpha_p \gg \Delta k$). Nous étudierons au cours de cette thèse différents cas de figure où cette situation est discutée.

Le désaccord de phase est dû à la différence de vitesse de phase entre la polarisation non-linéaire et l'onde optique générée par cette polarisation. A partir d'une certaine distance parcourue, la différence de phase entre les deux ondes atteint π et les interférences destructives empêchent le mélange de fréquences d'être efficace. On peut ainsi définir la longueur de cohérence telle que $L_c = \frac{\pi}{|\Delta k|}$. Dans la configuration des expériences, le désaccord de phase s'exprime :

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda_{NIR}} n_{NIR} - \frac{2\pi}{\lambda_{diff}} n_{diff} - \frac{2\pi}{\lambda_{THz}} n_{THz}$$

Pour assurer l'accord de phase, il existe deux méthodes couramment employées. La première technique, dite de l'accord de phase par biréfringence [51], nécessite d'avoir un milieu non-linéaire biréfringent dans lequel le faisceau incident et le faisceau généré ont des polarisations orthogonales. Si la biréfringence est suffisante, il sera possible d'ajuster l'angle d'incidence pour accorder les indices des deux polarisations. La deuxième technique, dite du quasi-accord de phase [52] consiste à utiliser un milieu constitué d'un empilement alterné de couches de sorte que l'on change le signe de la non-linéarité à chaque longueur L_c , on peut

ainsi compenser le déphasage résultant de la propagation. Un exemple de quasi-accord de phase est représenté en rouge sur la figure II.4.

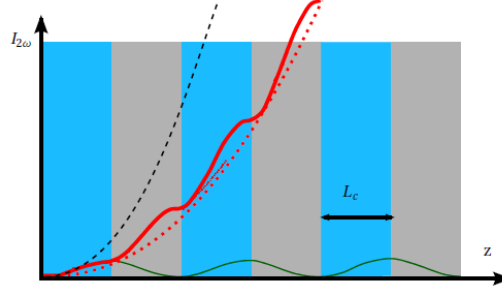


FIGURE II.4 – Quasi-accord de phase : les différentes courbes montrent l'intensité du faisceau généré en fonction de la longueur de propagation pour trois cas différents : accord de phase parfait, $\Delta k = 0$ (pointillé noir), $\Delta k \neq 0$ (vert) et quasi-accord de phase (rouge) (figure extraite de [53]).

II.1.4 Mélange de fréquences et absorption

Dans les sous-parties précédentes, nous avons considéré que l'onde interagissant avec le milieu matériel se propageait sans absorption. Pour un milieu semiconducteur comme c'est le cas ici, cette hypothèse est valable si l'énergie de l'onde incidente est bien inférieure à l'énergie de gap du matériau. Or dans le cas qui va nous intéresser dans cette thèse, au moins un des faisceaux dans le proche infrarouge (pompe ou faisceau généré) doit être résonant avec une transition interbande. Son énergie est alors par définition au-delà de l'énergie du gap. Il convient ici d'ajouter un terme d'absorption dans le système d'équations couplées vu précédemment :

$$\begin{aligned}\frac{dA_1}{dx} &= -\frac{1}{2}\alpha_1 A_1(x) + \frac{i\omega_1}{2n_1c}\chi^{(2)} A_2 A_3 e^{-i\Delta kx} \\ \frac{dA_2}{dx} &= -\frac{1}{2}\alpha_2 A_2(x) + \frac{i\omega_2}{2n_2c}\chi^{(2)} A_1 A_3^* e^{-i\Delta kx} \\ \frac{dA_3}{dx} &= -\frac{1}{2}\alpha_3 A_3(x) + \frac{i\omega_3}{2n_3c}\chi^{(2)} A_1 A_2^* e^{-i\Delta kx}\end{aligned}$$

où α_j se réfère aux pertes du faisceau de fréquence ω_j au cours de la propagation dans le milieu.

Dans le cadre des expériences de génération de la différence de fréquences, le faisceau proche infrarouge incident est résonant avec les transitions interbandes (cas simplement résonant). On peut donc considérer que seul le faisceau de fréquence ω_1 est fortement absorbé. Les pertes sur le faisceau de fréquence ω_2 (faisceau THz) sont compensées par le gain du LCQ. Le faisceau de la différence de fréquences est généré sous le seuil d'absorption, ses pertes sont donc très faibles par rapport à celles de l'excitation résonante et peuvent être négligées. On ne considère qu'un seul facteur de pertes α_p , celles du faisceau pompe incident. L'expression de l'efficacité devient alors [54] :

$$\eta_{diff} = \eta_0 \frac{\sin^2(\frac{\Delta kL}{2}) + \sinh^2(\frac{\alpha_p L}{4})}{(\frac{\Delta kL}{2})^2 + (\frac{\alpha_p L}{4})^2} e^{-\alpha_p \frac{L}{2}} \quad (\text{II.5})$$

Le facteur η_0 reste le même que dans le cas sans absorption. La deuxième partie de la formule montre une compétition entre des termes de pertes dépendant de α_p et des termes

d'accord de phase dépendant de Δk . Lors d'une excitation résonante, les pertes sont très importantes ($\sim 3000-5000 \text{ cm}^{-1}$ pour des puits quantiques de GaAs), bien plus importantes que le désaccord de phase à résonance. Dans ce cas, la longueur de cohérence $L_c = \frac{\pi}{|\Delta k|}$ est plus longue que la longueur d'interaction limitée par l'absorption. Comme $\alpha_p \gg \Delta k$, on peut négliger le désaccord de phase devant les pertes, l'efficacité prend alors la forme suivante :

$$\eta_{diff} \approx \frac{32\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 I_2}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_3^2} \frac{1}{\alpha_p^2} \quad (\text{II.6})$$

Il est intéressant de voir que cette formule de l'efficacité est indépendante de la longueur de l'échantillon car toute l'interaction s'effectue dans les premiers microns du milieu, à cause de l'absorption du faisceau de pompe. Bien que la configuration d'excitation en résonance semble défavorable car elle introduit des pertes (α_p) très importantes et limite extrêmement la longueur d'interaction, nous allons voir dans la partie suivante que l'excitation résonante permet une exaltation importante de la susceptibilité non-linéaire.

II.2 Optique non-linéaire résonante

II.2.1 Historique et symétrie

Comme on l'a vu en introduction de ce chapitre, les expériences d'optique non-linéaire se sont développées dès les années 60, suite à la découverte et la mise en place des dispositifs laser. Ces expériences se sont d'abord développées dans les milieux diélectriques dont la biréfringence naturelle permet de réaliser facilement les conditions d'accord de phase. Les matériaux semiconducteurs III-V sont également des objets d'intérêt pour ces expériences grâce à de fortes susceptibilités massives (GaAs $\chi^{(2)} \approx 240 \text{ pm/V}$). Cependant, les conditions d'accord de phase sont plus difficiles à réaliser pour ces derniers car ils ne présentent pas de biréfringence. Une méthode d'accord de phase a été proposée, s'appuyant sur une biréfringence artificielle dans des multicouches composites de GaAs et d'oxyde d'AlAs [55]. Elle a permis de démontrer la génération de second harmonique intense à $1.55 \mu\text{m}$ [56] et l'amplification paramétrique optique [57].

Malgré des difficultés pour obtenir l'accord de phase dans ces matériaux, la susceptibilité non-linéaire des semiconducteurs III-V peut être exaltée. En effet, grâce à leur structure de bandes, une excitation optique à une énergie résonante avec les transitions intrinsèques (interbandes ou intersousbandes), conduit à une exaltation des non-linéarités.

Le développement des puits quantiques donne une dimension supplémentaire à l'utilisation de ces matériaux pour l'optique non-linéaire, permettant des non-linéarités résonantes bien plus importantes grâce au confinement des états. Pour des raisons de symétrie que nous détaillerons après, pour un puits quantique simple les non-linéarités d'ordre deux ne sont pas permises. Il est possible pourtant de manipuler les structures pour former des puits quantiques asymétriques et de synthétiser des structures quantiques adaptées pour permettre les non-linéarités d'ordre deux en brisant la symétrie. Gurnick et DeTemple ont été précurseurs dans ce domaine [58]. Ils ont proposé d'accoler plusieurs puits quantiques d'énergie de gap variable (par exemple en jouant sur la concentration en aluminium) formant ainsi un puits oblique dont la symétrie a été supprimée. Ces travaux ont été poursuivis et étendus [3], notamment par Khurgin [59], mettant également l'accent sur l'exaltation de la susceptibilité non-linéaire grâce aux résonances intersousbandes [60]. De nombreux processus d'optique non-linéaire sont rendus possibles grâce à l'ingénierie quantique des structures de semiconducteurs. Il existe plusieurs possibilités pour former des puits asymétriques, on peut entre autre appliquer

un champ électrique qui incline la structure ou coupler deux puits quantiques de largeurs différentes [3].

Grâce à l'exaltation des non-linéarités due aux résonances interbandes et intersousbandes, le domaine de l'optique non-linéaire, qui était limité aux faisceaux de fortes puissances d'excitation, est devenu accessible à des sources bien plus faibles. Les puits quantiques qui composent la zone active du LCQ, qui est également le milieu non-linéaire de nos expériences, sont asymétriques, à la fois par le couplage tunnel et par le champ électrique appliqué pour obtenir l'émission du LCQ.

La symétrie du système joue un rôle très important pour l'obtention d'un terme de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 (ou d'ordre pair). Lors d'une inversion ($\vec{r} = -\vec{r}$), les vecteurs \mathbf{E} et \mathbf{P} sont transformés en leur opposé. D'après l'équation $\mathbf{P}^{(2)} = \chi^{(2)}\mathbf{E}^2$, cela impose la même chose pour $\chi^{(2)}$. Pour un milieu centro-symétrique, le tenseur de susceptibilité reste inchangé donc $\chi^{(2)} = -\chi^{(2)}$ donc $\chi^{(2)} = 0$. Dans les puits quantiques symétriques, le système est centro-symétrique et la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 est a priori nulle. On verra dans la partie suivante que la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 est proportionnelle au produit des dipôles entre les états impliqués dans le phénomène de conversion. Les transitions interbandes dans les puits quantiques étant régies par les règles de sélection que l'on a vues précédemment, certains dipôles sont nuls et la susceptibilité elle-même est donc nulle. En brisant cette symétrie, par exemple en appliquant un champ électrique, on brise la symétrie et les règles de sélection, autorisant toutes les transitions et les phénomènes non-linéaires d'ordre 2.

II.2.2 Théorie quantique de la susceptibilité non-linéaire

Dans cette partie, nous allons utiliser la mécanique quantique pour décrire le système et expliciter l'expression de la susceptibilité non-linéaire. À partir de cette expression, nous pourrions voir comment la susceptibilité dépend des paramètres du matériau et de la symétrie interne du système, notamment dans le cas qui nous intéresse, pour un puits quantique avec des niveaux d'énergie discrets. De plus, cette expression nous permet de mener des calculs numériques et ainsi d'obtenir les valeurs de susceptibilité théoriques attendues pour les conditions de l'expérience. Le traitement quantique nous permettra surtout de mettre en évidence le principe d'exaltation résonante de la susceptibilité non-linéaire.

L'idée de l'exaltation résonante de la susceptibilité non-linéaire est présentée sur la figure II.5 dans le cas de génération de la différence de fréquences entre deux faisceaux d'énergies très différentes (cas du mélange proche-infrarouge et THz présenté dans ce chapitre).

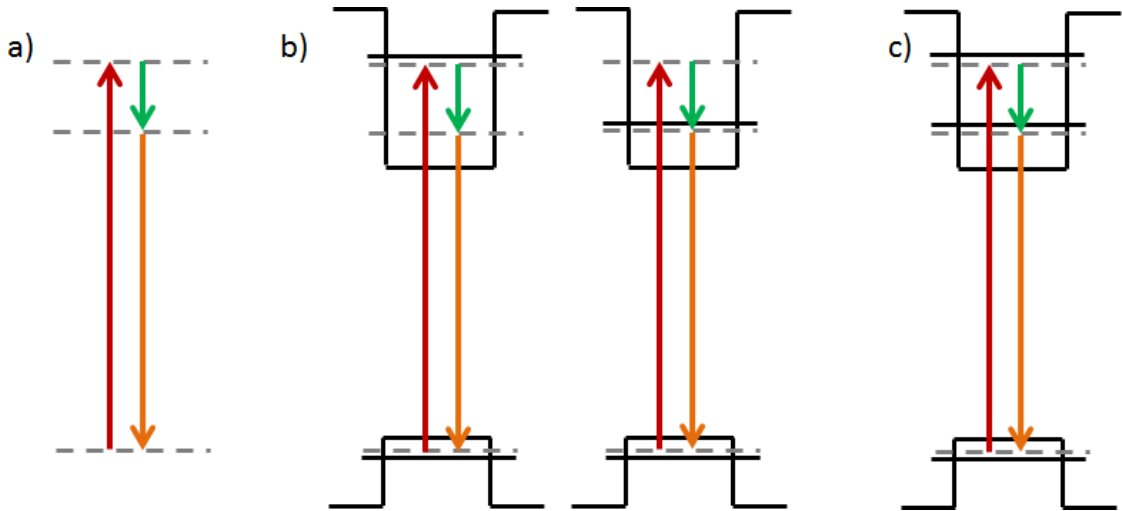


FIGURE II.5 – Principe de mélange résonant pour la génération de la différence de fréquences. a) Énergies des faisceaux impliqués dans le mélange, renforcées par le dessin d'états virtuels (traits en pointillés). b) Cas de simple résonance. c) Cas de la double résonance.

Le schéma a) de la figure II.5 montre les énergies des différents faisceaux impliqués dans le mélange : les deux faisceaux incidents (en rouge et vert) et la différence de fréquences générée (en orange). Les transitions énergétiques sont mises en évidence par des états virtuels en pointillés. On parle de condition de résonance permettant l'exaltation de la susceptibilité, lorsque l'énergie d'un des faisceaux impliqués est proche d'une énergie intrinsèque au système, dans notre cas, il s'agit des énergies entre les états du puits quantique. Dans le cas d'une simple résonance, une seule des énergies des faisceaux est résonante avec une transition électronique, cas présentés sur la partie b) de la figure II.5. La résonance peut se comprendre comme la coïncidence des états réels du puits et des états virtuels décrivant les énergies des faisceaux. Pour le cas de double résonance présenté sur la partie c), toutes les énergies sont résonantes avec des transitions électroniques. Nous verrons que ce dernier cas est supposé bien plus favorable pour l'exaltation de la susceptibilité non-linéaire que les cas de simple résonance mais que la susceptibilité non-linéaire dépend également d'autres paramètres.

On adoptera dans cette partie le formalisme de la matrice densité. On s'appuiera sur l'ouvrage de Robert Boyd [51], une référence importante du domaine. Soit ρ l'opérateur matrice densité d'un système quantique (tel qu'un puits quantique), l'évolution temporelle de la matrice densité est régie par l'équation :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [H, \rho(t)] - i\hbar \Gamma (\rho - \rho^{(0)}) \quad (\text{II.7})$$

On effectue le développement perturbatif au deuxième ordre : $\rho = \rho^{(0)} + \rho^{(1)} + \rho^{(2)}$. L'opérateur à l'ordre 0, $\rho^{(0)}$, correspond à la valeur stationnaire et caractérise habituellement l'état d'équilibre thermodynamique. Les termes hors-diagonaux de cet opérateur sont nuls et ses termes diagonaux correspondent aux populations des états concernés. Dans notre cas, le milieu non-linéaire étant la région active d'un LCQ en fonctionnement, l'état stationnaire est hors équilibre puisqu'il présente une inversion de population pour l'émission du LCQ. On considérera de plus, que l'excitation proche infrarouge est suffisamment faible pour ne pas modifier cet état stationnaire. Γ introduit les effets phénoménologiques de relaxation non inclus dans l'hamiltonien H , tels que le couplage aux phonons ou l'interaction coulombienne

entre électrons.

L'hamiltonien H se décompose comme :

$$H = H_0 + W_{dip}(t)$$

où H_0 est l'hamiltonien libre du système en absence de champ électromagnétique, d'états propres ($\hbar\omega_n, |n\rangle$) et $W_{dip}(t)$ représente le couplage du système avec le faisceau lumineux. Dans le cadre de l'approximation dipolaire, $W_{dip}(t) = \vec{\mu} \cdot \vec{E}(t)$. Le champ \vec{E} étant polarisé linéairement selon z (hypothèse pour simplifier les notations), on considérera μ l'opérateur dipolaire selon la direction de polarisation du champ \vec{E} . A partir de l'équation II.7 et du développement perturbatif de l'opérateur densité, on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial \rho^{(0)}}{\partial t} &= [H_0, \rho^{(0)}] = 0 \\ i\hbar \frac{\partial \rho^{(1)}}{\partial t} &= [H_0, \rho^{(1)}] + [W_{dip}, \rho^{(0)}] - i\hbar\Gamma\rho^{(1)} \\ i\hbar \frac{\partial \rho^{(2)}}{\partial t} &= [H_0, \rho^{(2)}] + [W_{dip}, \rho^{(1)}] - i\hbar\Gamma\rho^{(2)} \end{aligned} \quad (\text{II.8})$$

On peut résoudre ce système pour expliciter le terme non-linéaire d'ordre 2 de l'opérateur densité. Ce dernier nous permet d'exprimer la polarisation non-linéaire de deux manières :

$$\begin{aligned} P^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) &= N \langle \mu \rangle = N \sum_{mn} \rho_{mn} \mu_{mn} \\ P^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) &= \epsilon_0 E_1(\omega_1) E_2^*(\omega_2) \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) \end{aligned}$$

où μ_{ij} sont les éléments de matrice de l'opérateur dipolaire qui s'explicitent différemment selon la nature des états impliqués.

En combinant les deux formules précédentes de la polarisation non-linéaire ainsi que la solution $\rho^{(2)}$ du système II.8, on peut obtenir l'expression de la susceptibilité non-linéaire :

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) &= \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr} \hbar^2} \sum_{mnnv} (\rho_{mm}^{(0)} - \rho_{vv}^{(0)}) \frac{\mu_{mn} \mu_{nv} \mu_{vm}}{[\omega_{nm} - (\omega_1 - \omega_2) - i\Gamma_{nm}][\omega_{vm} - \omega_1 - i\Gamma_{vm}]} \\ &\quad - (\rho_{vv}^{(0)} - \rho_{nn}^{(0)}) \frac{\mu_{mn} \mu_{nv} \mu_{vm}}{[\omega_{nm} - (\omega_1 - \omega_2) - i\Gamma_{nm}][\omega_{nv} - \omega_1 - i\Gamma_{nv}]} \end{aligned}$$

avec V_{cr} le volume du milieu d'interaction.

On va simplifier cette expression et donner maintenant des indices correspondants aux champs utilisés dans cette thèse : l'indice *THz* qualifiera le champ THz, l'indice *NIR* qualifiera le champ proche infrarouge et l'indice *diff* qualifiera la différence de fréquences telle que $E_{diff} = \hbar\omega_{diff} = E_{NIR} - E_{THz} = \hbar(\omega_{NIR} - \omega_{THz})$.

$$\begin{aligned} \chi^{(2)}(\omega_{NIR} - \omega_{THz}) &= \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr}} \sum_k \sum_{mnnv} \frac{\mu_{mn} \mu_{nv} \mu_{vm}}{\Delta E_{nm} + E_k - E_{diff} - i\Gamma_{nm}} \\ &\quad \left(\frac{\rho_m - \rho_v}{\Delta E_{vm} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma_{vm}} + \frac{\rho_n - \rho_v}{\Delta E_{nv} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma_{nv}} \right) \end{aligned} \quad (\text{II.9})$$

où les indices n, m et v correspondent à des états confinés (trous ou électrons). La somme porte sur toutes les combinaisons possibles de trois états parmi les états confinés. ρ_j se réfère à la population de l'état j . μ_{ij} se réfère au dipôle entre les états i et j , avec $\mu_{ij} = \mu_{ji}$.

On note que pour un couplage intersousbande : $\mu_{mn} = -e\langle\phi_m|z|\phi_n\rangle$ et pour un couplage interbande : $\mu_{mn} = -e\langle u_c|z|u_v\rangle\langle\phi_m|\phi_n\rangle$ (notations vues au chapitre I). ΔE_{ij} se réfère à la différence d'énergie $E_i - E_j$ qui peut être positive ou négative, $\Delta E_{ij} = -\Delta E_{ji}$. E_k correspond à l'énergie cinétique de chaque sous-bande considérée, c'est-à-dire à la dispersion en k (intégrée dans l'équation finale).

Les effets de résonance que l'on a présentés dès la figure II.5 apparaissent très clairement dans cette formule. On voit que chaque terme peut être amplifié si son dénominateur tend vers 0 et donc si les énergies des faisceaux impliqués, ici E_{NIR} et $E_{diff} = E_{NIR} - E_{THz}$, sont proches des énergies intrinsèques des transitions du matériau, ΔE_{ij} . Dans le paragraphe suivant, on s'attachera à donner une mise en situation simple et concrète pour comprendre visuellement l'effet de ces résonances.

C'est l'expression II.9 de la susceptibilité que nous allons utiliser pour simuler les conditions expérimentales (différentes structures de LCQ, différentes fréquences d'excitation) et estimer la valeur théorique de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 dans ces conditions.

II.2.3 Comprendre les mécanismes de résonance

Le but de ce paragraphe est de donner une application visuelle des effets de résonance qui apparaissent dans la formule II.9. Pour cela, on s'intéressera d'abord à des cas très simples, en s'autorisant des approximations liées aux résonances.

On commencera par le cas d'un système avec deux niveaux. Pour rester très basique d'abord, on supposera qu'il n'y a pas de dispersion dans l'espace des k , c'est-à-dire que l'énergie cinétique est nulle. On considérera deux niveaux 1 et 2 correspondant à une transition interbande. Ne considérant qu'une seule transition, $\Gamma_{ij} = \Gamma$ ne prend qu'une seule valeur. On doit donc sommer sur les indices m , n et v tels que chaque indice puisse prendre les valeurs 1 ou 2. On obtient 8 combinaisons possibles. Cependant, tous les termes faisant intervenir deux ou trois fois le même indice seront nuls (annulation des termes de population) ou hors résonance. De plus, les termes faisant intervenir $\Delta E_{ij} < 0$ sont également hors résonance. En simplifiant ainsi l'expression de $\chi^{(2)}$ on obtient l'expression suivante :

$$\chi^{(2)}(\omega_{diff}) = \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr}} \frac{\mu_{12}^2 (\mu_{11} - \mu_{22})}{\Delta E_{12} - E_{diff} - i\Gamma} \frac{\rho_2 - \rho_1}{\Delta E_{12} - E_{NIR} - i\Gamma} \quad (\text{II.10})$$

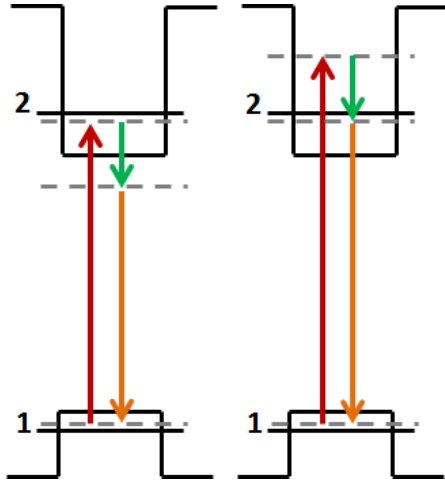


FIGURE II.6 – Résonances simples pour un système à deux niveaux.

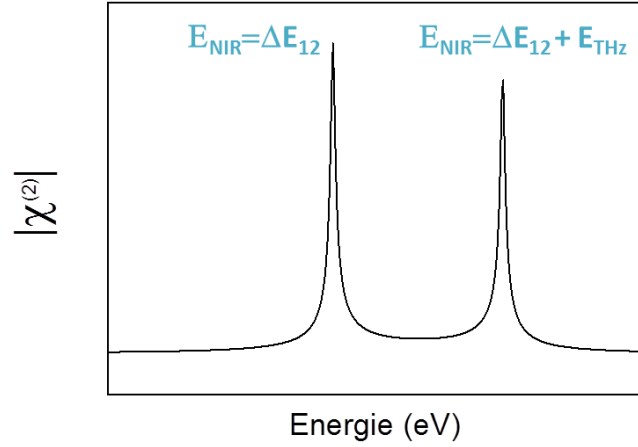
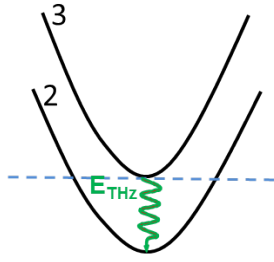


FIGURE II.7 – Simulation de $\chi^{(2)}$ pour un système à deux niveaux (sans dispersion). Mis en évidence de résonances simples.

On remarque sur la formule II.10 que les deux résonances possibles ont lieu lorsque l'énergie de pompe NIR ou lorsque l'énergie de la différence de fréquences générée est résonante avec l'énergie de la transition ΔE_{12} . L'intensité de la susceptibilité non-linéaire est modulée par un facteur qui dépend de la différence de population entre les deux états et de la valeur des dipôles μ_{11} , μ_{22} et μ_{12} . On s'attend dans ce cas à une évolution de la susceptibilité en fonction de l'énergie NIR présentant deux pics de résonance pour $E_{NIR} = \Delta E_{12}$ et $E_{NIR} = \Delta E_{12} + E_{THz}$. La simulation numérique de $\chi^{(2)}$ pour un tel système est présentée figure II.7. Les deux situations de résonance sont représentées sur le schéma figure II.6. Dans le premier cas, la pompe NIR (rouge) est résonante avec la transition ΔE_{12} . Dans le deuxième cas, c'est la différence de fréquence (orange) qui est résonante avec la transition.

On va maintenant s'intéresser au cas d'un système à trois niveaux, pour lequel se présente la situation d'une double résonance. Pour s'approcher de la situation réelle non simplifiée, on considère un niveau de trou et deux niveaux électroniques avec une dispersion parabolique dépendant de la masse effective considérée telle que l'énergie cinétique s'exprime $E_k = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{eff}}$. Les énergies séparant les niveaux sont telles que ΔE_{12} est une transition interbande et $\Delta E_{23} = E_{THz}$ est une transition intersousbande. Ce système est schématisé sur la figure II.8. L'expression de la susceptibilité non-linéaire pour un système à trois niveaux est plus complexe que le cas précédent car chaque indice peut prendre les valeurs 1, 2 ou 3. Elle regroupe à la fois des termes simplement résonants vu précédemment lorsque les indices ne prennent que deux valeurs différentes ([1,2] ou [1,3], le cas [2,3] est hors résonance du fait des écarts en énergie) mais aussi des termes doublement résonants. On va développer la somme de l'expression II.9 uniquement pour faire apparaître ces nouveaux termes, faisant intervenir trois valeurs différentes des indices. On fera l'approximation que le coefficient Γ est le même pour toutes les transitions interbandes. On donnera plus de détails sur ce coefficient dans la suite de ce chapitre.



$$\chi^{(2)}(\omega_{diff}) = \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr}} \sum_k \frac{\mu_{12}\mu_{13}\mu_{23}}{\Delta E_{12} + E_k - E_{diff} - i\Gamma} \left(\frac{\rho_1 - \rho_3}{\Delta E_{13} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} + \frac{\rho_2 - \rho_3}{\Delta E_{23} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} \right) + \frac{\mu_{12}\mu_{13}\mu_{23}}{\Delta E_{13} + E_k - E_{diff} - i\Gamma} \left(\frac{\rho_3 - \rho_2}{\Delta E_{23} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} + \frac{\rho_1 - \rho_2}{\Delta E_{12} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} \right) + \frac{\mu_{12}\mu_{13}\mu_{23}}{\Delta E_{23} + E_k - E_{diff} - i\Gamma_{sousbande}} \left(\frac{\rho_3 - \rho_1}{\Delta E_{13} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} + \frac{\rho_2 - \rho_1}{\Delta E_{21} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} \right)$$



FIGURE II.8 -

$$\chi^{(2)}(\omega_{diff}) = \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr}} \sum_k \frac{\mu_{12}\mu_{13}\mu_{23}}{\Delta E_{12} + E_k - E_{diff} - i\Gamma} \frac{\rho_1 - \rho_3}{\Delta E_{13} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} \quad (\text{II.11})$$

$$+ \frac{\mu_{12}\mu_{13}\mu_{23}}{\Delta E_{13} + E_k - E_{diff} - i\Gamma} \frac{\rho_1 - \rho_2}{\Delta E_{12} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma} \quad (\text{II.12})$$

Après simplifications des termes hors résonance (termes barrés dans l'équation ci-dessus), on obtient une expression avec deux termes. Le premier terme II.11 décrit le cas de double résonance, on a à la fois résonance entre E_{NIR} et la transition ΔE_{13} et entre E_{diff} et la transition ΔE_{12} . Le deuxième terme II.12 décrit les deux cas possibles de résonance simple, lorsque E_{diff} est résonante avec ΔE_{13} ou lorsque E_{NIR} est résonant avec ΔE_{12} . Du fait de la dispersion parabolique des bandes, on s'attend à observer en plus des résonances piquées, des plateaux entre chaque configuration résonante. L'intensité du pic dépend fortement du paramètre Γ comme on le verra dans la partie II.3.3. Une simulation de la susceptibilité non-linéaire pour la génération de la différence de fréquences dans un système à 3 niveaux en fonction de l'énergie de pompe E_{NIR} est présentée figure II.9 . On a seulement représenté l'évolution de $\chi^{(2)}$ en fonction de E_{NIR} jusqu'à atteindre la double résonance. Les sous-figures encadrées décrivent les situations d'excitation. Du fait de la dispersion parabolique, la pompe NIR reste en partie en résonance avec le niveau atteint même pour des énergies d'excitation supérieures à l'énergie de transition pour $k=0$.

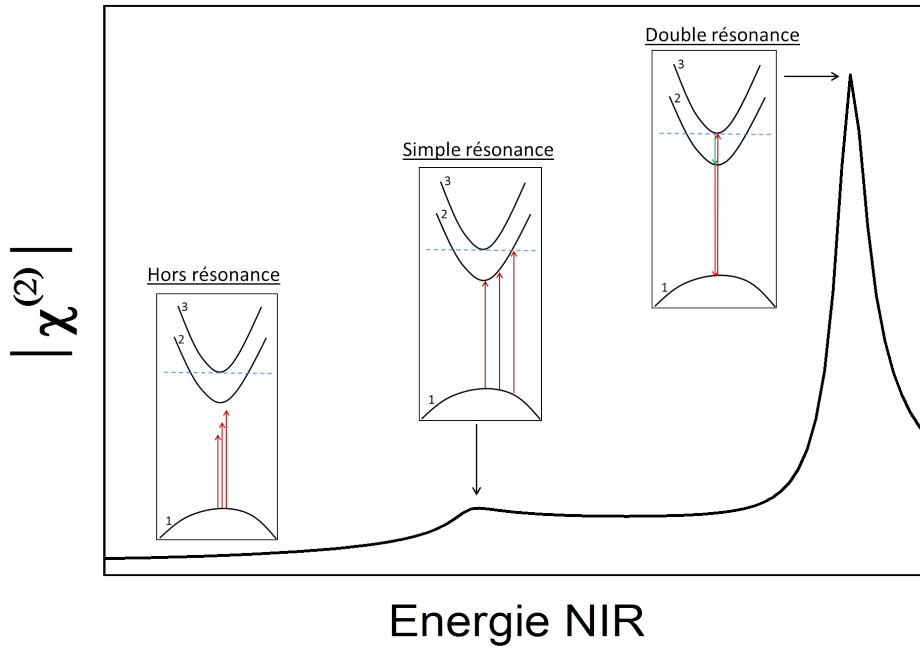


FIGURE II.9 – Susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 pour la génération de la différence de fréquences, en fonction de l'énergie de pompe NIR, simulée pour un système à 3 niveaux, en prenant en compte la dispersion des états.

La courbe présentée figure II.9 donne une idée générale du comportement attendu pour un système à trois niveaux, sans prendre en compte les facteurs de population et les facteurs de dipôle. On a pris ici les deux niveaux supérieurs séparés d'une énergie très supérieure à Γ (transition de 150 meV pour $\Gamma = 2$ meV). On met en évidence ici un comportement typique avec des effets de résonance simple et des effets de résonance double plus exaltés. La susceptibilité ne redescend pas à 0 entre les deux résonances, on observe un plateau du fait de l'intégration de la dispersion en k de la sous-bandes (contrairement au cas décrit sur la figure II.7). Le comportement devient bien plus imprévisible sans calcul lorsqu'on prend en compte les facteurs de dipôle dont le signe peut changer selon la forme des fonctions d'onde. Ces facteurs sont différents pour chaque transition et peuvent changer le poids de chaque terme de la somme. Dans les systèmes que nous étudions dans cette thèse et qui constituent le milieu non-linéaire, les zones actives des LCQ, la situation est bien plus compliquée que les exemples précédemment détaillés. Il y a plusieurs puits quantiques dont certains couplés, chacun mettant en jeu plusieurs états susceptibles de contribuer aux effets non-linéaires résonants. Nous verrons dans la partie suivante les approximations que l'on s'est autorisées selon les configurations des structures de bandes étudiées.

II.3 Simulations de la susceptibilité non-linéaire

II.3.1 État de l'art des calculs théoriques

A partir des travaux précurseurs de Gurnick et Detemple en 1983 [58], l'exaltation des non-linéarités dans les puits quantiques a fait l'objet de nombreuses études théoriques. On citera parmi les premiers travaux majeurs dans ce domaine, celui de Khurgin [59] qui propose une formule de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 dans les puits quantiques asymétriques et met l'accent sur les nombreuses contributions à $\chi^{(2)}$. Ce travail est également très suivi par Rosencher [61] [3] qui propose différentes solutions pour introduire de l'asymétrie dans les puits quantiques.

Par la suite, d'autres travaux s'intéressent au mélange d'ondes entre un faisceau NIR et un faisceau THz dans des puits quantiques [62] [63]. Dans ces travaux moins généraux et plus appliqués à un cas expérimental, les auteurs proposent de ne garder que les termes résonants et simplifient la description du système physique à seulement 3 états, un état de trou et deux états d'électrons, séparés de l'énergie THz.

Nous montrerons dans nos simulations que l'on prend en compte au moins 2 états trou et 4 états électroniques et que certaines situations nécessitent de prendre en compte toutes les transitions possiblement impliquées dans le mélange d'ondes. Nous prendrons en compte également les termes non résonants étant donné que l'on décrira des situations où les conditions de double résonance ne sont pas toujours atteintes.

II.3.2 Approximations mises en œuvre

Grâce au formalisme que nous avons développé, nous avons pu simuler l'évolution de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 en fonction de l'énergie de pompe E_{NIR} pour toutes les structures de bandes des LCQ auxquels on s'est intéressé dans cette thèse. Les LCQ étaient composés de structures GaAs/AlGaAs ou InGaAs/AlInAs, émettant dans le THz ou dans le MIR. Les calculs de $\chi^{(2)}$ reposent entièrement sur des calculs préalables des fonctions d'ondes et des énergies des états confinés dans les puits quantiques. Cette partie n'est pas présentée dans cette thèse. On résout l'équation de Schrödinger selon le modèle de la masse effective (hamiltonien à une bande), les électrons, les trous lourds et les trous légers sont traités indépendamment. On n'a pas pris en compte le dopage de certaines couches de la zone active, entraînant une courbure des bandes. Mon travail a surtout porté sur l'utilisation des fonctions d'onde pour le calcul de $\chi^{(2)}$, s'autorisant des approximations compatibles avec les conditions d'expérience.

La première approximation que l'on s'est autorisée porte sur les populations des différents états. Bien que certaines couches (puits ou barrières) des LCQ soient dopées, la population des états électroniques issue de ce dopage reste très faible par rapport à la population de la bande de valence. Pour des solides décrits par des structures de bandes, la population d'un état i , $\rho_i^{(0)}$ suit la distribution de Fermi de probabilité d'occupation d'un état d'énergie $E_{i,k} = E_i + E_k$ (avec E_k l'énergie cinétique) :

$$\rho_i^{(0)} = f(E_{i,k}) = \frac{1}{1 + e^{\beta(E_{i,k} - \mu_i)}}$$

où $\beta = \frac{1}{k_B T}$ et μ_i est le potentiel chimique de l'état i . On peut montrer que le potentiel chimique de l'état i de met sous la forme :

$$\mu_i(T) = E_i + k_B T \ln(e^{\eta} - 1)$$

où $\eta = \frac{n_i}{n_c}$, avec n_i la densité des électrons dans la sous-bande i et une densité critique n_c définie telle que $n_c = \frac{m_e}{\pi \hbar^2} k_B T$.

Cette densité critique peut être évaluée pour un puits de GaAs : $n_c = 3e9.Tcm^{-2}$, avec T la température en Kelvin. Pour donner des grandeurs chiffrées permettant de justifier notre approximation, on va se placer dans un cas d'exemple à haute température ($T = 200$ K, cas du chapitre IV), on obtient une densité critique $n_c = 6e11 cm^{-2}$.

Dans les LCQ, le dopage surfacique est de l'ordre de $n_i = 1e10-1e11cm^{-2}$. On peut ainsi calculer le potentiel chimique puis la population et on montre que celle-ci est très petite devant 1. Il paraît raisonnable de négliger la population des états électroniques. On a ainsi fixé une population égale à 1 pour les états concernés dans la bande de valence et une population égale à 0 pour tout état électronique de la bande de conduction.

La deuxième approximation que l'on s'est autorisée dans certains cas porte sur le nombre d'états à considérer lorsque l'on somme sur les transitions possibles. En effet, certaines transitions sont extrêmement peu favorables ou à très haute énergie. Les transitions principales à considérer sont celles qui font intervenir les états impliqués dans l'émission du LCQ à savoir les deux états haut et bas de la transition THz ou MIR et éventuellement dans les cas concernés les états de dépopulation par LO-phonon. Nous avons construit, en collaboration avec Teldo Pereira de l'université fédérale de Mato Grosso au Brésil et Robson Ferreira du laboratoire Pierre Aigrain, un programme de calcul qui permet de prendre en compte 6 états, 2 états trous et 4 états électroniques. On a l'avantage de pouvoir plus facilement identifier les transitions impliquées et le temps de calcul est fortement diminué par rapport au calcul avec tous les états d'une période de la structure de bandes. Cette approximation est raisonnable pour des structures de bandes où la transition laser est verticale, les états impliqués dans le mélange de fréquences sont alors tous regroupés dans 2 puits couplés. Nous verrons des cas concrets de structures de bandes dans les chapitres expérimentaux. Dans les expériences des chapitres IV et V, le processus non-linéaire a lieu en géométrie de transmission. Dans cette géométrie, les énergies d'excitation sont limitées à l'entourage de l'énergie du gap. Lorsque l'énergie de pompe est trop élevée, le mélange généré est rapidement absorbé dans la zone active et ne peut pas être observé en transmission. Dans cette géométrie, seuls les premiers états électroniques participent au mélange de fréquences, les autres contributions sont absorbées. Cet argument supplémentaire justifie de ne prendre en compte qu'un petit nombre d'états qui sont probablement excités.

On remarque que cette approximation qui consiste à se limiter à quelques états principaux n'est pas toujours valable. Dans le chapitre VI, la géométrie est différente, l'excitation a lieu par une fente gravée dans la surface du LCQ et la collection du mélange est obtenue en réflexion par la surface supérieure. L'absorption peut être en partie dépassée et on peut exciter des états électroniques de plus haute énergie. Il est alors crucial de prendre en considération un plus grand nombre d'états pour décrire le système de la manière la plus juste. Nous verrons que c'est dans ces conditions, en considérant tous les états, que nous avons mené les simulations concernant les expériences du chapitre VI, en collaboration étroite avec Robson Feirreira.

II.3.3 Coefficient d'élargissement Γ

Le facteur Γ n'a pas encore été discuté dans ce chapitre. Le terme $i\Gamma$ qui s'ajoute au dénominateur des termes en facteur dans l'équation II.9 est un terme phénoménologique qui permet de prendre en compte l'élargissement spectral des états. Ce dernier peut être de deux

natures. Il peut premièrement correspondre à l'inverse du temps de relaxation intrabande lorsque des transitions intersousbandes sont excitées. On considèrera qu'il est raisonnable de prendre le même coefficient quelles que soient les transitions intersousbandes excitées. Dans ce cas, l'élargissement est dû aux processus de diffusion entre porteurs ou entre porteurs et phonons. Lorsque des transitions interbandes sont excitées, l'élargissement des états correspond à l'inverse du temps de relaxation interbande, dû à des recombinaisons électrons trous. On prendra ici aussi un seul coefficient pour toutes les transitions interbandes.

Pour des puits quantiques de GaAs, ces coefficients d'élargissement sont de l'ordre de quelques meV à une dizaine de meV. Ils sont très dépendants de la température [64] [65]. Dans nos études, seul le coefficient interbande intervient car on néglige les populations des états électroniques, on ne permet pas une excitation intersousbande directe. On s'appuiera sur la référence [64] pour les valeurs du coefficient Γ . La figure II.10, extraite de cette référence, donne l'évolution du facteur d'élargissement pour une transition interbande à l'énergie du gap, dans le GaAs.

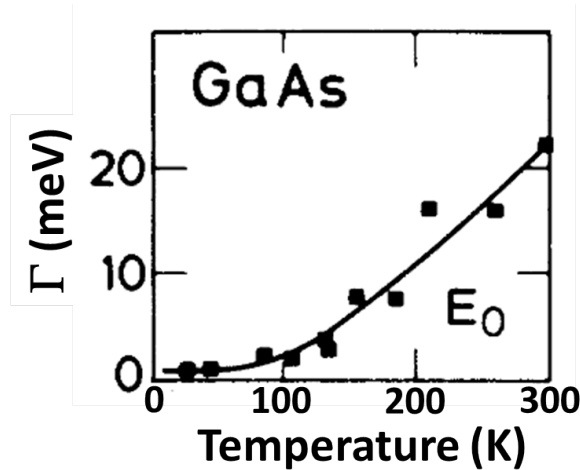


FIGURE II.10 – Évolution du coefficient d'élargissement Γ pour une transition interbande en fonction de la température, pour le GaAs (extrait de [64]).

Les valeurs de Γ (interbande) varient de 2 meV à basse température, ça sera le cas pour les LCQ THz, toujours maintenus à température cryogénique, jusqu'à 10-15 meV, cas plutôt des LCQ MIR qui sont maintenus de 200-250 K jusqu'à température ambiante.

Lorsque Γ augmente, les pics de résonance observés sur la susceptibilité s'élargissent et l'intensité de la susceptibilité diminue. Nous verrons une simulation concrète de $\chi^{(2)}$ pour différentes valeurs de Γ pour la structure du LCQ dans le chapitre IV.

II.3.4 Calcul de $\chi^{(2)}$ dans un système simple

On sera amenés dans la suite de ce manuscrit à décrire et comparer les effets d'optiques non-linéaire obtenus dans un LCQ THz ou dans un LCQ MIR. Ces effets sont très différents dans les deux cas étudiés. On se propose en préambule de ces discussions, de mener dans ce paragraphe des simulations de $\chi^{(2)}$ sur des systèmes simples et très similaires de deux puits quantiques couplés, où seule l'énergie de la transition est différente, dans un cas THz et dans l'autre MIR. Les LCQ sont bien plus complexes que le système de 2 puits couplés étudié ici mais cette approche simple nous permettra de mettre en évidence les transitions impliquées

dans le mélange de fréquences.

La susceptibilité non-linéaire dépend très fortement des énergies des transitions impliquées et des dipôles des transitions impliquées, donc de la structure de bandes. La figure II.11 présente la structure de deux puits de 25 nm et 10 nm séparés par une barrière de 1 nm, obtenant ainsi une transition de 11 meV entre les états électroniques E1 et E2. La figure II.12 présente la structure de deux puits de 5 nm et 2 nm séparés par une barrière de 0.5 nm, obtenant ainsi une transition de 159 meV entre les états électroniques E1 et E2.

On a également tracé sur les figures II.11 et II.11 les carrés des fonctions d'ondes confinées dans les puits quantiques de chaque structure ainsi que les énergies séparant les différents états. On remarque que les fonctions d'ondes des deux structures sont très similaires. De plus, les dipôles interbandes calculés pour deux états équivalents d'une structure à l'autre (ex. dipôle LH1-E1) sont très analogues dans les deux structures. On ne considérera ici que les états de trous légers. On peut remarquer que les dipôles intersousbandes (ex. dipôle E1-E2) sont sensiblement plus élevés (en moyenne d'un facteur 5) pour les transitions dans le THz.

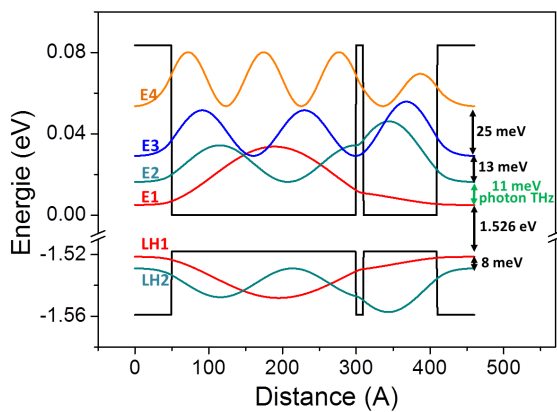


FIGURE II.11 – Simulation de puits couplés avec une transition THz.

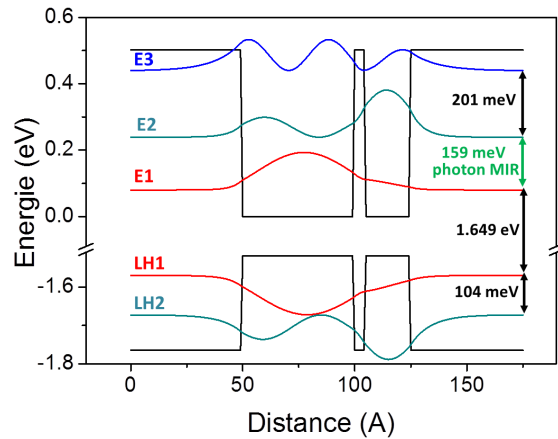


FIGURE II.12 – Simulation de puits couplés avec une transition MIR.

A partir de chacune des structures, on a calculé $\chi^{(2)}$ en fonction de l'énergie de pompe. Ce calcul a été réalisé à la même température (10 K, avec $E_{gap} = 1.518$ eV), avec le même coefficient d'élargissement $\Gamma = 2$ meV dans chaque cas. Les résultats de ces simulations sont présentés sur la figure II.13 pour le système THz et sur la figure II.14 pour le système MIR. On a identifié quand cela était possible la nature de la transition correspondant à chacune des résonances.

On a également mis en avant l'énergie $E_{gap} + E_{LCQ}$. On entendra toujours par "gap", le gap du matériau massif considéré, même dans le cas des puits quantiques et on précisera sinon que l'on parle des premières transitions interbandes dans les puits. Dans les expériences qui vont suivre, on adopte une géométrie particulière, en transmission. L'absorption limite la plage d'énergies de pompe que l'on peut explorer à des énergies à proximité du gap, légèrement supérieures à $E_{gap} + E_{LCQ}$.

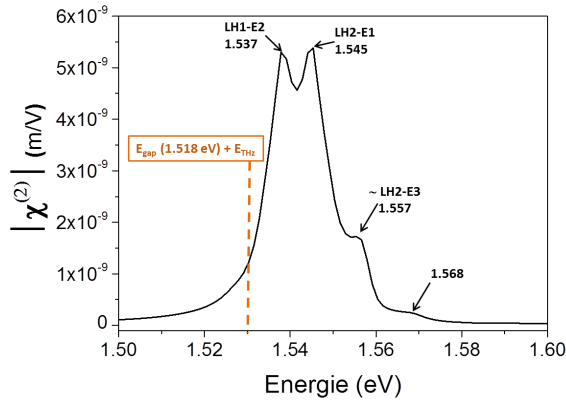


FIGURE II.13 – Simulation de $\chi^{(2)}$ en fonction de l'énergie de pompe, pour un puits couplé THz.

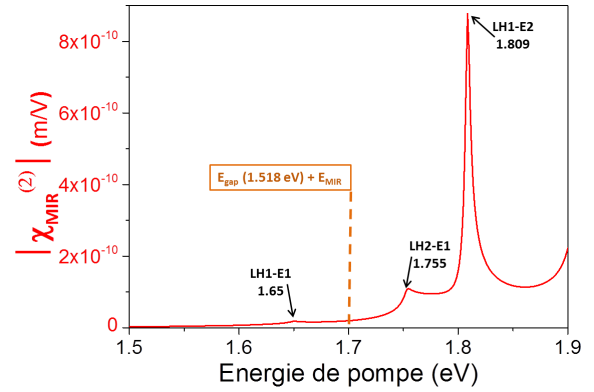


FIGURE II.14 – Simulation de $\chi^{(2)}$ en fonction de l'énergie de pompe, pour un puits couplé MIR.

Pour une énergie de pompe de 1.532 eV, $\chi_{THz}^{(2)}$ vaut 2.10^{-9} m/V. La valeur de $\chi_{MIR}^{(2)}$ pour une énergie de pompe équivalente légèrement supérieure à $E_{gap} + E_{LCQ}$, à 1.75 eV, est de 1.10^{-10} m/V. On trouve ici plus d'un ordre de grandeur d'écart entre ces deux valeurs, dans des conditions d'excitation analogues.

Dans le cas THz, l'énergie de pompe est à environ 10 meV de l'énergie de double résonance où la pompe est à l'énergie de la transition LH1-E2. Compte tenu du coefficient d'élargissement de 2 meV, cette configuration d'excitation profite de la proximité de l'exaltation de $\chi^{(2)}$ pour une excitation doublement résonante. On voit d'ailleurs sur la figure II.13 que la valeur de $\chi^{(2)}$ précédemment relevée ($2 \cdot 10^{-9}$ m/V) se trouve sur la partie de la courbe très fortement croissante en fonction de l'énergie de pompe, celle-ci atteignant son maximum pour une énergie de pompe alors doublement résonante, à l'énergie de la transition LH1-E2.

Dans le cas MIR, l'énergie de pompe est à plus de 100 meV de la condition de double résonance où la pompe est à l'énergie de la transition LH1-E2. La pompe se trouve être vraiment éloignée du cas d'excitation doublement résonante et ne profite pas de l'exaltation contrairement au cas du THz. La figure II.14 que la valeur de $\chi^{(2)}$ précédemment relevée (1.10^{-10} m/V) se trouve sur une partie de la courbe très faiblement croissante, (légèrement piquée à l'énergie de la transition LH2-E1), mais bien loin de l'exaltation très piquée de la double résonance à 1.8 eV.

Les valeurs de $\chi^{(2)}$ doublement résonante (pour une énergie de pompe égale à la transition LH1-E2), sont respectivement de 5.10^{-9} m/V pour le THz et de 9.10^{-10} m/V dans le cas MIR. Ces valeurs diffèrent d'un facteur 5. Ce facteur peut s'expliquer simplement par l'écart des dipôles intersousbandes entre le cas THz et le cas MIR, ces derniers étant plus faibles. Cette différence de valeur des dipôles intersousbandes est un premier argument pour justifier l'écart observé.

L'effet principal justifiant l'ordre de grandeur que l'on observe sur $\chi^{(2)}$ pour des énergies de pompe proches du gap, vient de la proximité de la double résonance dans le cas THz. Pour le cas THz, l'excitation est quasi-doublement résonante donc $\chi^{(2)}$ est bien plus exaltée. L'excitation reste très éloignée en énergie de la double résonance dans le cas MIR, où l'excitation est seulement simplement résonante.

Conclusion

On a présenté dans ce chapitre les bases théoriques nécessaires à la compréhension des expériences d'optique non-linéaire qui vont suivre. On a abordé dans un premier temps l'optique non-linéaire d'un point de vue classique, en se concentrant principalement sur la différence de fréquences. On s'est intéressé au rôle de l'accord de phase et à celui de l'absorption dans ce type d'expériences. On a ensuite traité le mélange de fréquences grâce aux équations de la mécanique quantique, mettant en lumière le phénomène d'optique non-linéaire résonante. Nous nous sommes intéressés aux conditions de réalisation des simulations et aux éventuelles approximations. Enfin, nous avons présenté de premières simulations de $\chi^{(2)}$ pour un système simple de 2 puits couplés, montrant une différence importante de $\chi^{(2)}$ dans des puits quantiques de transition THz et de transition MIR. Cette différence vient en partie d'une différence de valeur des dipôles intersousbandes et principalement d'une exaltation quasi-doublement résonante pour le THz, inaccessible pour le MIR, à des énergies proches du gap.

CHAPITRE III

ETAT DE L'ART EN OPTIQUE NON-LINÉAIRE THz-NIR

Ce chapitre présente l'état de l'art des expériences de mélange de fréquences NIR-THz dans des puits quantiques afin de mettre en contexte le travail présenté dans cette thèse. Ces premières expériences mettent en évidence l'exaltation des propriétés non-linéaires du matériau dans des conditions d'excitation résonante. De premières expériences s'intéressent au mélange résonant ou non dans les LCQ. Elles montrent que les LCQ sont bien adaptés pour les expériences d'optique non-linéaire, combinant source THz et milieu composé de puits quantiques asymétriques. C'est dans ce contexte scientifique que s'inscrivent les précédents travaux de recherche de l'équipe et mes travaux de thèse, cherchant à étendre les résultats obtenus avec des LCQ THz vers les LCQ MIR, vers le domaine télécom et vers d'autres géométries d'excitation. Je présenterai également les motivations fondamentales et applicatives de ce travail.

Introduction

Nous avons vu en introduction du chapitre précédent que l'optique non-linéaire s'est développée dans les années 1960 [46], dès la première démonstration de l'effet laser [45]. Le domaine de l'optique non-linéaire proche infrarouge s'est rapidement étendu grâce à ces nouvelles sources. Dans le domaine térahertz cependant, il faut attendre les années 1990 pour voir des équipes explorer les expériences d'optique non-linéaire dans cette gamme de longueurs d'onde. Grâce au développement en parallèle de l'ingénierie des puits quantiques et des sources intenses térahertz comme les lasers à électrons libres (Free Electron Laser FEL en anglais), les premières expériences de mélange de fréquences entre une pompe NIR et un faisceau THz se mettent en place.

Les motivations pour ces recherches sont à la fois d'intérêt fondamental et plus tournées vers les applications. Le mélange d'ondes résonant dans des milieux comme les puits quantiques agit comme une véritable sonde des états électroniques et des transitions possibles. La possibilité d'exalter la susceptibilité non-linéaire permet de conférer de nouvelles propriétés optiques à certains matériaux, en vue d'éventuels dispositifs. Du point de vue des applications, le mélange d'ondes permet de générer un nouveau faisceau, légèrement décalé en longueur d'onde par rapport au faisceau de pompe. Un faible décalage n'est pas accessible par l'optique non-linéaire NIR seule et nécessite l'ajout de dispositifs électroniques. La conversion de longueur d'onde réalisée tout-optiquement est une perspective prometteuse pour des domaines comme celui des télécommunications.

On présentera au début de ce chapitre un état de l'art des expériences de mélange de fréquences entre un faisceau THz et un faisceau proche infrarouge. On montrera comment l'excitation résonante permet effectivement d'exalter les effets non-linéaires et on verra que pour ce faire, les puits quantiques sont des milieux appropriés. Toutes les précédentes expériences montrent des résultats très prometteurs grâce à l'utilisation d'un laser à électrons libre, source THz très puissante et accordable. Cependant, cette source est très encombrante et coûteuse ce qui la rend difficilement accessible pour d'éventuelles applications. Les systèmes étudiés sont principalement des puits quantiques dans lesquels les états excitoniques sont excités. Ces états très fins permettent des résonances fortes. Les états électroniques ont été brièvement abordés.

Grâce à leur développement en 1994 pour le MIR [1] et 2002 pour le THz [2], les lasers à cascade quantique sont depuis plusieurs années des sources THz et MIR puissantes et compactes. Depuis 2006 et 2007, quelques équipes se sont intéressées à des expériences d'optique non-linéaire THz et MIR impliquant des LCQ, nous les détaillerons dans cette partie. La possibilité de générer du mélange de fréquences dans les LCQ révèle plusieurs intérêts comme la conversion du spectre THz vers le domaine visible ou la stabilisation des LCQ.

Je montrerai enfin comment le travail de mon équipe et mon travail de thèse s'inscrit dans la contexte de ces travaux, en mettant en avant le potentiel des LCQ. Les champs THz intracavité des LCQ peuvent approcher ceux utilisés pour les démonstrations avec les lasers à électrons libres. De plus, la zone active des LCQ étant composée de puits quantiques asymétriques, les non-linéarités interbandes et intersousbandes peuvent être exaltées, faisant des LCQ à la fois des sources puissantes et des milieux non-linéaires potentiellement efficaces. Les expériences d'optique non-linéaire dans les LCQ seraient ainsi bien plus compactes que celles impliquant des lasers à électrons libres et tout intégrées, réunissant la source THz et le milieu non-linéaire.

III.1 État de l'art du mélange de fréquences THz-NIR

Mélange résonant avec des niveaux excitoniques

Le première démonstration de mélange de fréquences entre un faisceau THz et un faisceau NIR résonant a été obtenue à la fin des années 1990, en partenariat entre l'université de Tokyo et celle de Santa Barbara [4]. L'idée de ce travail est d'exciter de manière résonante des excitons de multi-puits quantiques grâce à un rayonnement NIR et d'exciter des résonances intersousbandes entre les différents niveaux excitoniques grâce à une champ THz intense. L'application d'un champ magnétique perpendiculaire au plan des couches apporte un contrôle supplémentaire et permet d'accorder l'énergie des différents niveaux excitoniques, on parlera alors de magnéto-excitons.

Dans cette première référence [4], le milieu d'interaction se compose de couches GaAs/AlGaAs formant des multi-puits quantiques découplés (25 puits de 10 nm de large, séparés par des barrières de 15 nm). La figure III.1 (a) montre la génération d'un faisceau à une énergie $E_{pompe} - 2\hbar\omega_{THz}$ pour une excitation à 784 nm et la figure III.1 (b) montre la génération de faisceaux à des énergies $E_{pompe} + 2\hbar\omega_{THz}$ et $E_{pompe} + 4\hbar\omega_{THz}$ pour une excitation à 797 nm. Dans les deux cas, le faisceau THz est à 3.4 THz et le champ magnétique appliqué vaut 10 T. Seuls les ordres pairs sont générés du fait de la symétrie du système. En effet, les puits identiques étant découplés et sans application de champ électrique le système présente une symétrie d'inversion, ayant pour effet $\chi^{(2)} = 0$. Le processus observé ici résulte donc de non-linéarités d'ordre 3 (mélange à 4 ondes).

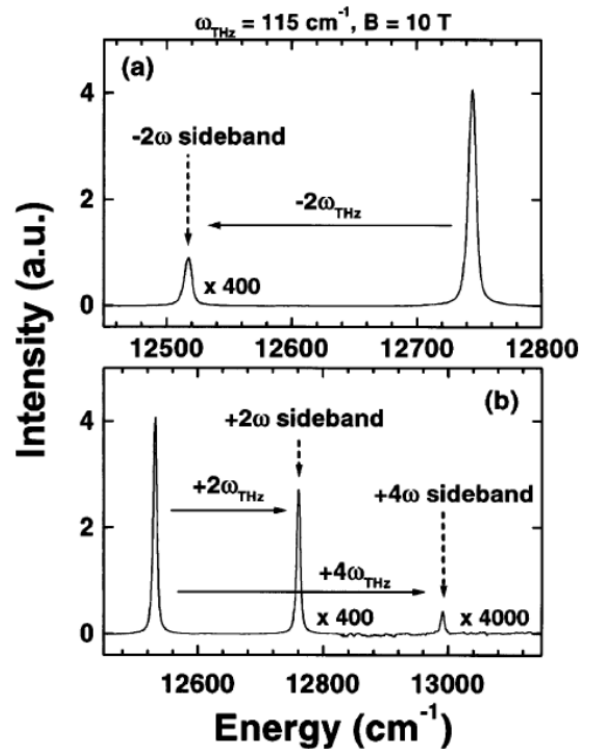


FIGURE III.1 – Spectre de la différence (a) et de la somme (b) de fréquences sous champ magnétique $B = 10$ T). Figure issue de [4].

L'application du champ magnétique perpendiculaire permet de décaler les niveaux magnéto-excitoniques. On peut alors ajuster l'écart en énergie entre les niveaux virtuels impliqués dans le mélange de fréquences et les niveaux réels. L'évolution de l'intensité du faisceau généré à $E_{pompe} + 2\hbar\omega_{THz}$ en fonction du champ magnétique est présentée sur la figure III.2 (i). On observe trois résonances notées (a), (b) et (c) pour différents champs magnétiques. Les résonances sont étroites car le coefficient d'élargissement Γ vaut 1 meV pour des excitons. Pour chaque configuration (a), (b) et (c), l'état des niveaux excitoniques est schématisé sur la figure III.2 (ii).

Les niveaux d'énergie s'éloignent pour des champs magnétiques plus intenses, on peut

ainsi ajuster les états réels en résonance avec les états virtuels impliqués dans le mélange (représentés en pointillés). Le *detuning*, l'écart en énergie entre les états virtuels et réels, est représenté par des zones grisées. Celui-ci est bien plus faible pour les configurations (b) et (c), les conditions de résonance sont alors meilleures, permettant d'exalter la susceptibilité et d'obtenir un mélange plus efficace. On verra par la suite qu'on parle de résonance simple ou double (ou ici dans le cas de $\chi^{(3)}$ de résonance triple).

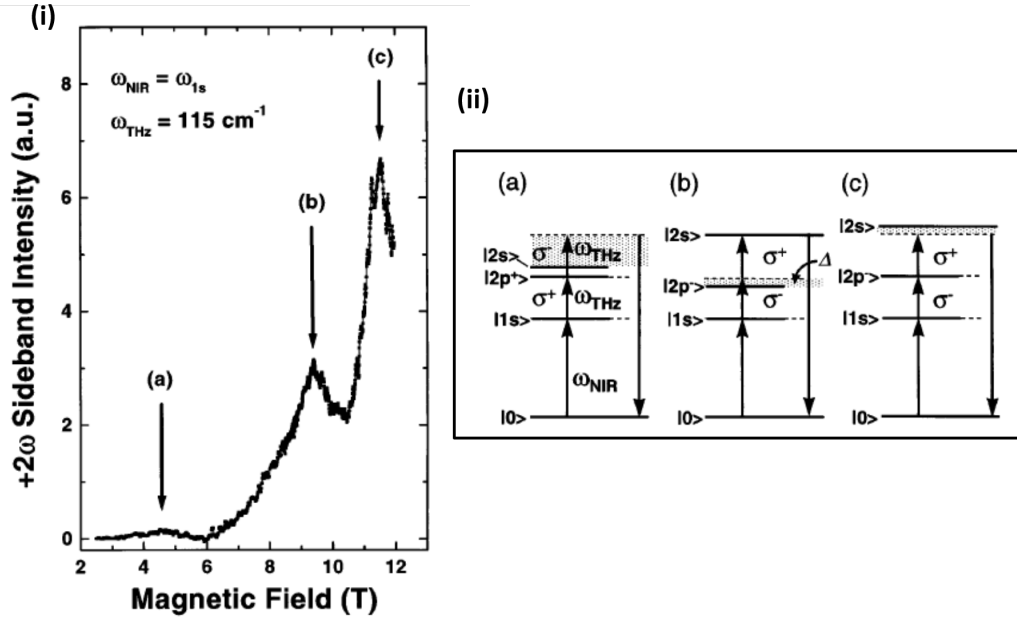


FIGURE III.2 – (i) Évolution de l'intensité du faisceau généré à $E_{\text{pompe}} + 2\hbar\omega_{\text{THz}}$ en fonction du champ magnétique appliqué à la structure. Trois résonances sont indiquées, correspondant aux configurations (a), (b) et (c) de la figure (ii). Les lignes en pointillés représentent les états virtuels et les lignes pleines les états des magnéto-excitons. Les zones grisées montrent l'écart en énergie à une configuration complètement résonante. Figures issues de [4].

D'autres travaux, par exemple [66] [5] [67], ont été menés sur ce même schéma, sur des systèmes excitoniques, grâce au laser à électrons libres de Santa Barbara (US) ou à celui de Dresde (Allemagne). Le travail publié par Carter et al. en 2004 [5] est intéressant car le mélange de fréquences est obtenu dans un système composé de puits quantiques couplés. La symétrie d'inversion est alors brisée et on peut observer la génération à la fois des ordres pairs et des ordres impairs, $E_{\text{pompe}} \pm n \hbar\omega_{\text{THz}}$ avec $n=1,2,3\dots$. L'efficacité maximale atteint 0.2 % pour la génération du premier ordre et la génération des bandes latérales est observable jusqu'à température ambiante. La figure III.3 montre le spectre des bandes latérales générées en excitant des puits quantiques GaAs couplés. On observe bien les ordres pairs et impairs car la symétrie est brisée par le couplage des puits.

De récentes expériences ont été réalisées à Santa Barbara, démontrant la génération de bandes latérales d'ordres supérieurs aux fréquences $E_{\text{NIR}} \pm 2n \hbar\omega_{\text{THz}}$ jusqu'à $n = 8$ [68] puis jusqu'à $n = 14$ [69]. Le phénomène non-linéaire impliqué ici va au-delà de l'approche perturbative et s'apparente au phénomène de génération d'harmoniques d'ordre élevé observé dans les phases gazeuses [48]. Le système de l'exciton (électron / trou) est l'analogue de l'atome (électron / noyau). La première démonstration a été obtenue dans un système de puits

InGaAs/AlGaAs. Les auteurs ont observés le même phénomène dans du GaAs massif [70]. On reviendra sur ces expériences et sur l'origine du phénomène dans les perspectives, où l'on présente la préparation de projets de génération de bandes latérales d'ordre supérieur grâce sous excitation THz d'un LCQ. On verra également des travaux très récents de génération de bandes latérales d'ordre supérieur dans les dichalcogénures de métaux de transition [71].

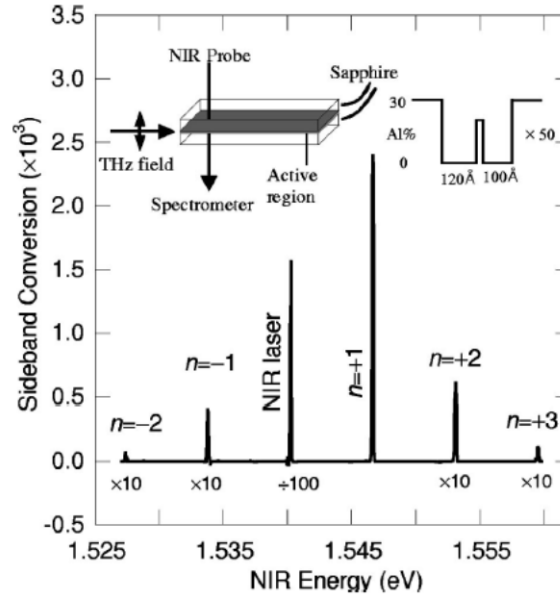


FIGURE III.3 – Génération de bandes latérales d'ordre pair et impair dans des puits couplés de GaAs, sous excitation NIR et THz. Figure issue de [5].

Mélange résonant avec des niveaux électroniques

Il existe très peu d'études d'optique non-linéaire à partir d'excitation de niveaux électroniques, la quasi-totalité des expériences menées l'ont été via l'excitation de niveaux excitoniques. On peut tout de même citer le travail de la référence [72], où le mélange entre un faisceau THz et un faisceau NIR est comparé dans des puits de GaAs non-dopés (transitions excitoniques) et dans des puits de GaAs dopés (transitions électroniques). Les niveaux peuvent être ajustés grâce à l'application d'un champ électrique continu perpendiculaire au plan des couches. Les résultats obtenus par excitation des états électroniques sont qualitativement analysés grâce à un modèle de $\chi^{(2)}$ s'appuyant sur 3 niveaux (1 trou et 2 électrons). Les auteurs montrent que comme la génération de bandes latérales est une réponse cohérente du système de puits quantiques, le mélange THz-optique permet de sonder la dynamique des transitions intersousbandes. Ils proposent en perspective de sonder les états d'un LCQ, toute la détection étant opérée directement dans le domaine NIR.

Mélange de fréquences dans les LCQ

Grâce au développement de LCQ de plus en plus puissants dans le domaine THz et MIR, quelques équipes se sont intéressées à l'idée de réaliser des expériences d'optique non-linéaire dans les LCQ. En terme de puissance THz disponible, les puissances intracavité des LCQ THz ($\approx 10 \text{ kW/cm}^2$) sont comparables aux puissances utilisées dans les précédentes démonstrations s'appuyant sur le rayonnement de lasers à électrons libres.

Dans une première démonstration, réalisée en 2006 à Imperial College [6], les auteurs proposent de se servir du LCQ à la fois comme source de rayonnement MIR et comme milieu non-linéaire. Une fente est ouverte sur la surface supérieure du LCQ, pour permettre une excitation NIR perpendiculaire au plan des couches, via cette ouverture. La géométrie d'excitation est présentée sur la partie (a) de la figure III.4. Pour permettre cette géométrie de collection en réflexion, le guide d'ondes du LCQ a dû être adapté, il a fallu faire croître des couches de miroirs de Bragg sur la partie inférieure du LCQ. La partie (b) de la figure III.4 montre l'évolution de la somme de fréquences générée, en fonction de la longueur d'onde de pompe. Cette mesure met en évidence que le faisceau généré à la somme des fréquences possède la même polarisation que le faisceau de pompe. On observe une résonance pour $\lambda_{NIR} = 756$ nm, correspondant à la condition de double résonance.

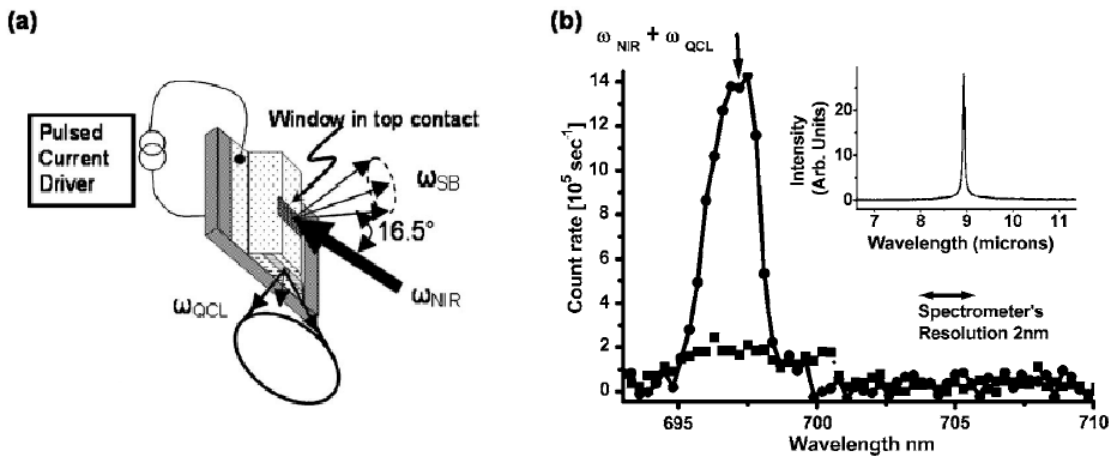


FIGURE III.4 – (a) Géométrie d'excitation du LCQ, via une fente ouverte sur la surface de celui-ci. (b) Intensité du faisceau de somme de fréquences généré en fonction de la longueur d'onde pompe NIR, comparée à l'intensité après passage dans un polariseur croisé. Inset, spectre d'émission de LCQ à 9 μm . Figures issues de [6].

Dans cette configuration, les auteurs obtiennent une efficacité de conversion relativement faible de l'ordre de $10^{-4}\%$ à basse température (15 K). De plus, le LCQ a dû être modifié en profondeur, avec la croissance des couches de miroirs de Bragg et l'ouverture sur la surface. On s'intéressera dans cette thèse à dépasser ces limites d'efficacité et de température. On adoptera pour les premières démonstrations une géométrie en transmission plus facile à implémenter.

En parallèle de ces travaux, un deuxième groupe s'est intéressé à l'optique non-linéaire dans les LCQ. Ils ont proposé d'utiliser le LCQ comme source THz et d'opérer le mélange de fréquences à l'intérieur de la cavité du LCQ, en se servant d'une couche de GaAs massif comme milieu non-linéaire. Ils ont adopté pour cela une géométrie d'excitation en transmission. [7]. La différence importante de ces travaux avec tout ce qu'on a vu jusqu'à présent, repose sur le fait que l'excitation est ici hors résonance. La génération du mélange de fréquences n'est alors possible qu'en remplissant les conditions d'accord de phase.

Le schéma de l'expérience proposée est représenté sur la partie (a) de la figure III.5. Une couche de GaAs massif, de 1 μm d'épaisseur est ajoutée au milieu de la croissance du LCQ THz. Cette couche va servir de milieu non-linéaire pour le mélange mais également de guide pour le faisceau d'excitation télécom, car à ces fréquences, l'indice est plus élevé dans la couche

de GaAs que les couches de la zone active environnante. On peut voir sur la partie (b) de la figure III.5 que les conditions d'accord de phase ne peuvent être remplies que pour de certaines longueurs d'onde, par exemple ici avec un excitation à 1.3 μm et à 100 μm dans le THz, grâce à un fort indice dans GaAs massif pour le THz. Cette technique ne peut donc pas être étendue à d'autres longueurs d'onde comme le MIR.

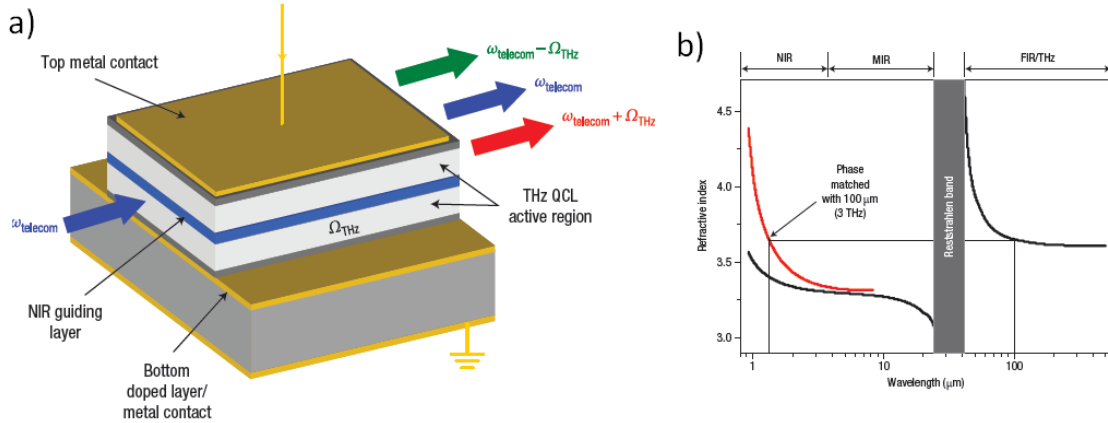


FIGURE III.5 – (a) Schéma de la géométrie d'excitation du LCQ THz, par un laser télécom. Le mélange généré est collecté en transmission. (b) Principe d'accord de phase entre le THz et le NIR. Figures issues de [7].

Les auteurs ont montré la génération de la SFG et de la DFG entre le faisceau d'excitation à des fréquences télécom et le faisceau THz du LCQ, dans une couche de GaAs massif. Le spectre obtenu pour le LCQ à guide simple plasmon est présenté sur la figure III.6. La réussite du mélange dans cette expérience vient du fait que les fréquences sont finement ajustées pour remplir les conditions d'accord de phase.

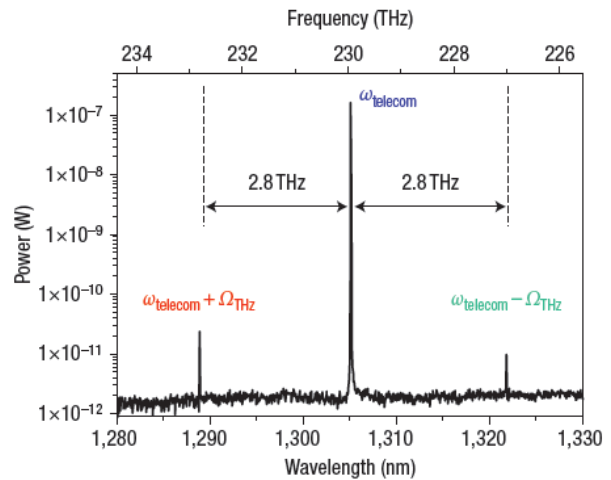


FIGURE III.6 – Exemple de spectres de la SFG et de la DFG générées dans un LCQ à guide simple-plasmon. Figure issue de [7].

Mélange de fréquences dans les LCQ pour générer du THz

Les résonances intersousbandes peuvent être extrêmement importantes [73] [74]. A partir d'une structure adaptée émettant deux longueurs d'ondes MIR (7.1 μm et 9.5 μm), la génération de la somme de fréquences entre les deux faisceaux ainsi que le deuxième harmonique de chaque fréquence a pu ainsi être démontrée en 2003. Ces dernières années, ces résultats ont pu être étendus et utilisés pour permettre la génération de THz à température ambiante, en

généralant la différence entre deux faisceaux de fréquence MIR dans un LCQ. Une revue récente de ces travaux [75] montre les avancées de ces travaux, il est maintenant possible de générer plus de 2 mW de puissance THz (puissance crête) à température ambiante. La géométrie du mélange est schématisée sur la partie (a) de la figure III.7. Le mécanisme de résonance intersubbande est présenté dans la partie (b). A cause des fortes pertes sur le faisceau THz dans le LCQ lui-même le faisceau THz utile qui sort du LCQ n'est obtenu que dans les 100 μm avant la facette. Pour améliorer l'extraction du rayonnement THz, une nouvelle géométrie a été proposée, basée sur le schéma d'accord de phase Cherenkov [76]. Ce schéma est représenté sur la partie (c) de la figure III.7. En plus des performances d'émission à température ambiante, ces structures permettent une grande accordabilité de la fréquence générée, sur près de 5 THz.

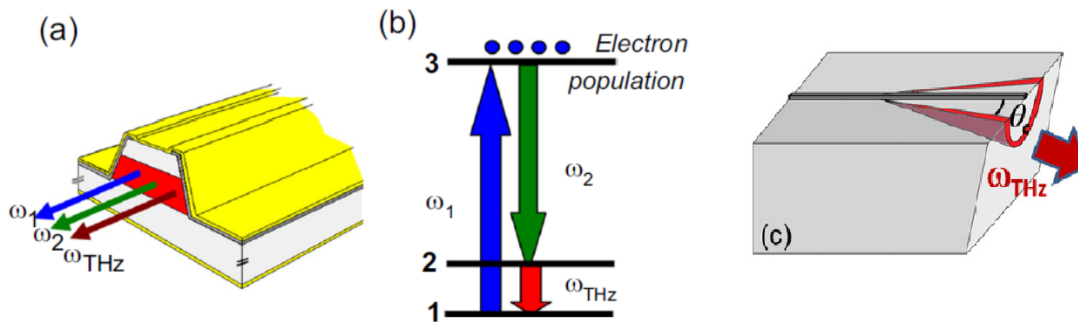


FIGURE III.7 – (a) Géométrie de la génération du THz par différence de fréquences dans un LCQ MIR. (b) Mécanisme du mélange résonant par transitions intersubbandes. (c) Schéma d'accord de phase Cherenkov. Figures issues de [75].

Nous avons vu dans cette partie l'état de l'art des expériences de mélange de fréquences NIR-THz dans des puits quantiques ainsi que des premières expériences de mélange résonant ou non dans les LCQ. A la lumière de ces travaux, nous pouvons noter qu'une excitation résonante permet d'exalter considérablement les propriétés non-linéaires d'un matériau. Dans des puits quantiques, les résonances avec des transitions interbandes ou intersubbandes sont particulièrement efficaces. De plus en brisant la symétrie des puits, on peut générer des bandes latérales à la fois aux ordres pairs et impairs. Les lasers à cascade quantique semblent tout à fait adaptés pour ces expériences, combinant source THz et milieu composé de puits quantiques asymétriques.

C'est dans le contexte scientifique présenté dans l'état de l'art de la sous-partie précédente que s'inscrivent mes travaux de recherche de thèse. Ces travaux s'appuient sur de précédentes expériences menées dans l'équipe depuis quelques années sur l'optique non-linéaire résonante dans les LCQ, en utilisant à la fois le LCQ comme source de rayonnement THz et milieu non-linéaire. Je montrerai plusieurs avancées importantes en élargissant la gamme de longueurs d'onde explorée.

III.2 Précédents travaux de l'équipe

La première démonstration de mélange de fréquences résonant dans un LCQ THz en géométrie de transmission à 10 K a été obtenue en 2012 [8]. Un faisceau NIR est couplé à l'aide d'un objectif dans la cavité d'un LCQ THz doté d'un guide d'ondes simple-plasmon. Lorsque l'énergie de pompe est ajustée en résonance avec les états électroniques des puits quantiques du LCQ (au-delà de l'énergie de gap) et que le LCQ est allumé, il est possible de

générer un faisceau à la DFG entre la pompe optique et le faisceau THz du LCQ, comme le montre la figure III.8.

Le mélange de fréquences s'opère en transmission à travers le LCQ : le faisceau est généré à l'extrémité opposée de celle éclairée par la pompe optique. Le gain intrinsèque du LCQ évite les problèmes de pertes sur le faisceau THz.

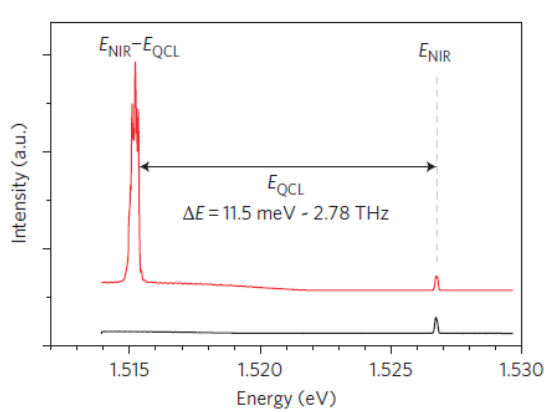


FIGURE III.8 – Génération d'un faisceau à la différence d'énergie entre celle de pompe optique et celle du LCQ, lorsque celui-ci est allumé.

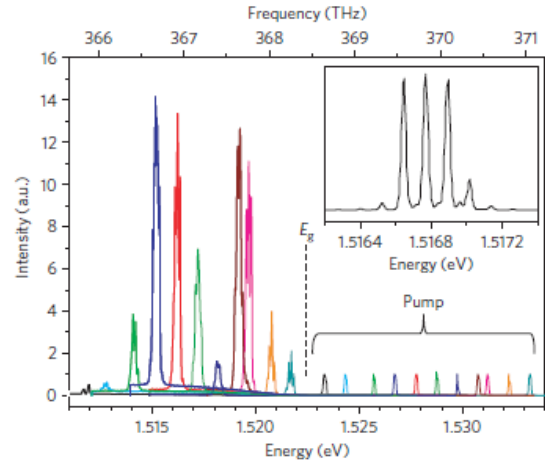


FIGURE III.9 – Génération de la différence de fréquences pour différentes énergies de pompe optique.

Dans cette première publication, les auteurs montrent que l'intensité du faisceau généré varie en fonction de l'énergie de pompe, voir figure III.9. Du fait de la géométrie en transmission, à plus haute énergie de pompe, la DFG est absorbée sur quelques microns dans la cavité et ne peut plus être transmise jusqu'en sortie du LCQ afin d'être détectée. Ils démontrent également que ce processus de conversion tout-optique est obtenu avec une efficacité de 0.1%, comparable à celle obtenue pour des expériences menées avec des lasers à électrons libres.

Cette première démonstration a été réalisée en utilisant un LCQ THz doté d'un guide simple plasmon. Comme nous l'avons vu dans la partie I.3, le champ THz n'est pas totalement confiné et s'échappe dans le substrat. La puissance THz intracavité est un facteur important de l'efficacité du mélange de fréquences. L'équipe s'est donc intéressée à la génération de différence de fréquences dans des LCQ dotés de guides d'ondes double-métal, où le champ THz est bien mieux confiné. La génération de bandes latérales d'ordres supérieurs telles que le faisceau généré ait une énergie $E_{\text{généré}} = E_{\text{pompe}} - n \cdot E_{\text{LCQ}}$ où $n = 1, 2$ ou 3 , a pu être démontrée dans ces structures [9]. La figure III.10 résume les résultats obtenus dans ces LCQ.

Comme on l'a vu dans la partie théorique, un des points-clés de ces expériences réside dans le fait que l'efficacité du processus est indépendante des conditions d'accord de phase. En effet, comme les pertes de pompe sont bien supérieures au désaccord de phase, la longueur d'interaction est suffisamment courte pour que les conditions d'accord de phase n'interviennent pas, c'est le cas dans ces démonstrations expérimentales.

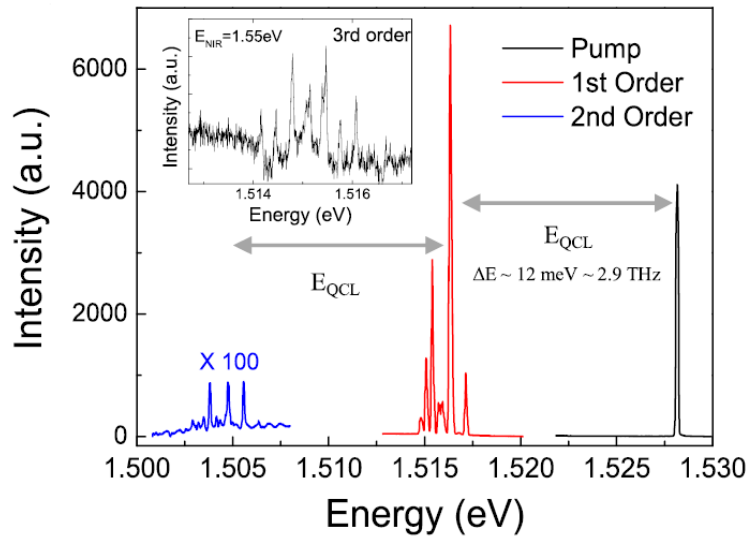


FIGURE III.10 – Génération de bandes latérales d'ordres supérieurs.

III.3 Motivations de mon travail de thèse

Les précédents résultats obtenus dans l'équipe étaient très prometteurs et ouvraient la voie vers une réalisation facilitée et compacte de mélange de fréquences entre un faisceau NIR et un faisceau THz. Cependant de nombreuses limites restaient encore à dépasser et c'est dans ce contexte que s'inscrit mon travail de thèse.

Les premières démonstrations ont été obtenues dans des LCQ THz, composés de couches GaAs/AlGaAs maintenus à température cryogénique. La première idée que j'ai développée pendant ma thèse était d'étendre le mélange de fréquences aux LCQ MIR. Ce premier travail s'appuie sur le travail précurseur de Pierrick Cavalié sur les LCQ THz et la première implémentation des LCQ MIR pour le mélange d'ondes [53]. Étant donné que le phénomène est indépendant de l'accord de phase, il devrait être aisé d'étendre ces expériences et d'explorer une nouvelle gamme de longueurs d'onde. Ce décalage vers le MIR n'aurait pas été possible dans le cas d'une excitation non-résonante où l'accord de phase est indispensable.

La technologie des LCQ MIR est plus mature que celle des LCQ THz, les LCQ MIR peuvent émettre plusieurs centaines de mW à température ambiante. Avec plus de puissance intracavité disponible et des cavités plus compactes que pour les LCQ THz, on s'attend à obtenir du mélange de fréquences plus efficace dans le domaine MIR que dans le domaine THz, compensant des non-linéarités plus faibles. Ce processus non-linéaire mis en œuvre avec des LCQ MIR reste intéressant pour des applications en conversion de fréquences, entre la fréquence de pompe d'entrée et la fréquence de mélange d'onde générée en sortie. Cette conversion qui permettait un décalage d'une dizaine de nanomètres avec des LCQ THz, permettrait un décalage de typiquement 70 nm, ouvrant une accordabilité des faisceaux plus étendue. De plus, on pourrait également s'affranchir du refroidissement cryogénique et aller vers un processus de conversion rendu possible à température ambiante, condition fortement encouragée en vue d'éventuelles applications industrielles.

Mon travail expérimental pendant cette thèse s'articule selon trois axes qui seront les sujets des chapitres IV, V et VI :

- génération de la DFG dans les LCQ MIR basés sur GaAs jusqu'à température ambiante, sous excitation résonante autour de 800 nm.
- génération de la DFG et de la SFG dans les LCQ THz et MIR basés sur InP sous excitation dans la gamme télécom, jusqu'à température ambiante pour les LCQ MIR. Démonstrations des applications possibles au décalage de longueur d'onde entre 1.3 μm et 1.55 μm .
- génération de la DFG et de la SFG dans une nouvelle géométrie en réflexion pour dépasser les limites dues à l'absorption.

Le travail présenté dans cette thèse est motivé par différentes perspectives à la fois applicatives et fondamentales. Tout d'abord, les expériences présentées dans cette thèse sont prometteuses en termes d'applications pour le domaine des télécommunications, comme l'obtention de décalage de longueur d'onde de manière tout-optique. La réalisation de réseaux tout-optiques, c'est-à-dire qui ne sont pas des assemblages de fibres optiques reliées les unes aux autres par des nœuds électriques, est actuellement un enjeu primordial pour la rapidité des transmissions sur fibre car celle-ci n'est plus limitée que par l'électronique. La figure III.11 montre l'atténuation que subit un faisceau en fonction de sa longueur d'onde, dans une fibre. La transmission est limitée à d'étroites plages de longueurs d'onde à cause de l'absorption de certaines molécules. La transition entre la bande à 1.3 μm et celle à 1.55 μm pourrait être obtenue par exemple grâce à la génération de DFG et SFG dans un LCQ MIR basé sur InP à 9 μm .

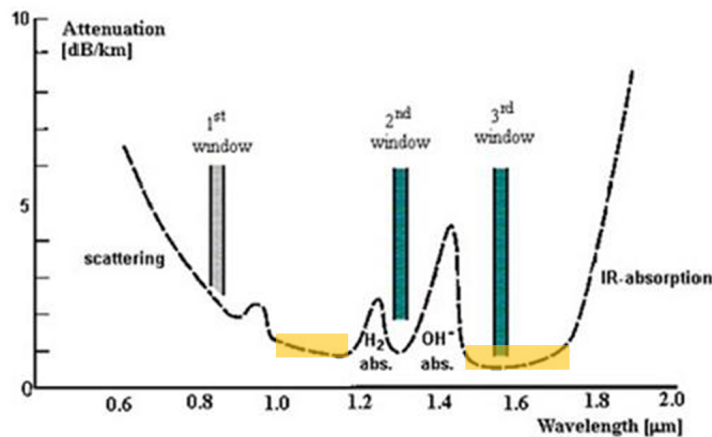


FIGURE III.11 – Atténuation d'un faisceau transmis dans une fibre optique en fonction de la longueur d'onde du faisceau. Les fenêtres de transmission utilisées sont représentées en vert. Les plages exploitables présentant une faible atténuation sont surlignées en orange.

La génération d'un peigne composé de plusieurs longueurs d'onde très proches autour d'une longueur d'onde centrale afin d'améliorer la transmission d'une onde télécom, appelée multiplexage de longueurs d'ondes (Wave Division Multiplexing WDM en anglais), peut également être simplifiée grâce au mélange d'ondes dans les LCQ. Les ordres supérieurs qui peuvent être générés dans les LCQ THz, sont séparés par seulement quelques nanomètres, comme pour le multiplexage grossier (Coarsed WDM). La génération de bandes latérales d'ordre supérieur à travers les LCQ, une fois optimisée, permettrait cette réalisation toute-optique, sur une large

fenêtre de longueurs d'onde.

Un autre point est intéressant, nous verrons que les caractéristiques du LCQ THz ou MIR sont transférées dans le proche infrarouge via le mélange de fréquences. La détection du spectre du LCQ est fortement simplifiée car elle peut être réalisée en n'utilisant que des détecteurs pour le NIR, plus aboutis et plus accessibles que ceux dans le THz. Ce transfert de caractéristiques permet également de transférer une modulation électrique haute fréquence du LCQ (plusieurs dizaines de GHz) en modulation d'intensité du faisceau de mélange dans la gamme télécom. Actuellement, la modulation d'un faisceau télécom est limitée à quelques GHz. Grâce au transfert de modulation vers la gamme télécom, on pourrait dépasser cette limite.

Les applications potentielles sont prometteuses mais nécessitent un travail d'optimisation pour atteindre des efficacités de conversion compatibles avec le milieu industriel. Les expériences que j'ai développées dans cette thèse permettent en premier lieu de comprendre les effets non-linéaires résonants dans un LCQ et de mettre en évidence les différentes contributions des transitions impliquées dans les non-linéarités.

Ces expériences présentent également un intérêt fondamental croissant comme technique pour sonder les états électroniques de la matière. Grâce aux résonances du processus, on accède aux énergies des transitions. Grâce aux comparaisons avec les simulations de la susceptibilité non-linéaire, on peut ajuster et optimiser les structures de bandes. Grâce aux progrès constants des performances des LCQ, nous mettrons en évidence le potentiel des LCQ comme source de rayonnement THz pour des expériences d'optique non-linéaire tout-intégrées.

Conclusion

J'ai présenté dans ce chapitre l'état de l'art des expériences de mélange de fréquences entre une pompe NIR résonante et un rayonnement THz, exploitant l'exaltation des non-linéarités par résonance dans des puits quantiques. Dans ces démonstrations, le rayonnement THz est obtenu par l'émission de lasers à électrons libres. Des expériences préliminaires s'intéressent au mélange résonant ou non dans les LCQ. Elles montrent que ces sources sont très prometteuses pour des expériences d'optique non-linéaire, combinant source THz et milieu non-linéaire composé de puits quantiques. Les précédents travaux de l'équipe ainsi que mes propres travaux de recherche s'inscrivent dans la continuité de ces démonstrations dans le THz. Mon travail propose de les poursuivre et de les étendre à d'autres longueurs d'onde, vers les LCQ MIR et le domaine télécom, vers un fonctionnement à température ambiante et vers d'autres géométries d'excitation, pour une meilleure compréhension du phénomène mis en jeu et d'éventuelles applications.

CHAPITRE IV

MÉLANGE D'ONDES DANS LES LCQ MIR BASÉS SUR GAAS

Ce chapitre présente la première démonstration de génération de la différence de fréquences dans les LCQ MIR basés sur GaAs, entre une excitation interbande résonante et le faisceau MIR du LCQ. Le mélange de fréquences a été obtenu jusqu'à température ambiante. L'évolution de l'intensité de la DFG en fonction de l'énergie de pompe sera étudiée et comparée aux simulations théoriques de $\chi^{(2)}$ développées pour cette structure, afin de mettre en évidence les effets de résonance. On donne une valeur de $\chi^{(2)}$ déduite des mesures d'efficacité de génération de la DFG, en bon accord avec la valeur théorique issue des simulations. Enfin, la susceptibilité non-linéaire sera comparée dans le cas du mélange de fréquences dans les LCQ THz et dans les LCQ MIR, mettant en avant une efficacité plus forte dans les LCQ THz.

Introduction

Au chapitre précédent, nous avons vu l'état de l'art des expériences d'optique non-linéaire résonante entre un faisceau NIR et un faisceau THz issu d'un laser à électrons libres. Ces démonstrations dans les puits quantiques sont très intéressantes mais limitées par l'accès à ces sources encombrantes. Les précédents travaux de l'équipe sur des expériences d'optique non-linéaire dans les LCQ ont démontré la génération de la différence de fréquences entre une excitation NIR interbande et un LCQ THz basé sur GaAs. Ces résultats ont montré que le mélange de fréquences était indépendant du désaccord de phase car ce dernier était très faible devant les pertes sur le faisceau de pompe résonant ($\alpha_p \gg \Delta k$). Dans ces conditions, il est envisageable d'étendre le domaine de longueurs d'onde des LCQ. Dans la continuité du travail précurseur de Pierrick Cavalié [53], j'ai investigué le mélange de fréquences dans les LCQ MIR. L'objectif de ce travail était à la fois d'explorer une autre gamme de longueurs d'onde mais aussi de dépasser les limitations à des températures cryogéniques des démonstrations dans les LCQ THz.

Ce chapitre présentera la première démonstration de génération de la DFG sous excitation résonante NIR dans un LCQ MIR. On montre ainsi que les résultats obtenus dans le domaine THz peuvent être étendus au domaine MIR. On a également réussi à obtenir la génération de la DFG jusqu'à température ambiante, ouvrant la voie vers de possibles applications. On montrera le comportement résonant de la génération de la DFG en fonction de l'énergie de pompe. Ce comportement peut être comparé aux simulations de susceptibilité non-linéaire d'ordre 2, développées dans cette thèse (présentées dans le chapitre II), pour comprendre l'évolution observée. A partir d'une mesure de l'efficacité, on proposera une valeur expérimentale de $\chi^{(2)}$ pour le mélange dans les LCQ MIR. Cette valeur sera comparée à la valeur théorique prévue par les simulations. On reviendra sur les résultats obtenus précédemment dans les LCQ THz afin de comparer les valeurs de $\chi^{(2)}$ obtenues dans ces deux configurations de mélange de fréquences. On proposera plusieurs explications et on conclura en justifiant la différence de valeur de $\chi^{(2)}$ observée entre THz et MIR.

IV.1 Principe et dispositif expérimental

IV.1.1 Principe de l'expérience

Pour la mise en évidence du mélange de fréquences dans les LCQ MIR jusqu'à température ambiante, nous avons opté pour la géométrie en transmission précédemment utilisée par l'équipe pour démontrer le mélange de fréquences dans les LCQ THz. Dans cette configuration, les trois faisceaux impliqués dans le mélange (la pompe NIR, le faisceau LCQ et la DFG générée) sont colinéaires et se propagent dans le plan des couches de semiconducteur, comme le montre le schéma artistique de la figure IV.1.

Le faisceau NIR excite de manière résonante les puits quantiques du LCQ. Il est donc focalisé et aligné finement pour se coupler dans la zone active du LCQ. En présence du faisceau NIR couplé et du champ THz du LCQ et grâce à l'exaltation des non-linéarités par excitation résonante, un faisceau est généré à la DFG entre le NIR et le THz.

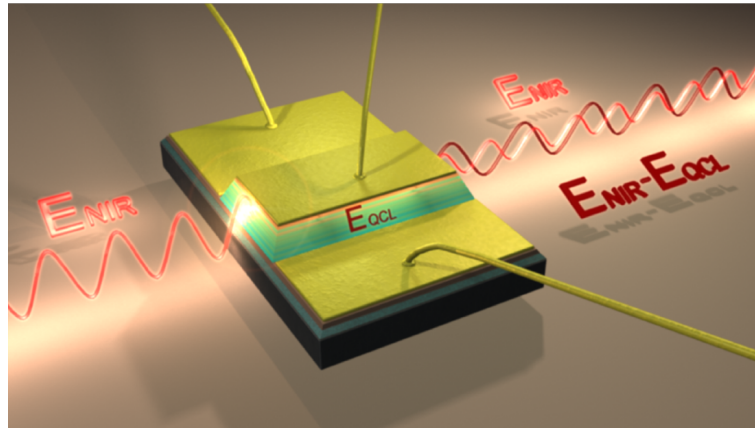


FIGURE IV.1 – Vue d'artiste du mélange d'ondes en transmission dans un LCQ. Figure de [8], de David Darson.

IV.1.2 Montage en transmission

La figure IV.2 présente un schéma de principe du montage expérimental en transmission. Le LCQ est inséré dans un cryostat à circulation qui permet de le refroidir à l'aide d'hélium liquide jusqu'à 4 K ou à l'aide d'azote liquide jusqu'à 77 K. La température est ajustée via un contrôleur de température et fixée à la valeur souhaitée, jusqu'à température ambiante. Le cryostat est doté d'une tête étroite avec des fenêtres permettant les accès optiques à de faibles distances de travail. On a utilisé des fenêtres en quartz, transparentes dans le NIR et peu absorbantes dans le THz et des fenêtres en CaF_2 transparentes dans NIR et très peu absorbantes dans le MIR.

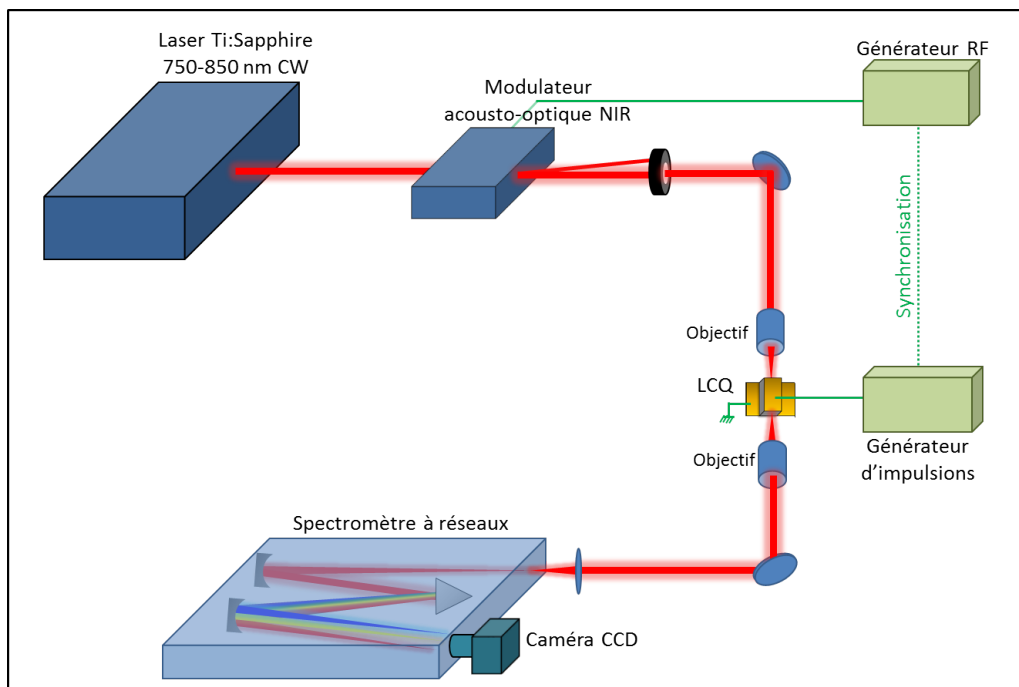


FIGURE IV.2 – Schéma du montage expérimental de génération du mélange d'ondes en transmission à travers un LCQ.

La source laser utilisée dans cette partie est un laser Titane-Saphir continu et accordable en longueur d'onde de 720 nm à 850 nm. La puissance délivrée peut atteindre 1 W en continu mais seuls quelques mW sont nécessaires pour nos expériences. La puissance est donc atténuée et ajustée à l'aide de densités optiques. Le faisceau de pompe ainsi généré va traverser un modulateur acousto-optique. Ce dernier peut moduler l'intensité du faisceau de pompe selon une fonction créneau choisie. Cette étape nous permet de synchroniser la pompe optique avec l'alimentation impulsionnelle du LCQ. Si la pompe NIR excite le LCQ sans synchronisation, la photoluminescence générée empêche la détection du signal recherché. Le modulateur acousto-optique est composé d'un cristal d'oxyde de tellure (TeO_2) soumis à l'excitation d'un transducteur piézo-électrique. Cette excitation génère une onde acoustique stationnaire. Par diffusion Brillouin (interaction photon-phonon acoustique), une partie du faisceau NIR sera déviée d'un angle Θ et modulée selon la fréquence d'excitation.

Le premier objectif permet de focaliser la pompe pour la coupler dans le LCQ. C'est un objectif de microscope de marque Mitutoyo constitué de lentilles plano-apochromatiques (grossissement $\times 100$) qui permet d'obtenir un spot de l'ordre de $1 \mu\text{m}$. La lumière émise en sortie du LCQ est collectée à l'aide d'un objectif de grossissement $\times 20$. Le rayonnement collecté est analysé au moyen d'un spectromètre à réseaux couplé à une caméra CCD (Couple-Charge Device). Cette caméra, mise au point par David Darson au service d'électronique du LPA, est composée de détecteurs en Silicium et est refroidie par des modules Peltier jusqu'à -20°C . Le spectromètre est équipé de 3 réseaux avec différentes densités de lignes : 300 lignes/mm (centré à 500 nm), 1200 lignes/mm (centré à 750 nm) et 1800 lignes/mm (centré à 500 nm). Ces réseaux permettent d'obtenir la dispersion du signal sur des fenêtres de 40 nm, 8.5 nm et 4 nm respectivement. On obtient ainsi une résolution de 0.03 nm, 0.006 nm et 0.003 nm respectivement.

IV.1.3 Mesure de photoluminescence en réflexion

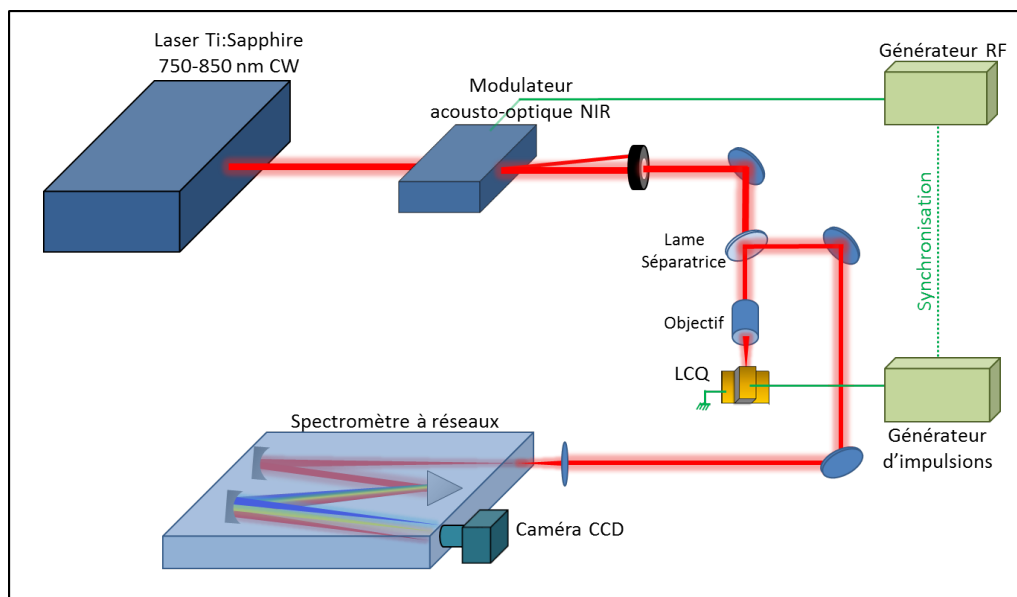


FIGURE IV.3 – Schéma du montage expérimental de mesure de la photoluminescence d'un LCQ par réflexion sur la facette.

La mesure de la photoluminescence d'un LCQ est une source d'informations précieuse pour caractériser un échantillon car elle permet d'avoir accès aux valeurs de l'énergie de gap du matériau massif et souvent de l'énergie des états électroniques de plus basse énergie. La photoluminescence ne peut pas être mesurée en transmission à travers le LCQ, avec le montage expérimental vu précédemment. En effet, son énergie étant par définition supérieure à l'énergie du gap, la photoluminescence est absorbée sur quelques microns sans pouvoir atteindre l'extrémité de sortie du LCQ. Pour mesurer la photoluminescence, on met en place un montage expérimental en réflexion, en collectant les faisceaux réfléchis lors de l'excitation de la facette. Dans cette configuration, la photoluminescence est résolue spatialement sur une distance de l'ordre du μm , on peut notamment observer la photoluminescence des couches de guide.

Le montage expérimental est adapté pour permettre cette mesure en réflexion. Pour cela, on ajoute devant l'objectif de couplage une lame séparatrice qui permet de récupérer et de dévier le signal réfléchi sur la facette, l'objectif servant alors à la fois pour le couplage dans le LCQ et pour la collection des faisceaux réfléchis. On choisit une lame qui réfléchit 90 % pour maximiser la collection du signal réfléchi. Celui-ci est ensuite guidé jusqu'au spectromètre et à la caméra où il est détecté. Les modifications du montage sont mises en évidence sur la figure IV.3.

IV.2 Caractérisation du LCQ

IV.2.1 Structure de bandes

Pour cette première démonstration de mélange de fréquences dans un LCQ, à température ambiante, nous avons utilisé un LCQ MIR dont le design est basé sur une structure de couches GaAs/Al_{0.45}Ga_{0.55}As [20]. Ce laser a montré une bonne émission à température ambiante, comme nous le verrons sur les caractéristiques LIV dans la partie IV.2.3.

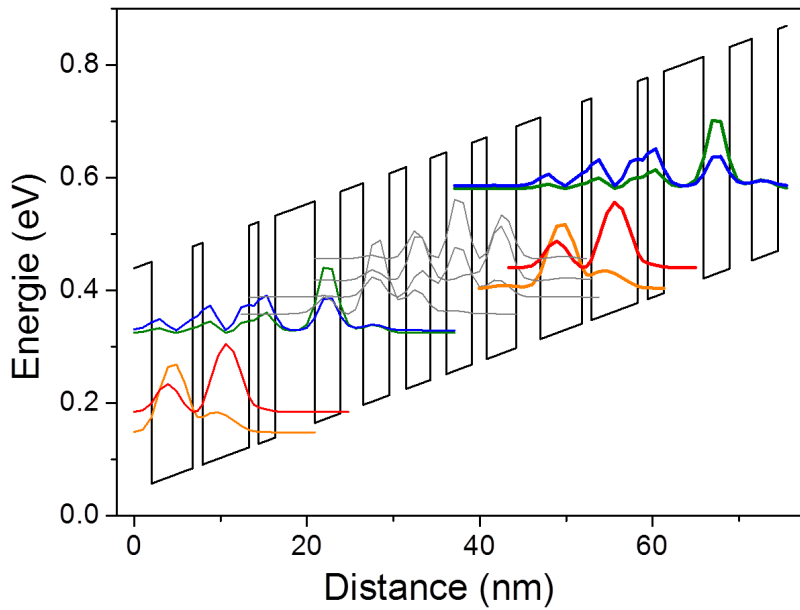


FIGURE IV.4 – Structure de bandes du LCQ MIR GaAs (L1010), la séquence de croissance est : **4.6/1.9/1.1/5.4/1.1/4.8/2.8/3.4/1.7/3.0/1.8/2.8/2.0/3.0/2.6/3.0** nm. Les couches barrière de $\text{Al}_{0.45}\text{Ga}_{0.55}\text{As}$ sont marquées en gras. Les couches dopées type n en silicium sont soulignées ($8e17 \text{ cm}^{-3}$ pour les puits et $4.4e17 \text{ cm}^{-3}$ pour les barrières).

Dans un premier temps, on peut s'intéresser à la structure de bandes et aux fonctions d'ondes des états confinés, présentés figure IV.4. On peut voir que la structure de bandes comporte une minibande qui assure le transport électronique vers la zone d'émission où a lieu la transition laser. Le dernier état de la minibande (en vert) permet d'injecter des porteurs dans l'état haut de la transition (en bleu). La transition laser a lieu entre l'état haut et l'état bas (en rouge). L'état bas de la transition est dépeuplé par émission d'un LO-phonon (36 meV) vers un état inférieur (en orange), faisant partie de la minibande. Pour aligner la structure, on utilise un champ de 57 kV/cm. La croissance comporte 45 périodes ce qui permet de bonnes performances du LCQ en puissance et en température, jusqu'à température ambiante.

IV.2.2 Guide d'ondes adapté pour le mélange de fréquences

Comme on l'a vu dans la partie I.3.1, les guides d'ondes habituels pour les LCQ MIR basés sur GaAs s'appuient sur un guidage par "renforcement par plasmon" dans des couches de GaAs très dopées (couches notées C1). Des couches de GaAs moins dopées (notées C2) servent de tampon et limitent les pertes par absorption dans ces guides plasmoniques. Une structure typique de guide pour ces LCQ est répertoriée dans le tableau 4.

	C1	C2	ZA
Epaisseur (μm)	1.0	3.5	1.6
Dopage (cm^{-3})	$6e18$	$8e16$	$1.4e17$
Aluminium (%)	0	0	17

Table 4 – Caractéristiques des couches d'un guide d'ondes classique pour un LCQ MIR basé sur GaAs.

Pour obtenir le mélange de fréquences dans les LCQ, il est indispensable d'avoir un fort recouvrement spatial des modes NIR et MIR que l'on souhaite faire interagir avec le milieu non-linéaire ici les puits quantiques de la zone active. Pour cela, le guide d'ondes du LCQ doit pouvoir confiner à la fois le mode MIR dans la zone active comme il le fait habituellement, mais aussi le mode NIR pour obtenir le recouvrement spatial nécessaire. La figure IV.5 présente les simulations de confinement optique du mode MIR (en vert) et des modes principaux NIR (en rouge) dans un guide classique composé de couches de GaAs dopées (couches C1 et C2 décrites dans le tableau 4). L'indice de réfraction pour le NIR est représenté en bleu.

Le mode MIR, calculé à $9.2 \mu\text{m}$, présente un bon confinement dans la zone active du LCQ. Le guide renforcé par plasmon dans les couches de GaAs dopées, permet de confiner le mode MIR avec un recouvrement de 35% dans la zone active. Cependant, le mode NIR fondamental, calculé à 770 nm , ne peut se confiner que d'un côté ou de l'autre de la zone active, dans les couches C2 du guide d'ondes. En effet, pour le NIR l'indice de réfraction de la zone active est plus faible que l'indice du guide, il n'est donc pas possible de confiner les deux modes dans la zone active par contraste d'indice avec ce type de guide.

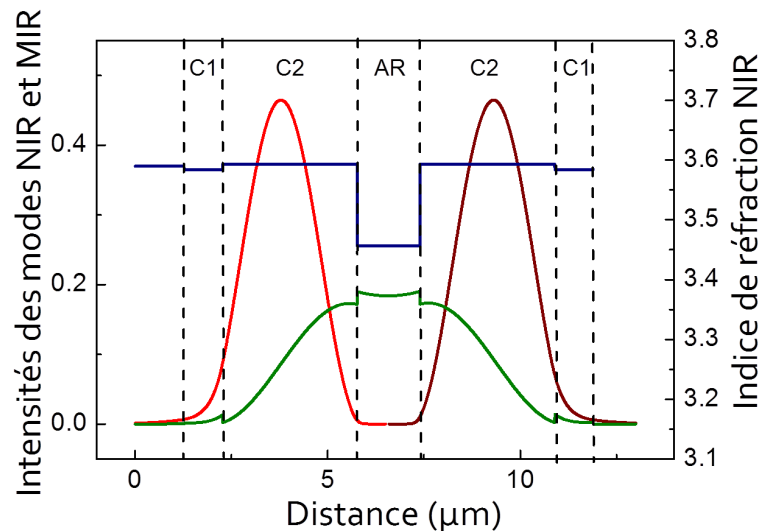


FIGURE IV.5 – Simulation du guidage du faisceau MIR ($9.2 \mu\text{m}$, représenté en vert) et du faisceau proche infrarouge (770 nm , représenté en rouge) pour un guide habituel de LCQ MIR. L'indice de réfraction pour le NIR est tracé en bleu.

On voit dans cette configuration que les modes MIR et NIR ont un certain recouvrement spatial entre eux avec la couche de guide de GaAs massif. Cependant, dans un matériau massif la symétrie n'est pas brisée comme dans les puits quantiques de la zone active. La susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 est donc très faible et le mélange de fréquences à 3 ondes n'est pas réalisable. On a vérifié expérimentalement, il n'y a génération de la DFG dans ce cas.

Pour palier ce problème, nous avons développé un nouveau guide d'ondes auquel on ajoute une couche C3, renforcée en aluminium, pour obtenir un confinement diélectrique du mode NIR dans la zone active. Les couches C1 et C2 ont été amincies pour garder une épaisseur totale de guide sensiblement identique. Le descriptif des différentes couches de ce guide est présenté dans le tableau 5.

	C1	C2	C3	ZA
Épaisseur (μm)	1.5	1.0	2.5	2.0
Dopage (cm^{-3})	6e18	1e18	1e17	1.4e17
Aluminium (%)	0	0	25	17

Table 5 – Caractéristiques des couches du guide d'ondes pour un LCQ MIR basé sur GaAs renforcé par des couches AlGaAs pour assurer le confinement du mode NIR dans la ZA.

Cette couche supplémentaire renforcée en aluminium présente un indice de réfraction dans le NIR plus faible que celui de la zone active, permettant de confiner le champ NIR dans cette dernière. Les simulations des modes MIR (vert) et NIR (rouge) dans ce guide ainsi que l'indice de réfraction NIR (bleu) sont représentés sur la figure IV.6. On voit qu'on peut effectivement très bien confiner le champ NIR dans la zone active avec un recouvrement presque total (99 %). Le confinement du champ MIR est même meilleur, avec un recouvrement avec la zone active de 44 % et des pertes de 13.4 cm^{-1} . Le facteur de mérite de ce guide pour le MIR est donc de 3.2, légèrement meilleur que le facteur de mérite du guide habituel en GaAs dopé qui était de 2.6 (voir I.3.1).

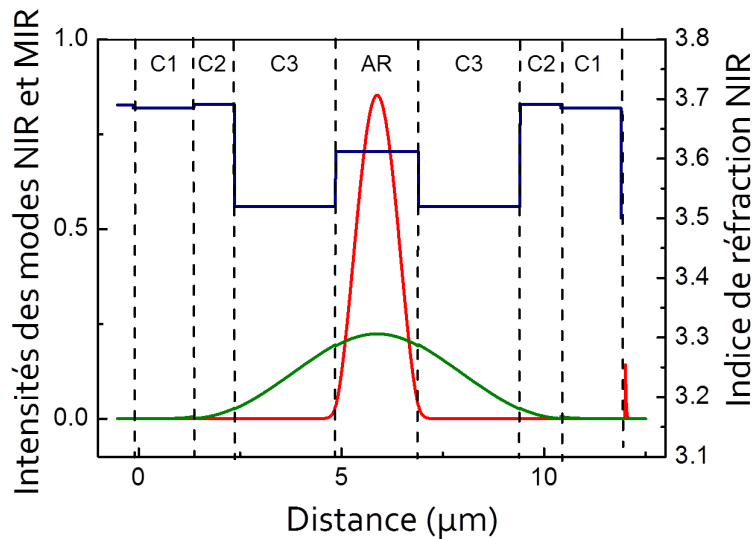


FIGURE IV.6 – Simulation du guidage du faisceau MIR ($9.2 \mu\text{m}$, représenté en vert) et du faisceau NIR (770 nm , représenté en rouge) dans le guide adapté au mélange d'ondes dans le LCQ MIR. L'indice de réfraction pour le NIR est tracé en bleu.

Le guide d'ondes est maintenant bien adapté pour le mélange de fréquences entre la pompe NIR et le faisceau MIR du LCQ et le recouvrement entre les deux modes optiques et le milieu non-linéaire est garanti pour permettre la génération de la DFG.

IV.2.3 Caractéristique LIV

La croissance de cet échantillon a été réalisée sous épitaxie par jet moléculaire chez nos collaborateurs de l'université de Leeds en Angleterre. Le process (présenté dans la partie I.4.3) a été réalisé par nos collaborateurs du laboratoire MPQ. La dissipation thermique de la puissance électrique injectée étant plus difficile à cause des couches de guide AlGaAs, la couche d'or supérieure a été renforcée par une couche épaisse d'or électrolytique.

L'échantillon de code L1010, dont on présente les caractéristiques, se présente sous forme d'un ruban de 12 μm de large et 1.5 mm de long (sauf mention différente). Il a été alimenté à 1 % de rapport cyclique (fréquence de 70 kHz, impulsion de 150 ns). La figure IV.7 présente la caractéristique Puissance-Tension-Courant de ce LCQ. Cette figure montre deux types de données. Le premier est l'évolution de la tension mesurée aux bornes du LCQ en fonction du courant qui traverse la structure (axe de gauche), à 210 K. La mesure de tension s'effectue directement grâce à un oscilloscope connecté au LCQ. Le courant est mesuré grâce à une sonde de courant.

Le deuxième type de mesures est l'évolution de la puissance MIR émise par une facette du LCQ en fonction du courant dans le dispositif, pour différentes températures de 210 K à 300 K. L'émission du LCQ est collectée puis focalisée sur le détecteur à l'aide de deux lentilles de ZnSe adaptées au MIR. On peut ensuite utiliser un détecteur rapide qui permet d'avoir accès à la puissance crête émise par le LCQ ou un détecteur moyen calibré (Thorlabs).

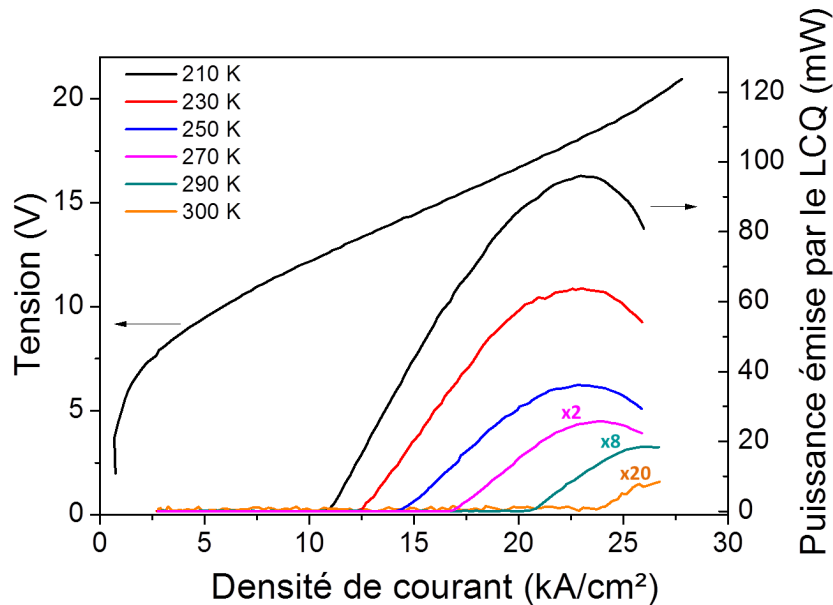


FIGURE IV.7 – Caractéristiques Puissance-Tension-Courant de l'échantillon L1010 (guide adapté) pour différentes températures.

Le seuil auquel cet échantillon commence à émettre un rayonnement laser est assez élevé (10 kA/cm^2 à 210 K). Le LCQ présente un maximum d'émission de 100 mW pour un courant de 22 kA/cm^2 . Le courant de seuil à cette température est analogue à celui de la référence [20] mais la puissance maximale publiée dépasse les 600 mW. Cette différence peut s'expliquer par l'absence d'optimisation de la croissance d'une telle structure. Le fonctionnement en température du LCQ est limité par le transport électronique dans les couches d'AlGaAs du guide à basse température. La figure IV.8 montre une photo prise au microscope électronique du LCQ MIR basé sur GaAs.

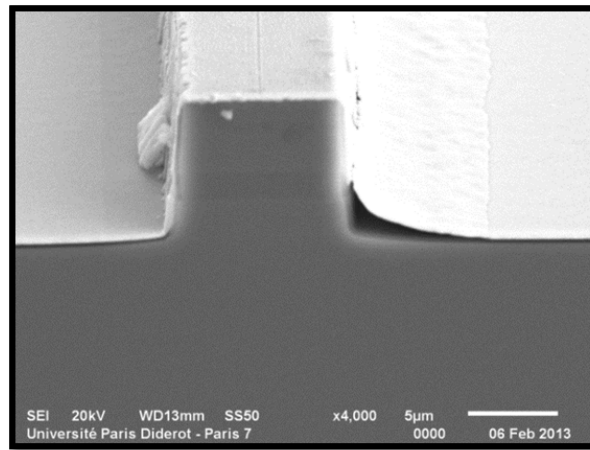


FIGURE IV.8 – Exemple de photo au microscope électronique du LCQ MIR basé sur GaAs, après process.

IV.3 Première démonstration et étude en énergie

IV.3.1 Génération de la différence de fréquences à 210 K

Le LCQ L1010 présente de plutôt bonnes performances en température (IV.2.3) et un guide à présent adapté au mélange d'ondes (IV.2.2). A l'aide du dispositif détaillé dans la partie IV.1.2, nous avons pu démontrer la génération de DFG entre une pompe optique et le faisceau MIR de ce LCQ.

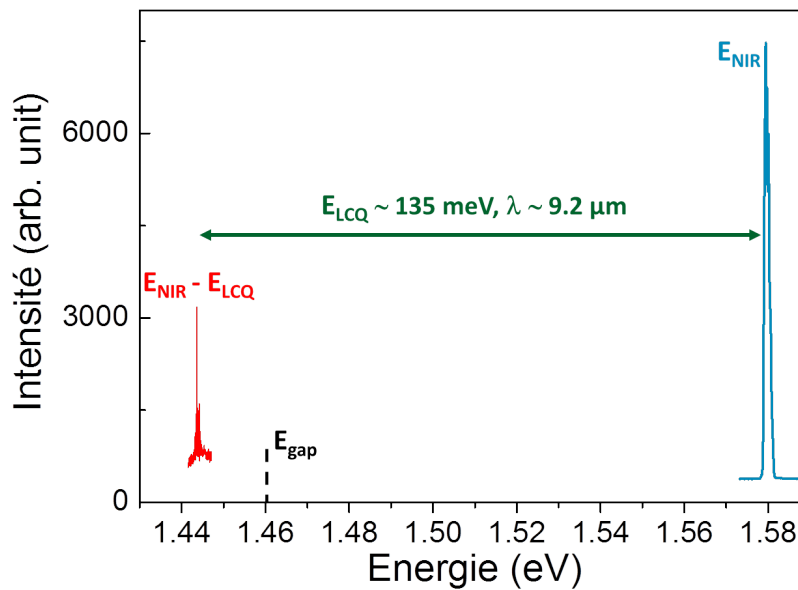


FIGURE IV.9 – Génération de la DFG entre une pompe optique et le faisceau MIR du LCQ L1010.

Il s'agit de la première démonstration de génération de la DFG entre un faisceau NIR et le LCQ MIR. Cette démonstration a été obtenue à 210 K, ce qui est déjà bien au-delà des températures d'opération pour les LCQ THz. Le spectre du faisceau généré est présenté sur la figure IV.9, pour un LCQ de 1 mm de long. La pompe (en bleu) excite le LCQ, au-delà de l'énergie du gap ($E_{gap} = 1.46$ eV à 210 K), en résonance avec les premiers états électroniques. Lorsque le LCQ est alimenté, celui-ci émet un faisceau MIR à une longueur d'onde de $9.2 \mu\text{m}$ (environ 135 meV). En couplant la pompe résonante dans la zone active du LCQ alimenté, on génère un faisceau à une énergie égale à la différence entre l'énergie de pompe et l'énergie d'émission du LCQ (en rouge sur le spectre figure IV.9), inférieure à l'énergie du gap.

Ce processus non-linéaire résonant peut être utile pour générer un faisceau décalé en longueur d'onde, obtenir le spectre du LCQ comme nous allons le voir, mais aussi grâce au caractère résonant, sonder les états de la structure de bandes.

Si on observe la DFG avec un réseau plus fin, on remarque plusieurs modes, comme le montre la figure IV.10. Le faisceau de pompe étant monomode, les modes observés sur la DFG correspondent directement aux modes du LCQ qui ont été transférés sur la DFG lors du mélange. Ces modes sont séparés d'une fréquence d'environ 45 GHz. La précision sur cette mesure est limitée à 1 GHz par la résolution du réseau du spectromètre (1800 lignes/mm). Cette fréquence correspond aux modes de cavité du LCQ, qui ici a une longueur de 1 mm.

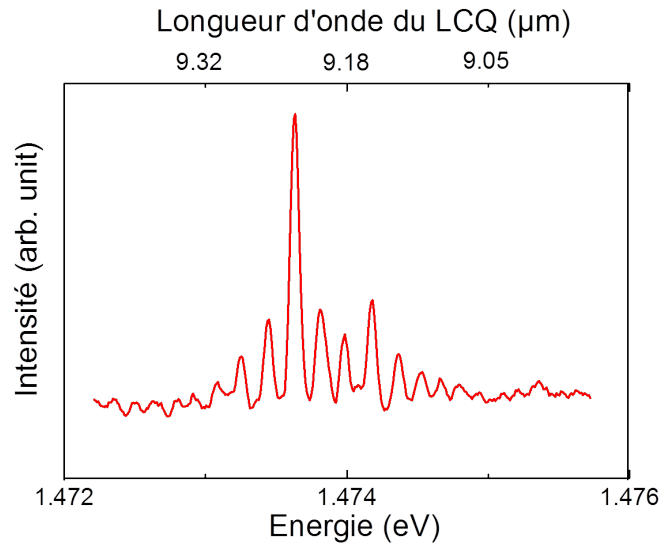


FIGURE IV.10 – Zoom de la DFG générée

Le LCQ a une longueur (L) de 1 mm et l'indice de groupe du faisceau MIR est de 3.25 (semblable à l'indice effectif dans le MIR). Les modes de cavité sont séparés d'une fréquence $f = \frac{c}{2nL} = 46$ GHz, correspondant à l'écart mesuré entre les modes du faisceau généré. Cette observation est très importante car elle montre que les caractéristiques du champ MIR du LCQ sont transférées vers le NIR lors du mélange de fréquences. On peut ainsi obtenir les caractéristiques des modes du LCQ avec un dispositif de détection basé uniquement sur la technologie visible (caméra CCD). Cette technologie est bien plus mature et facilement disponible que la technologie de détection dans le THz et MIR, souvent sophistiquée et coûteuse.

Par exemple cette technique de détection des modes du LCQ a été mise en place dans notre équipe, pour caractériser un LCQ activement bloqué en modes. On a pu observer l'élargisse-

ment spectral entre le régime libre et le régime bloqué en modes. Le détail de ces expériences ainsi que les spectres obtenus sont présentés dans l'annexe A. On verra dans les perspectives une autre application du transfert des caractéristiques du LCQ dans le NIR pour les applications haute fréquence.

IV.3.2 Évolution en fonction de l'énergie de pompe

Nous avons étudié l'évolution de l'intensité de la DFG générée en fonction de l'énergie de pompe. Cette étude devrait nous permettre de mettre en lumière le comportement résonant du processus non-linéaire. Les résultats expérimentaux de cette étude sont présentés sur la figure IV.11 par des symboles noirs. Chaque symbole correspond à l'intensité intégrée (aire sous la courbe) du spectre de DFG obtenu pour une énergie de pompe donnée. On observe que la génération de la DFG est plus efficace lorsque l'énergie de pompe augmente, jusqu'à 1.61 eV. C'est a priori le comportement auquel on s'attend pour un processus d'optique non-linéaire résonant en géométrie de transmission, comme on l'a vu dans la partie théorique II.2.3. On rappelle que l'on définit l'énergie du gap E_{gap} comme l'énergie du matériau massif, ici GaAs, que l'on distinguera des premières transitions interbandes dans les puits quantiques.

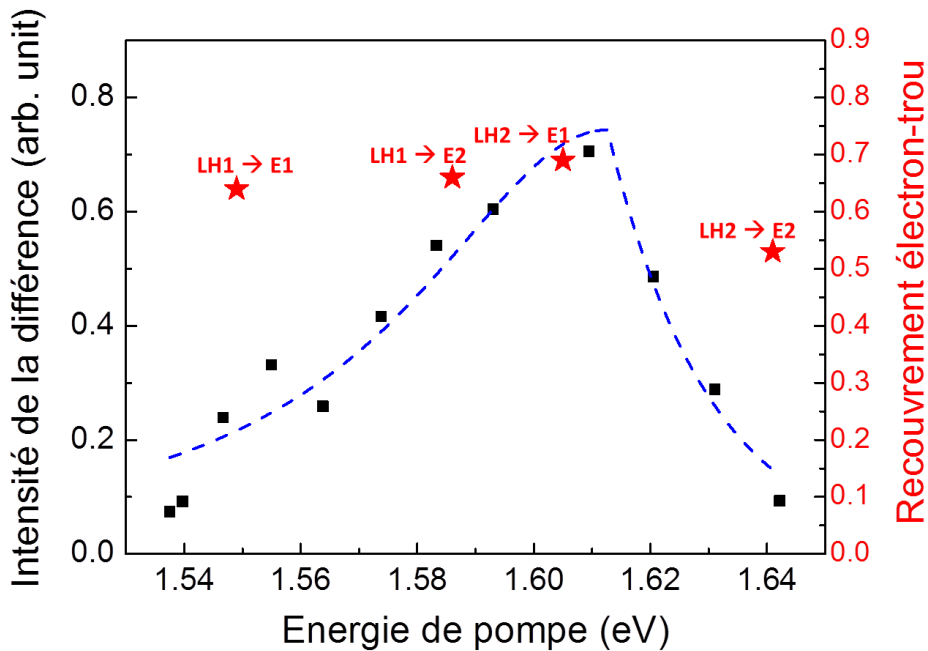


FIGURE IV.11 – Évolution de l'intensité intégrée de la DFG en fonction de l'énergie de pompe (en noir, unités arbitraires), approchée par une courbe en deux parties, lorentzienne-exponentielle décroissante. Cette évolution est superposée avec les principaux recouvrements électron-trou (étoiles rouges).

Au-delà d'une énergie de pompe de 1.61 eV, l'efficacité diminue très rapidement jusqu'à ce que le mélange ne puisse plus être détecté. Cette rapide diminution s'explique par l'absorption de la DFG. Pour générer la DFG, la pompe a toujours une énergie supérieure à celle du gap, pour être résonante avec les états électroniques. Pour de faibles énergies de pompe, l'énergie de la DFG générée est inférieure à l'énergie du gap et des premières transitions, elle n'est donc pas absorbée par la zone active et peut être guidée jusqu'en sortie du LCQ. Pour de plus hautes énergies de pompe, l'énergie de la DFG augmente et la DFG est rapidement

absorbée (sur quelques microns) et ne peut donc plus être détectée dans cette géométrie en transmission. Cet effet d'absorption à hautes énergies est schématisé sur la figure IV.12.

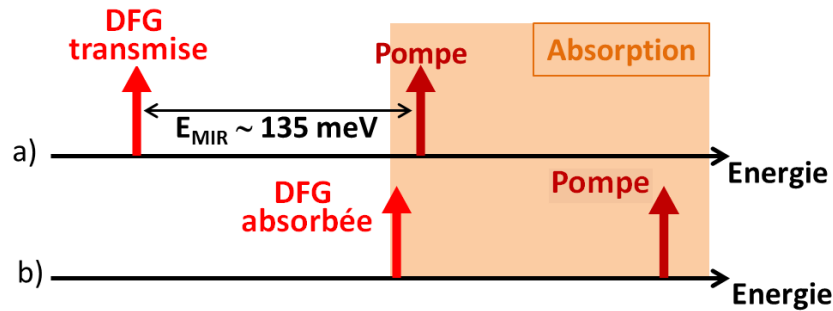


FIGURE IV.12 – Schéma résumant les configurations d'excitation. a) la pompe est résonante (et absorbée) et la DFG est transmise. b) La pompe et la DFG sont absorbées dans la cavité du LCQ.

Pour une énergie de pompe de 1.615 eV, la DFG, générée à 1.48 eV, commence à être absorbée. La DFG est générée au-delà du gap du GaAs massif à 1.46 eV à 210 K, mais bien en dessous des premières transitions électroniques, attendues vers 1.54-1.55 eV. Ce décalage de l'absorption vers des énergies plus basses peut être dû à une diminution du gap suite à une élévation de la température du fait de la dissipation de la puissance électrique ou à des transitions diagonales en présence du champ électrique appliqué.

L'évolution de l'intensité de la DFG en fonction de l'énergie de pompe est approchée sur la figure IV.11 par une courbe en deux parties (courbe bleue en pointillés) : une partie lorentzienne à basse énergie et une exponentielle décroissante à haute énergie. Cette compréhension était celle que l'on avait au début de ma thèse [53]. Elle s'appuyait sur la description d'une résonance simple, approchée par une lorentzienne en fonction de l'énergie de pompe. A haute énergie, l'exponentielle décroissante en fonction de l'énergie de pompe est une approximation pour décrire l'absorption du mélange de fréquences dans le LCQ. Notre compréhension actuelle est plus complète et plus précise. Comme l'absorption est très rapide, il y a peu d'informations à récupérer de la partie décroissante. On verra au chapitre VI comment décrire cette décroissance lorsqu'on parvient à en limiter en partie les effets. Pour la partie croissante, nous allons montrer que les effets de résonance peuvent être compris en comparant l'évolution de l'efficacité du mélange avec l'évolution du module au carré de la susceptibilité non-linéaire en fonction de l'énergie de pompe.

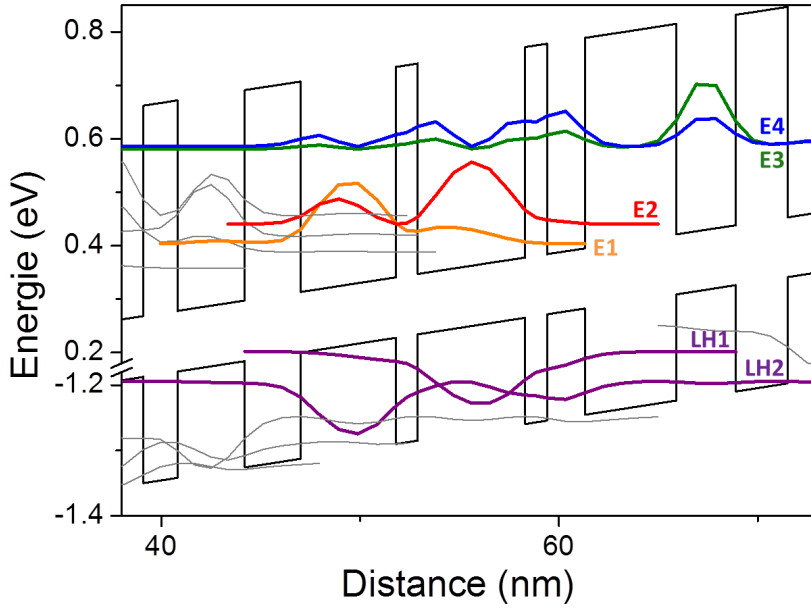


FIGURE IV.13 – Structure de bandes du LCQ MIR L1010. Les 6 états pris en compte dans le calcul de la susceptibilité non-linéaire sont en couleur.

Il est intéressant de comparer cette évolution avec l'intensité des recouvrements électrons légers. Les états concernés sont représentés sur la structure de bandes figure IV.13. Dans cette configuration d'excitation par la facette, la pompe est polarisée TM, perpendiculairement au plan des couches, la pompe excite principalement les transitions électron-trou léger (règles de sélection vues au chapitre I). Nous avons vu dans la partie II.2 que l'intensité de la DFG générée pouvait être exaltée lorsque la pompe est résonante avec des transitions des puits quantiques. On voit effectivement que le mélange est plus efficace à proximité des transitions LH1-E2 et LH2-E1. On peut également remarquer un épaulement vers 1.55 eV, qui correspond à l'énergie de la transition LH1-E1. Bien que le recouvrement soit intense pour cette transition, cette transition est simplement résonante et très éloignée en énergie des conditions de double résonance plus favorables.

Nous avons vu au chapitre II (équations II.4 et II.6) que l'efficacité du mélange est proportionnelle au module au carré de $\chi^{(2)}$. On s'intéresse donc à la comparaison de l'évolution de l'intensité générée avec $|\chi^{(2)}|^2$. Pour cela, on a calculé $\chi^{(2)}$ pour la structure de bandes de la zone active du LCQ. Ces simulations ont été menées dans les conditions décrites dans le chapitre II. La transition du LCQ étant verticale, on fait l'approximation de ne prendre en compte que 2 états trous légers (LH1 et LH2) et 4 états électroniques, impliqués dans la transition laser (E1, E2, E3 et E4). Les états considérés sont représentés sur la figure IV.13. Les recouvrements calculés précédemment (présentés sur la figure IV.11) confirment la validité de cette approximation car on voit que seules des transitions entre les premiers états électrons et trous ont lieu dans la gamme d'énergie explorée entre 1.54 - 1.64 eV. Le LCQ étant maintenu à une température de 210 K, nous avons pris un coefficient $\Gamma = 10$ meV, en accord avec la référence [64]. On montrera dans la partie IV.4.2 les effets de Γ et donc celui de la température sur $\chi^{(2)}$.

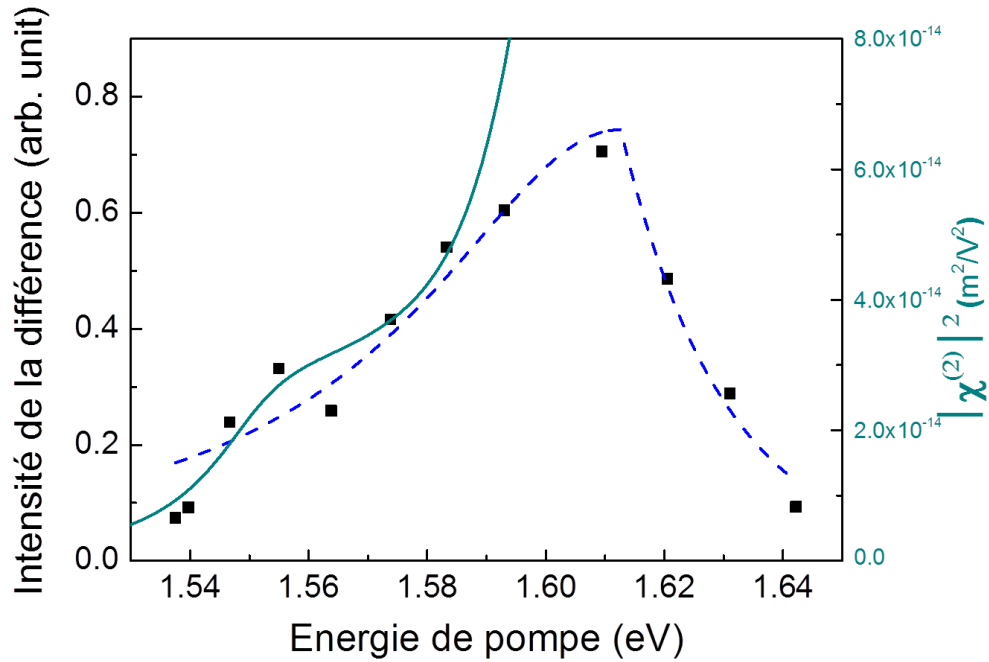


FIGURE IV.14 – Évolution de l’intensité intégrée de la DFG en fonction de l’énergie de pompe (en noir, unités arbitraires). Cette évolution est superposée avec le module au carré de la susceptibilité non-linéaire, calculé pour la structure de bandes du LCQ L1010.

Le module au carré de $\chi^{(2)}$ ainsi calculé est tracé en vert sur la figure IV.14, superposé aux données expérimentales de l’intensité intégrée de la DFG générée en fonction de l’énergie de pompe. Bien que la gamme d’énergie sur laquelle on peut comparer ces deux courbes est limitée à 100 meV à cause de l’absorption, on reconnaît des caractéristiques communes. Le module au carré de $\chi^{(2)}$ est une fonction croissante en fonction de l’énergie de pompe. On voit que comme sur les données expérimentales, la susceptibilité théorique montre un épaulement autour de 1.55 eV, correspondant à la transition LH1-E1. Le module au carré de $\chi^{(2)}$ augmente plus rapidement que l’évolution de l’intensité du mélange, à partir d’une énergie de pompe de 1.59 eV. Ce décalage pourrait s’expliquer par le début de l’absorption de la DFG au voisinage de l’énergie de gap. La comparaison cesse d’être pertinente lorsque l’absorption est plus importante et que l’on observe une décroissance de l’intensité de la DFG.

Nous avons présenté dans cette partie la première démonstration de génération de mélange de fréquences dans un LCQ MIR, à 210 K. Une étude en fonction de l’énergie de pompe nous a permis de mettre en évidence le caractère résonant du mélange d’ondes et les similarités d’évolution de l’intensité générée avec $\chi^{(2)}$. Forts de cette comparaison, nous nous intéresserons plus en détails à l’efficacité du processus de génération et nous proposerons une comparaison de la valeur de $\chi^{(2)}$ expérimentale et de sa valeur théorique. Enfin, nous discuterons les éventuelles différences de génération du mélange d’ondes dans les LCQ THz et dans les LCQ MIR. La dernière partie montrera la génération de le mélange de fréquences à température ambiante et son évolution avec la température.

IV.4 Efficacité comparée du mélange d'ondes dans les LCQ THz et MIR

Une mesure importante pour caractériser le mélange de fréquences est celle de l'efficacité du mélange. Cette grandeur correspond au rapport de l'intensité du faisceau de mélange généré, divisée par l'intensité du faisceau de pompe. Cette grandeur est évaluée à l'aide de la caméra, en mesurant d'une part le signal de mélange et d'autre part, celui de la pompe décalée à des énergies inférieures au gap pour être transmise à travers le LCQ. On mesure ainsi l'intensité de pompe couplée dans la cavité du laser, qui est l'intensité réellement impliquée dans le mélange et non pas l'intensité à l'entrée du LCQ, dont une partie est perdue.

IV.4.1 Détermination de l'efficacité et de $\chi^{(2)}$

Pour mesurer l'efficacité de la génération de DFG dans le LCQ L1010 à 210 K, on s'intéresse au spectre généré dans les conditions maximisant le mélange de fréquences (d'après la figure IV.11, pour $E_{pompe} = 1.61$ eV). On acquiert également le spectre de la pompe en transmission, atténué à l'aide de densités optiques. On obtient ainsi une efficacité expérimentale à 210 K pour cet échantillon de $4.5 \cdot 10^{-3}$ %.

L'efficacité est dépendante des conditions expérimentales telles que la puissance du LCQ, il nous paraît plus pertinent de s'intéresser à $\chi^{(2)}$. On va pouvoir la comparer à la valeur théorique calculée grâce aux simulations numériques. On va également pouvoir la comparer avec la valeur de $\chi^{(2)}$ du GaAs massif [77] ainsi qu'à la valeur obtenue pour le mélange d'ondes dans des LCQ THz, donnée par exemple dans la référence [8].

En faisant dans un premier temps l'hypothèse que le désaccord de phase est négligeable devant les pertes de pompe (comme dans le cas précédent de mélange d'ondes dans les LCQ THz), on peut appliquer la formule IV.3 d'efficacité en cas d'absorption pour relier $\chi^{(2)}$ et l'efficacité. On discutera cette hypothèse et le rôle du désaccord de phase dans le paragraphe IV.4.4. En inversant la formule IV.3 on exprime la susceptibilité non-linéaire :

$$|\chi^{(2)}| \approx \sqrt{\eta_{diff} \frac{\epsilon_0 n_{NIR} n_{LCQ} n_{diff} c \lambda_{diff}^2 S \alpha_p^2}{32\pi^2 P_{LCQ}}} \quad (IV.1)$$

Il y a un grand nombre de paramètres à prendre en compte dans cette formule, nous allons les évaluer pas à pas.

On a pris les indices de réfraction aux différentes longueurs d'onde tels que $n_{NIR} = 3.69$, $n_{diff} = 3.65$ et $n_{MIR} = 3.25$. Pour une excitation fixée à 1.61 eV ($\lambda = 770$ nm), la DFG est générée à $\lambda_{diff} = 840$ nm. A partir de la puissance MIR mesurée à 95 mW et le coefficient de réflexion des facettes évalué à 0.3, on prend $P_{LCQ} = 132$ mW.

La valeur des pertes de pompe est calculée à partir de la partie imaginaire de la susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$:

$$\alpha = \frac{\omega}{c} \text{Im}(\chi^{(1)}) \quad (IV.2)$$

où $\chi^{(1)}$ s'exprime d'après les mêmes paramètres vus dans le chapitre II :

$$\chi^{(1)} = \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr}} \sum_k \sum_{mn} \frac{\mu_{mn} \mu_{nm}}{\Delta E_{nm} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma_{nm}}$$

Comme on cherche surtout à déterminer la valeur du début de l'absorption, on s'intéressera pour cela uniquement aux états impliqués dans les premiers recouvrements électrons trous et

pas à tous les états. Compte tenu de la polarisation TM mise en œuvre dans les expériences, l'absorption est calculée en considérant les états de trous légers et les états électroniques. Pour la structure du LCQ MIR, on trouve $\alpha_p = 5000 \text{ cm}^{-1}$ à la longueur d'onde de pompe considérée. Les conditions pour négliger le désaccord de phase dépendent fortement de α_p , on discutera cette valeur et l'approximation $\alpha_p \gg \Delta k$ plus loin. En évaluant ainsi les différents paramètres, on obtient une valeur expérimentale du module de $\chi^{(2)}$ égale à $8 \cdot 10^{-10} \text{ m/V}$, soit 800 pm/V .

Grâce aux simulations numériques de calcul de $\chi^{(2)}$ précédemment présentées, nous pouvons comparer la valeur expérimentale de $\chi^{(2)}$ à la valeur théorique de $5 \cdot 10^{-10} \text{ m/V}$ soit 500 pm/V obtenue pour une énergie d'excitation de 1.61 eV , avec un coefficient $\Gamma = 10 \text{ meV}$ correspondant à une température de 210 K . On retrouve des valeurs du même ordre de grandeur, similaires entre théorie et expérience.

On peut également remarquer que cette valeur de $\chi^{(2)}$ obtenue dans les LCQ MIR sous excitation résonante est exaltée par rapport à la valeur de $\chi^{(2)} = 100 \text{ pm/V}$ pour le GaAs massif. On aurait pu s'attendre à une exaltation plus importante sous excitation résonante. Pour une énergie de pompe de 1.61 eV , la pompe est résonante avec les premiers états électroniques, il s'agit donc d'une résonance simple et non pas une résonance double qui pourrait exalter d'autant plus les non-linéarités (voir les simulations sur la figure IV.15).

Dans la référence [8], les auteurs ont évalué la susceptibilité $\chi^{(2)}$ pour la génération de la DFG dans un LCQ émettant à 2.8 THz . De la même manière que celle qu'on vient de présenter, les auteurs démontrent une susceptibilité expérimentale de 1.10^4 pm/V , soit $1e10^{-8} \text{ m/V}$, à partir d'une efficacité de 0.1% . Cette valeur est plus de 10 fois plus importante que la valeur de $\chi^{(2)}$ obtenue dans les LCQ MIR. Il est intéressant de s'interroger sur l'origine de cette différence notable.

On sera de nouveau amenés à comparer le mélange dans les LCQ THz et le mélange dans les LCQ MIR au chapitre V, où l'on effectuera à la fois des mesures sur un LCQ THz et sur un LCQ MIR de zone active composée de couches InGaAs/AlInAs. On pourra ainsi comparer les résultats obtenus sur le même dispositif expérimental, dans des conditions très similaires. On effectuera également des simulations pour les deux structures de bandes réelles des LCQ.

En première réflexion, on peut avancer plusieurs idées portant sur différents effets impliqués dans le mélange d'ondes pour comprendre la différence observée :

- l'effet de la température et le rôle du coefficient Γ . La différence de température de fonctionnement de 10 K pour les LCQ THz et de 210 K pour les LCQ peut-elle expliquer la différence de valeur de $\chi^{(2)}$? Cette question sera approfondie au paragraphe IV.4.2.
- l'effet quantique et le rôle de la structure de bandes. Nous avons vu dans la partie II.3.4 que la susceptibilité non-linéaire pouvait être intrinsèquement différente entre une structure THz et une structure MIR, même si celles-ci sont très semblables. On reviendra sur le rôle quantique dans ces structures dans le paragraphe IV.4.3.
- l'effet ondulatoire classique et le rôle du désaccord de phase et des pertes. L'effet du désaccord de phase plus important pour le MIR permet-il d'expliquer la différence de valeur de $\chi^{(2)}$? Nous regarderons cette question plus en détails au paragraphe IV.4.4.

IV.4.2 Effet de la température

Pour évaluer l'effet de la température sur la valeur de $\chi^{(2)}$, j'ai calculé l'évolution de $\chi^{(2)}$ en fonction de l'énergie de pompe pour différentes valeurs du coefficient d'élargissement Γ . On a vu que c'était le seul élément de $\chi^{(2)}$ modifié par la température. On évalue Γ suivant les résultats donnés par la référence [64], reproduits sur la figure II.10 dans le chapitre II. Les calculs de $\chi^{(2)}$ pour différentes valeurs de Γ sont tracés sur la figure IV.15. On considérera que le cas $\Gamma = 2$ meV, correspond à une température de 10 K, $\Gamma = 10$ meV à 200 K et $\Gamma = 20$ meV à 300 K. On peut observer que lorsque le coefficient d'élargissement augmente, les résonances proches des transitions sont moins piquées et donc plus faibles.

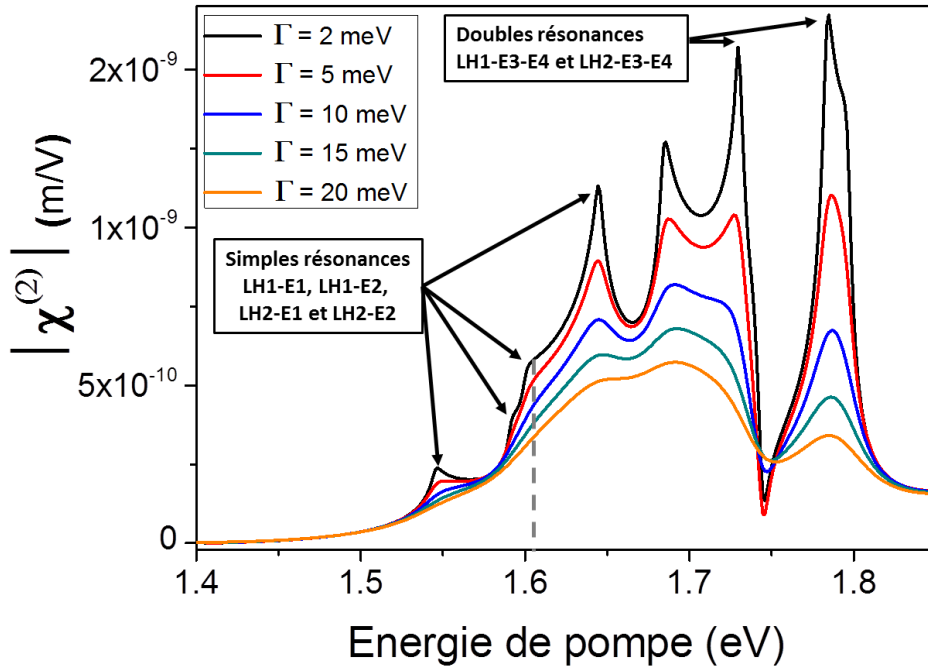


FIGURE IV.15 – Simulations de $\chi^{(2)}$ pour différentes valeurs du coefficient d'élargissement Γ , pour la structure de bandes du LCQ MIR L1010, tracées en fonction de l'énergie de pompe. Énergie de comparaison indiquée en gris.

Pour le LCQ MIR auquel on s'intéresse, l'absorption limite l'excitation à la troisième résonance simple (LH2-E1, d'après la structure de bandes reportée sur la figure IV.13). Cela correspond à 210 K à une énergie de pompe de 1.61 eV comme on l'a vu précédemment. Pour des températures plus basses, l'énergie d'excitation optimale est décalée mais restera résonante avec cette même transition. On peut ainsi comparer la valeur de $\chi^{(2)}$ pour une même énergie de pompe résonante avec cette transition, pour différentes valeurs de Γ décrivant les différentes températures. Cette énergie est indiquée en pointillés gris sur la figure IV.15. On voit que dans ce cas, la température ne permet pas d'expliquer l'ordre de grandeur observé sur les valeurs expérimentales de $\chi^{(2)}$ pour le MIR et le THz. Pour 10 K ($\Gamma = 2$ meV), on a $\chi^{(2)} = 6 \cdot 10^{-10}$ m/V, peu différente de la valeur de $\chi^{(2)} = 4.7 \cdot 10^{-10}$ m/V obtenue à 210 K.

Ces simulations mettent en évidence que pour une excitation doublement résonante, comme c'est le cas à plus haute énergie, $\chi^{(2)}$ peut être encore plus exaltée. On observe également que dans ce cas, la température peut faire varier la valeur de $\chi^{(2)}$ jusqu'à un facteur 10, comme

c'est le cas pour une énergie de pompe proche de 1.8 eV. Ça sera donc un facteur à considérer sérieusement pour des situations d'excitation doublement résonante.

Dans la comparaison dans le cas de mélange dans les LCQ THz et MIR, l'effet lié à la température n'est pas suffisant pour justifier la différence de valeur de $\chi^{(2)}$ observée. On va donc s'intéresser plus en détails au rôle de la structure de bandes et aux effets quantiques qui diffèrent entre des structures THz et MIR.

IV.4.3 Effet quantique sur la structure de bandes THz ou MIR

Le susceptibilité non-linéaire dépend très fortement des énergies des transitions impliquées et des dipôles des transitions impliquées, donc de la structure de bandes. On peut se demander si la différence d'intensité de $\chi^{(2)}$ observée entre le mélange dans les LCQ THz et dans les LCQ MIR n'est pas intrinsèque à l'écart en énergie entre les niveaux électroniques impliqués (10 meV pour le THz et 135 meV pour le MIR).

Pour approfondir cette question, nous avons mené dans la partie II.3.4 du chapitre II, des simulations de $\chi^{(2)}$ dans le cas de systèmes simples et très similaires de deux puits quantiques couplés, où seule l'énergie de la transition est différente, dans un cas THz et dans l'autre MIR. On a vu que la valeur de $\chi^{(2)}$ en double résonance (lorsque la pompe est résonante avec l'état haut et la DFG est résonante avec l'état bas de la transition THz ou MIR considérée) est légèrement plus élevée pour le cas THz que pour le cas le MIR (facteur 5).

Cependant, pour le cas du THz, les conditions de double résonance peuvent être atteintes ou approchées grâce à des énergies d'excitation beaucoup plus faibles que pour cas du MIR. Lorsque la pompe excite l'état bas de la transition, elle n'est qu'à 10 meV des conditions de double résonance dans le cas du THz alors qu'elle est à plus de 100 meV des conditions de double résonance dans le cas du MIR. La différence de valeur de $\chi^{(2)}$ calculée pour les puits dans le chapitre II est de l'ordre d'un facteur 10.

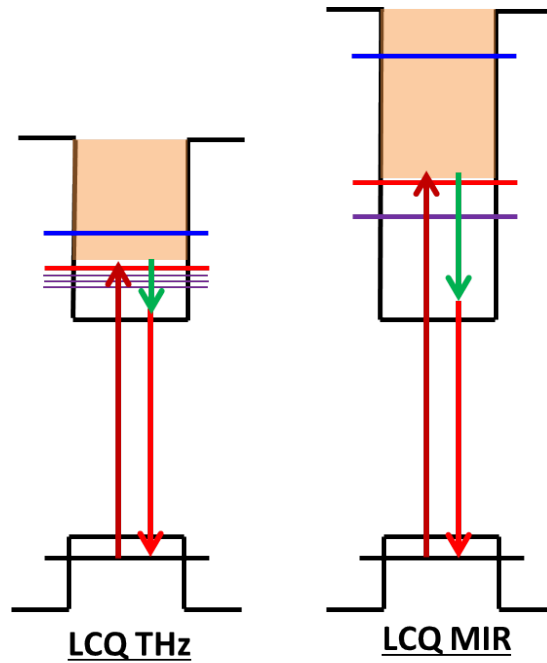


FIGURE IV.16 – Schéma de l'excitation d'un LCQ THz et d'un LCQ MIR en limite d'absorption.

On voit bien sur ce schéma en limite d'absorption dans le LCQ THz, que l'excitation est très proche d'une situation de double résonance. Compte tenu de la largeur des états, l'excitation profite de l'exaltation forte de $\chi^{(2)}$ due à la proximité de la double résonance. Dans le LCQ MIR, les conditions de double résonance sont très éloignées en énergie de la situation en limite d'absorption. Il n'y pas d'exaltation supplémentaire dans ce cas, seule une simple résonance. La situation décrite dans les puits couplés est semblable à la situation décrite ici.

L'argument mis en avant dans ce paragraphe, appuyé par les calculs dans les puits couplés (chapitre II), semble bien justifier l'écart d'un ordre de grandeur, obtenu dans la comparaison des valeurs expérimentales de $\chi^{(2)}$ pour le mélange dans des LCQ THz et dans des LCQ MIR. Un dernier argument doit cependant être examiné avant de conclure, il concerne l'effet possiblement induit par le désaccord de phase.

IV.4.4 Rôle du désaccord de phase

Lorsqu'on se pose la question de prendre en compte le désaccord de phase par rapport aux pertes sur le faisceau de pompe, le premier point est de définir et de donner une valeur pour chacun de ces termes. Les pertes sont calculées pour la structure du LCQ par l'équation IV.2, par partir de la partie imaginaire de $\chi^{(1)}$.

Concernant le désaccord de phase, on a vu qu'il s'exprimait :

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda_{NIR}} n_{NIR} - \frac{2\pi}{\lambda_{diff}} n_{diff} - \frac{2\pi}{\lambda_{LCQ}} n_{LCQ}$$

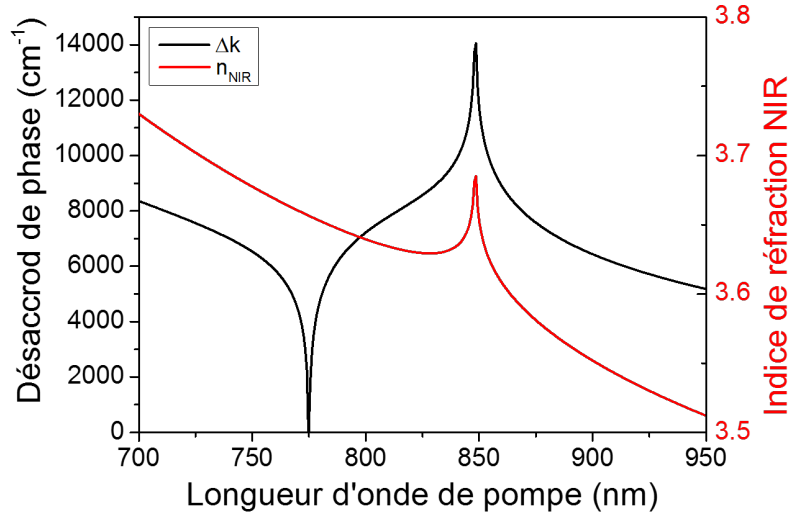


FIGURE IV.17 – Désaccord de phase calculé à 210 K (noir, axe de gauche) en fonction de la longueur de pompe. Indice de réfraction dans le proche infrarouge (rouge, axe de droite) en fonction de la longueur d'onde.

L'évolution du désaccord de phase en fonction de la longueur d'onde de la pompe est tracée sur la figure IV.17. On a calculé les indices pour le GaAs massif, maintenu à 210 K à partir de la référence [78]. L'indice de réfraction dans le proche infrarouge est également tracé sur la figure IV.17 (axe de droite).

La plage d'énergie de pompe explorée dans ces expériences se trouve proche du fort creux observé pour une longueur d'onde de pompe de 770 nm. On peut supposer une valeur moyenne pour Δk sur cette plage d'énergie de 4000 cm^{-1} . Le désaccord de phase ainsi évalué est du même ordre de grandeur que les pertes de 5000 cm^{-1} calculées pour la structure de bandes du LCQ MIR. Pour prendre en compte le désaccord de phase dans le calcul de la valeur expérimentale de $\chi^{(2)}$, on n'utilise plus la formule simplifiée de l'efficacité mais la formule suivante :

$$\eta_{diff} = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 P_{LCQ}}{\epsilon_0 n_{NIR} n_{diff} n_{LCQ} c \lambda_{diff}^2} \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) + \sinh^2\left(\frac{\alpha_p L}{4}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2 + \left(\frac{\alpha_p L}{4}\right)^2} e^{-\alpha_p \frac{L}{2}}$$

La valeur expérimentale de $\chi^{(2)}$ obtenue en prenant en compte Δk est 1.10^{-9} m/V soit 1.10^3 pm/V . Elle est plus importante que la valeur obtenue sans Δk à 800 pm/V . La prise en compte du désaccord de phase tend à rapprocher la valeur de $\chi^{(2)}$ pour les LCQ MIR de celle obtenue dans les LCQ THz, mais la différence est faible et ne permet pas de justifier l'ordre de grandeur observé. On note également que la valeur prenant en compte Δk s'écarte de la valeur théorique calculée (500 pm/V).

On a pu donner dans cette partie une valeur de $\chi^{(2)}$ à partir des mesures expérimentales de l'efficacité de la génération de la DFG dans le LCQ MIR basé sur GaAs. On a pu comparer cette valeur à la prévision théorique obtenue par la simulation directe de $\chi^{(2)}$. On trouve un accord satisfaisant. Nous avons investigué la différence de valeur de $\chi^{(2)}$ observée en comparaison avec le mélange dans les LCQ THz et on peut conclure que l'argument principal qui semble importer ici est propre à la structure de bandes des dispositifs. Les états électroniques

étant plus écartés en énergie dans les LCQ MIR, les conditions d'excitation sont moins résonantes et donc conduisent à une valeur de $\chi^{(2)}$ plus faible que dans la structure THz. La prise en compte du désaccord de phase n'explique pas entièrement l'écart observé et on note une divergence notable par rapport aux calculs théoriques. La question de prise en compte du désaccord de phase sera de nouveau posée au chapitre suivant.

Des paramètres importants dans le calcul du désaccord de phase et dans celui de $\chi^{(2)}$, comme la valeur des pertes, sont difficiles à évaluer pour la situation expérimentale et doivent être approchés, avec une certaine marge d'erreur possible.

IV.5 Démonstration à température ambiante

Grâce aux performances en température de ce LCQ, nous avons démontré la génération de DFG entre un faisceau pompe NIR et le faisceau MIR du LCQ jusqu'à température ambiante (295 K). La figure IV.18 présente l'intensité de la DFG générée (en noir sur l'axe de gauche, en unités arbitraires) en fonction de la température du LCQ. Ce comportement est comparé sur la même figure (en rouge sur l'axe de droite) à la puissance émise par le LCQ en fonction de sa température de fonctionnement, pour un courant identique à celui appliqué pour la génération de la DFG. Il est intéressant de remarquer que le mélange est observable même pour de faibles puissances d'émission du LCQ.

A 210 K l'énergie de pompe a été fixée à 1.61 eV, énergie qui maximise la génération de la DFG. A chaque température, l'énergie de pompe a été décalée de manière à garder les conditions optimales d'excitation pour le mélange. Ce décalage d'énergie suit la même loi que le décalage de l'énergie de gap en fonction de la température, donnée par [78] :

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{5.405 \cdot 10^{-4} T^2}{T + 204}$$

On voit sur la figure IV.18 que l'intensité de la DFG et la puissance du LCQ suivent un comportement similaire en fonction de la température avec une diminution linéaire jusqu'à 250 K puis une stagnation. Reprenons l'expression de l'efficacité, proportionnelle à l'intensité de la DFG, donnée dans l'équation II.6 vue précédemment :

$$\eta_{diff} = \frac{I_{diff}}{I_{NIR}} \approx \frac{32\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 P_{LCQ}}{\epsilon_0 n_{NIR} n_{LCQ} n_{diff} c \lambda_{diff}^2 S \alpha_p^2} \frac{1}{\alpha_p^2} \quad (\text{IV.3})$$

avec α_p les pertes sur le faisceau de pompe NIR, P_{LCQ} est la puissance d'émission du LCQ et S la surface de recouvrement des modes optiques. Pour un LCQ MIR de ruban très étroit, on prendra S égale au produit de largeur du ruban laser par l'épaisseur de la zone active.

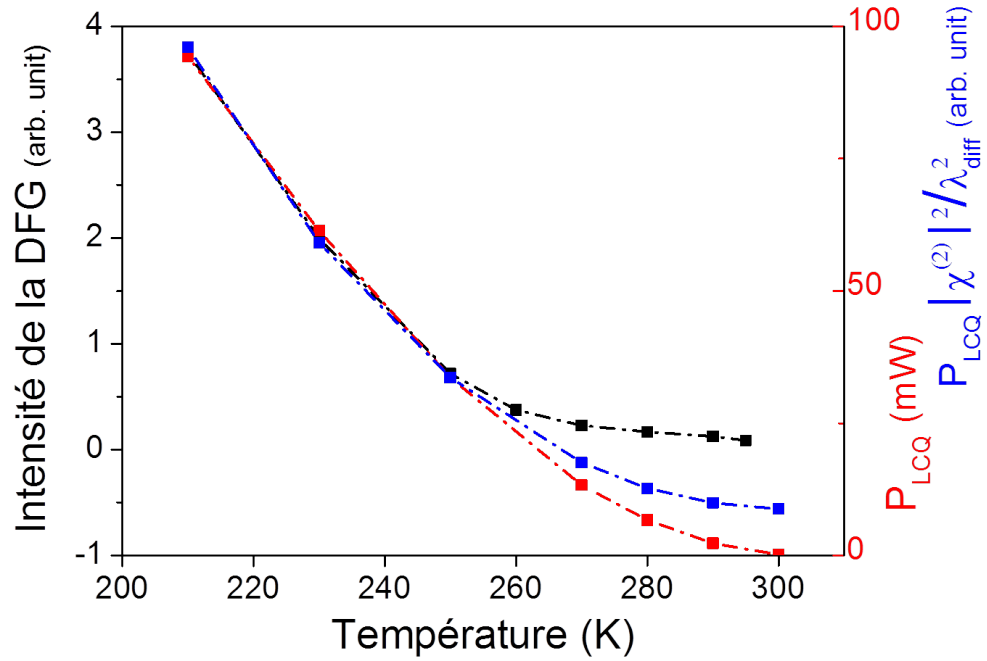


FIGURE IV.18 – Évolution de l'intensité de la DFG (axe de gauche, en noir), comparée à l'évolution de la puissance émise par le LCQ (axe de droite, en rouge) en fonction de la température et comparée à l'évolution du produit de P_{LCQ} et de $|\chi^{(2)}|^2$ divisé par λ_{diff}^2 en fonction de la température (axe de droite, en bleu).

En première approximation, on peut considérer que la puissance du LCQ est le facteur qui varie le plus en fonction de la température. La similarité de l'évolution de l'intensité du mélange et celle de la puissance du LCQ en fonction de la température nous confirme que les autres paramètres doivent peu ou ne pas du tout varier avec la température. Cette observation est très encourageante pour la poursuite des expériences à température ambiante car elle nous permet d'affirmer que le facteur limitant pour obtenir un mélange de fréquences efficace à température ambiante est essentiellement la puissance disponible à cette température.

On peut raffiner le modèle et prendre en compte la susceptibilité non-linéaire et la longueur d'onde de la DFG qui varient pour les diverses températures. Comme on l'a discuté dans la partie II.3.3 du chapitre II, le coefficient d'élargissement Γ augmente avec la température ce qui se répercute directement sur la valeur de $\chi^{(2)}$. Ici, on a calculé $\chi^{(2)}$, comme dans la sous-partie précédente, pour différentes températures entre 210 K et 300 K, avec un coefficient Γ variant linéairement de 10 à 20 meV, comme indiqué dans la référence [64]. La longueur d'onde de la DFG varie avec la température car l'énergie de pompe est décalée pour être maintenue en résonance.

On a tracé sur la figure IV.18 l'évolution du produit de P_{LCQ} et de $|\chi^{(2)}|^2$ divisé par λ_{diff}^2 en fonction de la température afin de la comparer avec l'évolution de l'intensité de la DFG. On retrouve à nouveau le même comportement global, confirmant que les facteurs $\chi^{(2)}$ et λ_{diff} , évoluent faiblement avec la température. Le modèle raffiné montre néanmoins une évolution plus proche de celle de l'intensité de la DFG.

L'écart entre ces deux courbes pour les hautes températures peut s'expliquer par des conditions expérimentales plus extrêmes. En effet, le signal généré est extrêmement faible à

ces températures, le temps d'acquisition de la caméra est 300 fois plus long. Il est possible que pour des temps de pose aussi longs, l'intensité mesurée soit légèrement surévaluée. A des températures aussi élevées, le LCQ est en limite des conditions d'opération. La structure de bandes elle-même est peut-être altérée par rapport au cas général décrit.

On a démontré que les propriétés non-linéaires conférées par l'excitation résonante de la pompe restaient dans l'ensemble les mêmes à température ambiante. Le facteur limitant l'efficacité à température ambiante est la puissance du LCQ à cette température, cela est donc très encourageant pour poursuivre ces expériences d'optique non-linéaire THz et MIR vers la température ambiante, notamment avec des LCQ basés sur InP, plus puissants à température ambiante.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré que le mélange de fréquences dans les LCQ pouvait être étendu aux LCQ MIR. Nous avons généré de la DFG jusqu'à température ambiante, bien au-delà des conditions de fonctionnement cryogéniques des LCQ THz, grâce aux non-linéarités. Ces démonstrations n'auraient pas été possibles dans des conditions d'excitation non-résonantes. Les simulations théoriques de $\chi^{(2)}$ pour cette structure nous ont permis d'analyser les effets de résonance en fonction de l'énergie de pompe et de comparer la valeur obtenue via la mesure de l'efficacité, avec une valeur théorique. Enfin, nous avons comparé la susceptibilité non-linéaire dans le cas du mélange de fréquences dans les LCQ THz et dans les LCQ MIR, pour conclure que la différence d'un ordre de grandeur constatée était due à l'écart d'énergie plus important entre les niveaux électroniques dans le cas MIR, conduisant à des conditions d'excitation moins résonantes. Ces démonstrations à température ambiante et le fait que la puissance disponible dans le LCQ soit le facteur majoritaire de la diminution de l'efficacité avec la température, nous encouragent à poursuivre ces expériences vers les LCQ basés sur InP qui présentent de très bonnes performances à température ambiante. Cela nous permettra également d'étendre les longueurs d'onde d'excitation vers la gamme télécom.

MÉLANGE D'ONDES DANS LES LCQ BASÉS SUR INP

Nous montrerons dans ce chapitre des expériences d'optique non-linéaire dans des LCQ basés sur InP. On démontrera avec succès le mélange d'ondes entre une excitation télécom ($1.3\ \mu\text{m}$ - $1.6\ \mu\text{m}$) et ces LCQ, l'excitation étant résonante avec l'énergie de gap des puits InGaAs. Pour ces démonstrations, j'ai mis en place un nouveau dispositif expérimental pour la gamme de longueurs d'onde télécom et j'ai développé avec nos collaborateurs des LCQ basés sur InP (par croissance MOCVD), adaptés et optimisés pour le mélange d'ondes. Dans un premier temps, on démontrera le mélange de fréquences dans les LCQ MIR basés sur InP à $9\ \mu\text{m}$. Ces expériences permettent la transition tout-optique entre la bande centrée à $1.3\ \mu\text{m}$ et la bande centrée à $1.55\ \mu\text{m}$ à température ambiante. Dans un second temps, on s'intéressera au mélange de fréquences dans les LCQ THz basés sur InP. Ces expériences montrent une efficacité plus importante et permettent des décalages de longueur d'onde allant de quelques nanomètres à une vingtaine de nanomètres. On discutera enfin de l'efficacité comparée de ces deux types d'expériences.

Introduction

Nous avons montré dans le chapitre précédent que le mélange de fréquences dans les LCQ basés sur GaAs pouvait être étendu au domaine MIR et qu'il pouvait être obtenu jusqu'à température ambiante. La limite majeure de l'efficacité du processus à cette température est la puissance disponible dans le LCQ. Les LCQ MIR basés sur InP, composés de couches InGaAs/AlInAs, présentent de bien meilleures performances pour ce qui est de la puissance à haute température. Ils paraissent donc être des candidats prometteurs pour les expériences de mélange de fréquences.

De plus, l'énergie de gap des puits InGaAs est plus faible que celle des puits de GaAs et se trouve dans le domaine de longueurs d'onde des télécommunications. Ces structures présentent donc l'avantage supplémentaire de pouvoir être excitées en résonance dans ce domaine. Le schéma d'énergie du mélange d'ondes est présenté sur la figure V.1, comparé pour les LCQ basés sur GaAs et pour les LCQ basés sur InP. On montrera alors que l'on peut générer du mélange de fréquences dans la gamme télécom et notamment que l'on peut obtenir un décalage de longueur d'onde tout-optique entre différentes fenêtres passantes. Par exemple le mélange de fréquences dans un LCQ à 9 μm permettrait la transition tout-optique entre 1.3 μm et 1.55 μm .

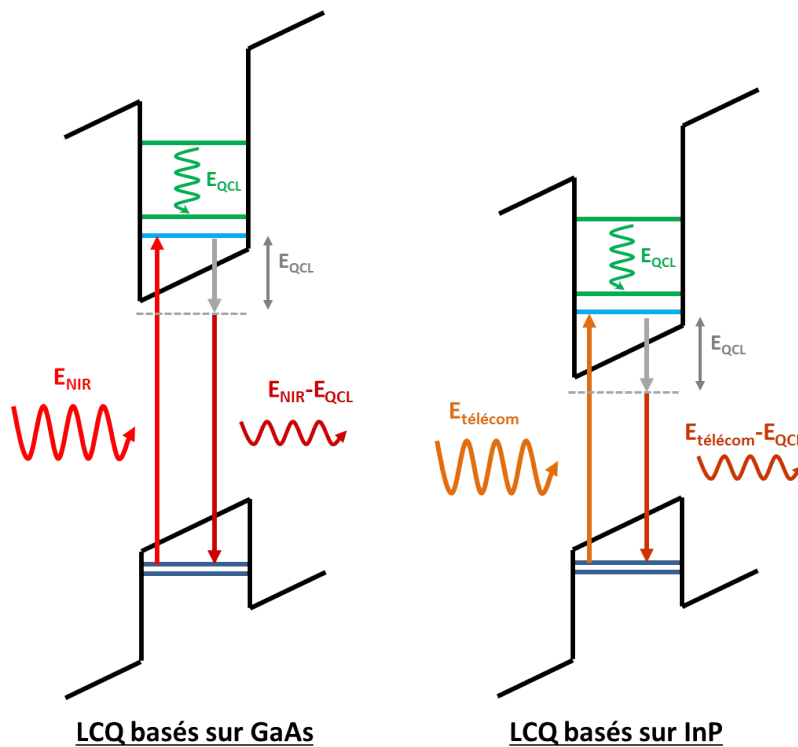


FIGURE V.1 – Schéma d'énergie du mélange d'ondes comparé, dans les LCQ basés sur GaAs (excitation résonante NIR) et dans les LCQ InP (excitation résonante télécom).

Aucune expérience de mélange d'ondes dans les LCQ basés sur InP pour la gamme télécom n'avait été réalisée jusqu'à aujourd'hui. Dans ce but, j'ai mis en place un nouveau dispositif expérimental approprié, dans les longueurs de la gamme télécom. J'ai fortement participé à développer des LCQ basés sur InP adaptés aux expériences de mélange de fréquences. Ces

structures ont été optimisées pour améliorer leurs performances en vue d'obtenir du mélange de fréquences à température ambiante.

Nous présenterons dans ce chapitre ces expériences d'optique non-linéaire dans la gamme télécom, démontrées avec succès grâce aux LCQ basés sur InP, optimisés avec l'aide de nos collaborateurs. Dans un premier temps, on décrira le montage expérimental et les LCQ MIR développés pour ces expériences. On démontrera par la suite le mélange de fréquences dans les LCQ MIR à 9 μm , permettant ainsi la transition tout-optique entre la bande centrée à 1.3 μm et la bande centrée à 1.55 μm . Ces démonstrations ont été obtenues à température ambiante.

Dans un second temps, on s'intéressera au mélange de fréquences dans les LCQ THz basés sur InP. Ces expériences montrent une efficacité plus importante et permettent des décalages de longueur d'onde allant de quelques nanomètres à une vingtaine de nanomètres, intéressants pour d'autres types d'applications au domaine des télécommunications. Ces expériences sur les LCQ THz nous permettent de comparer, dans des conditions expérimentales analogues, l'efficacité du mélange d'ondes dans les LCQ THz et les LCQ MIR. Pour cela, on s'intéressera aux valeurs de susceptibilité non-linéaire comparées dans les deux cas, dans la gamme télécom.

V.1 Caractérisation des LCQ MIR basés sur InP

V.1.1 Structure de bandes

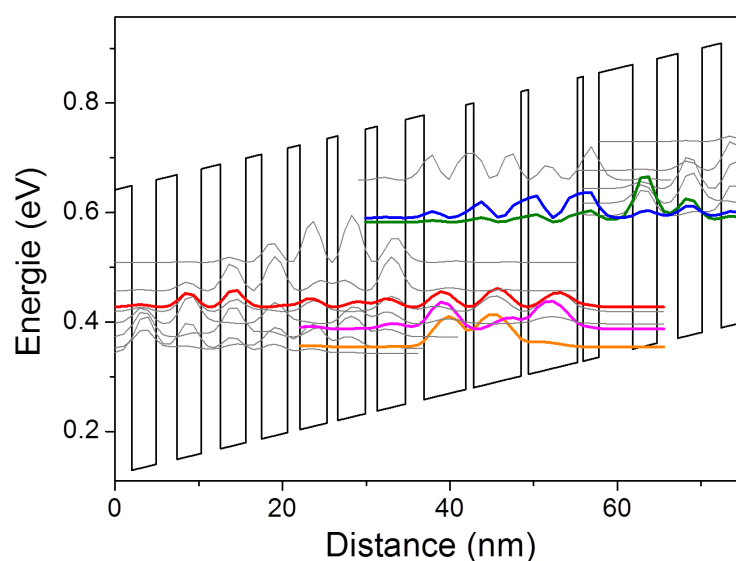


FIGURE V.2 – Structure de bandes du LCQ MIR basé sur InP, avec dépopulation par 2 LO-phonon. La séquence de croissance est (en nm) : **4.0/1.9/0.7/5.8/0.9/5.7/0.9/5.0/2.2/3.4/1.4/3.3/1.3/3.2/1.5/3.1/1.9/3.0/2.3/2.9/2.5/2.9** Les couches barrière de $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ sont marquées en gras et les couches puits de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ sont en écriture normale. Les couches dopées type n en Si sont soulignées.

La croissance originale de ce LCQ MIR basé sur InP à 9 μm est issue de la référence [21], qui a montré de très bonnes performances en puissance, à température ambiante. La structure de bandes s'appuie sur une transition verticale et une dépopulation par 2 LO-phonons. Elle

est représentée sur la figure V.2. On retrouve en vert l'état injecteur qui peuple l'état haut de la transition (en bleu). La transition verticale a lieu vers l'état bas (en rouge) en émettant un photon de 140 meV soit une longueur d'onde de 9 μm . La dépopulation s'effectue en résonance avec deux LO-phonons, d'abord vers un premier état électronique représenté en rose puis vers un second représenté en orange. Nous avons effectué plusieurs croissances avec différents dopages pour certaines couches de la zone active pour améliorer les performances de ces LCQ. Nous présenterons l'optimisation de ces échantillons dans la partie V.1.3.

V.1.2 Adaptation du guide d'ondes pour le mélange d'ondes

Comme nous l'avons vu dans le cas des LCQ MIR basés sur GaAs IV.2.2, les guides d'ondes des LCQ utilisés pour le mélange de fréquences doivent guider à la fois le mode MIR mais aussi le mode de la pompe.

Les guides d'ondes habituels pour des LCQ basés sur des couches InGaAs/AlInAs sont composés de couches InP dopé dont l'indice est plus faible que celui de la zone active. La croissance des couches de la zone active (InGaAs/AlInAs) est habituellement réalisée par MBE et la croissance des couches InP par MOCVD. Pour transférer la zone active d'un bâti vers l'autre, il est souvent nécessaire d'encadrer la zone active par de fines couches InGaAs. Ces couches permettent également de renforcer le contraste d'indice entre la zone active et les couches de guide InP, car l'indice de l'InGaAs est plus élevé que celui de l'InP. Enfin, de fines couches InGaAs dopé assurent la jonction vers le substrat ou la couche d'or pour l'alimentation. Une composition classique est détaillée dans le tableau 2. Les simulations des modes MIR et NIR dans ce type de guides sont présentées sur la figure V.3.

	C1	C2	C2'	C3	C4	C4'	ZA
Epaisseur (μm)	0.25	2	2.5	0.85	0.05	0.1	2
Dopage (cm^{-3})	4e16	5e16	5e16	5e18	1e18	1e18	6e15
Matériau	InGaAs	InP	InP	InP	InGaAs	InGaAs	InGaAs/AlInAs

Table 2 – Caractéristiques des couches d'un guide d'ondes classique pour un LCQ MIR basé sur InP.

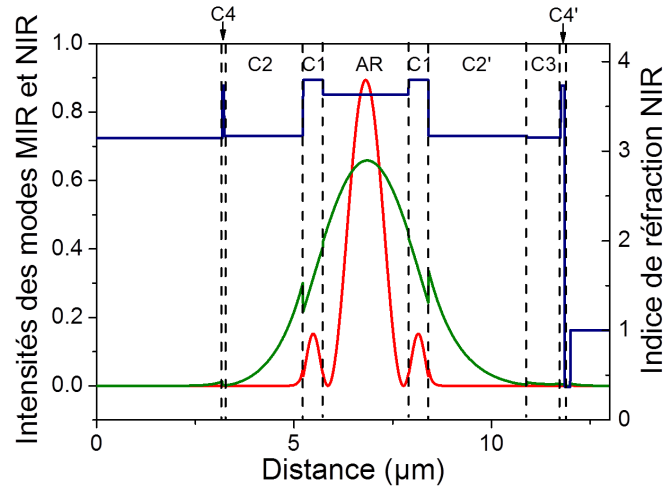


FIGURE V.3 – Simulation du guidage du faisceau MIR (9.2 μm , représenté en vert) et du faisceau NIR (1.5 μm , représenté en rouge) pour un guide habituel de LCQ MIR avec des couches de guide InGaAs. L'indice de réfraction pour le NIR est tracé en bleu.

Le mode MIR est bien confiné dans la zone active avec un recouvrement de 63 % et des pertes de 6 cm^{-1} . Le mode telecom fondamental à 1.5 μm est également bien confiné dans la zone active avec un recouvrement de 86 %. On remarque cependant qu'une partie du mode est confiné dans les couches InGaAs. Les pertes sur la pompe ont pu être estimées dans ces couches InGaAs à 12 cm^{-1} , par des mesures d'oscillations Fabry-Perot. Cela peut être problématique pour la pompe optique mais surtout pour le faisceau de mélange d'ondes généré qui pourra être absorbé dans ces couches plutôt que de se propager le long de la cavité. Ces couches InGaAs ont une épaisseur de 250 nm, on peut les considérer comme un matériau massif, $\chi^{(2)}$ est donc faible et ne peut pas être exaltée par résonance.

Pour éviter cet effet d'absorption dans les couches InGaAs qui limite fortement l'efficacité du mélange de fréquences, nous avons opté pour un nouveau type de guides d'ondes composé uniquement de couches épaisses d'InP dopé. La croissance de nos échantillons est réalisée par MOCVD chez nos collaborateurs du LPN, il n'y a donc pas besoin des couches InGaAs pour transférer la zone active, la croissance de la zone active et des couches de guide est faite en même temps. La composition optimisée de ce nouveau guide est détaillée dans le tableau 3.

	C2	C3	C4	C4'	ZA
Épaisseur (μm)	4	0.85	0.15	0.08	2
Dopage (cm^{-3})	$5\text{e}16$	$5\text{e}18$	$1\text{e}18$	$1\text{e}18$	$3\text{e}16$
Matériau	InP	InP	InGaAs	InGaAs	InGaAs/AlInAs

Table 3 – Caractéristiques des couches du guide d'ondes pour un LCQ MIR basé sur InP, adapté pour le mélange d'ondes, sans couches InGaAs.

Comme on peut le voir sur la figure V.4, grâce à ce guide, la pompe optique est toujours bien guidée dans la zone active mais sans pertes dans les couches du guide. Le champ MIR est même mieux confiné dans la zone active, grâce à des couches InP plus épaisses, avec un recouvrement de 63 % et des pertes de seulement 3 cm^{-1} . Ce nouveau guide paraît donc tout adapté pour les expériences de mélange d'ondes dans la gamme telecom.

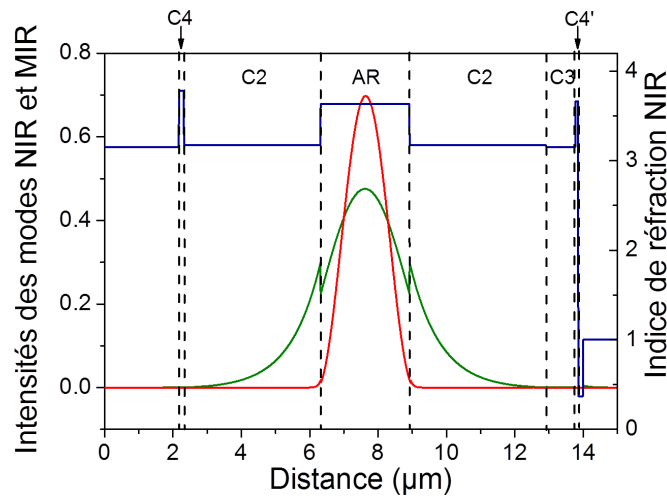


FIGURE V.4 – Simulation du guidage du faisceau MIR (9.2 μm , représenté en vert) et du faisceau NIR (1.5 μm , représenté en rouge) pour un guide modifié, sans couches de guide InGaAs. L'indice de réfraction pour le NIR est tracé en bleu.

Les principaux résultats que nous présentons dans ce chapitre ont été obtenus sur des LCQ MIR dotés de ces nouveaux guides, développés pour éviter les pertes sur le faisceau de pompe et sur le faisceau généré. Nous présenterons dans l'annexe C quelques résultats de mélange d'ondes dans des LCQ MIR avec les guides dotés de couches InGaAs et nous montrerons que l'efficacité est extrêmement réduite par rapport aux résultats principaux.

V.1.3 Optimisation des performances des LCQ

Les expériences de mélange d'ondes dans la gamme télécom que nous présentons dans ce chapitre n'avaient jamais été menées, il fallait donc développer à la fois un nouveau dispositif expérimental (présenté partie V.2.1) mais aussi des LCQ adaptés pour le mélange d'ondes. Nous avons travaillé pour ce projet en collaboration avec Isabelle Sagnes et Grégoire Beaudoin du LPN (actuel C2N) et avec Maria Amanti et Carlo Sirtori du laboratoire MPQ, afin de développer des structures LCQ adaptées pour le mélange d'ondes télécom à température ambiante.

Les croissances de ces structures ont été réalisées au LPN par MOCVD. Ces croissances, nouvelles pour le LPN, nécessitaient des adaptations et des calibrations à mettre en place de leur côté. Le process a ensuite été réalisé chez nos collaborateurs du laboratoire MPQ. Le process a également nécessité des optimisations afin d'obtenir des flans droits sur des rubans très étroits. La figure V.5 montre un exemple de LCQ MIR après le process, la photo est prise au microscope électronique.

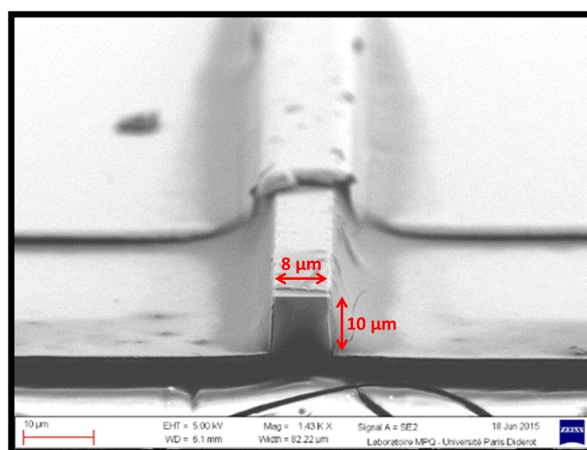


FIGURE V.5 – Exemple de photo au microscope électronique d’un LCQ MIR basé sur InP, après process.

Ce paragraphe présente les différentes croissances réalisées en optimisant au fur et à mesure les échantillons afin d’obtenir les performances nécessaires pour le mélange de fréquences dans la gamme télécom. Pour optimiser ces dernières, nous avons fait varier le dopage dans les couches concernées de la zone active et augmenté dans certains cas l’épaisseur des couches InP de guide. On va revenir en détails sur ces différentes structures et on présentera leur caractéristiques Puissance-Tension-Courant. Les mesures de puissance ont été obtenues en collectant puis focalisant le faisceau MIR à l’aide de lentilles en ZnSe sur un détecteur thermique calibré.

Le tableau 5 donne un aperçu des performances des structures au cours des étapes successives d’optimisation. L’augmentation de l’épaisseur des couches de guide et l’augmentation du dopage ont permis d’améliorer très notablement les performances pour ce qui est de la puissance émise à température ambiante. De précédentes études sur cette structure de bandes [79] ont mis en évidence l’effet de l’augmentation du dopage sur la puissance crête et sur le courant de seuil. Hormis la première croissance dont le courant de seuil est important (premier échantillon d’essai), on constate que l’augmentation du dopage conduit à une élévation du courant de seuil, pour une même température, en accord avec la référence [79].

Code	InP1529	InP1638	InP1639	InP1768	InP1769
Dopage visé (cm^{-3})	3.3e16	6.6e16	6.6e16	1.6e17	3.3e17
Seuil (kA/cm^2) (90K)	1	0.7	0.7	-	-
Seuil (kA/cm^2) (200K)	-	1	1	2.5	4
Puissance max (mW)	2 (150K)	5 (290K)	5 (290K)	>50 (290K)	>150 (290K)
Épaisseur guide InP (μm)	2.5	2.5	3.5	4	4
Longueur (mm)	2.5	5	5	3	3

Table 5 – Performances et caractéristiques des différentes croissances de LCQ MIR basés sur InP.

On voit comme attendu que l’augmentation du dopage conduit à une puissance crête plus importante. On peut comparer les performances de nos LCQ à celles de précédents LCQ publiés dans la littérature. On s’intéresse notamment à la référence [21] dans laquelle la même croissance a été réalisée par MBE, avec un dopage de $4\text{e}17 \text{ cm}^{-3}$ dans la zone active et présente un courant de seuil de $3.7 \text{ kA}/\text{cm}^2$ et une puissance maximale de presque 1 W (pour

une densité de courant injecté de 8 kA/cm^2 à 300 K. Pour un dopage approchant (dopage visé de $3.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$), la dernière structure montre bien un courant seuil de l'ordre $3.5\text{-}4 \text{ kA/cm}^2$. Cependant, la puissance maximale n'a pas pu être observée car elle a lieu pour des densités de courant injectés très élevés, bien supérieures à 8 kA/cm^2 . Pour cette densité de courant injecté, la puissance mesurée est de 100 mW. Le rendement mesuré est plus faible mais nous avons pu améliorer la puissance émise d'un facteur 100, par rapport à la première croissance et obtenir les puissances nécessaires pour démontrer le mélange d'ondes dans les LCQ basés sur InP.

Étudions maintenant les caractéristiques Puissance-Tension-Courant des différentes croissances.

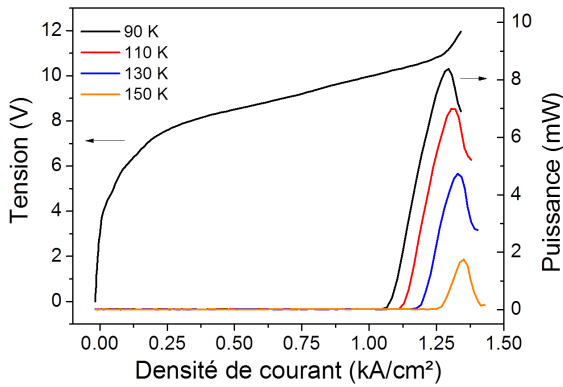


FIGURE V.6 – Caractéristiques Puissance-Tension-Courant pour différentes températures, pour la croissance InP1529 (dopage $3.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$).

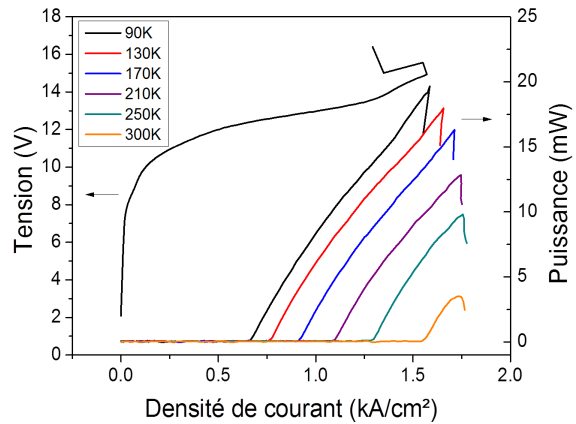


FIGURE V.7 – Caractéristiques Puissance-Tension-Courant pour différentes températures, pour la croissance InP1638/InP1639 (dopage $6.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$).

Les performances de la première croissance nommée InP1529 (dopage visé $3.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) sont présentées sur la figure V.6. Cette structure présente un seuil de courant vers 1 kA/cm^2 à 90 K et une puissance d'émission de 8 mW à cette température, sous alimentation continue. La puissance diminue rapidement avec la température de fonctionnement et l'émission n'est plus mesurable au-delà de 150 K. Les performances de cette première structure sont assez limitées, aussi bien en puissance qu'en température.

Dans le but d'aller vers un mélange d'ondes possible à température ambiante, nous avons augmenté le dopage d'un facteur 2 (dopage visé $6.6 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$) dans une deuxième génération de LCQ MIR, afin d'améliorer leurs performances. Nous avons augmenté légèrement le nombre de périodes dans la zone active (44 au lieu de 36 précédemment). Deux croissances ont alors été réalisées, une première normale (InP1638) avec des couches de guide InP de $2.5 \mu\text{m}$ et une seconde modifiée (InP1639) possédant une couche supplémentaire de quaternaire InGaAsP de 350 nm d'épaisseur, insérée dans une des couches de guide de $3.5 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Cette dernière a été réalisée pour essayer d'obtenir du mélange de fréquences dans une couche indépendante de la zone active mais intégrée dans la cavité du LCQ. Les expériences menées sur cette couche InGaAsP seront présentées dans l'annexe B. Les deux croissances InP1638 et InP1639 présentent des caractéristiques identiques. Elles sont présentées sur la figure V.7. On voit que le dispositif émet maintenant 20 mW à 90 K et peut fonctionner jusqu'à température ambiante, à laquelle il émet quelques mW. Le rapport cyclique utilisé est de l'ordre de 30 %

(fréquence 100 kHz, durée d'impulsion 3 μ s).

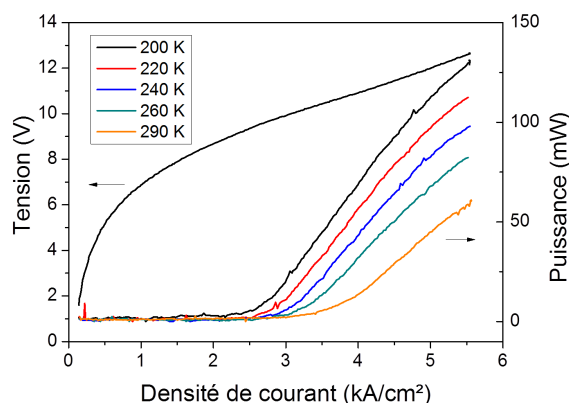


FIGURE V.8 – Caractéristiques Puissance-Tension-Courant pour différentes températures, pour la croissance InP1768 (dopage visé $1.6e17 \text{ cm}^{-3}$).

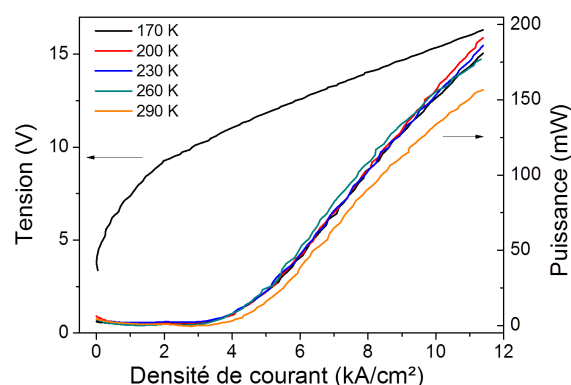


FIGURE V.9 – Caractéristiques Puissance-Tension-Courant pour différentes températures, pour la croissance InP1769 (dopage visé $3.3e17 \text{ cm}^{-3}$).

Pour disposer de plus de puissance MIR à température ambiante, deux nouvelles croissances ont été réalisées en augmentant encore le dopage dans la zone active. Cette fois, le dopage a été multiplié par 2.5 et par 5 par rapport à la croissance précédente (InP1768 de dopage visé $1.6e17 \text{ cm}^{-3}$ et InP1769 de dopage visé $3.3e17 \text{ cm}^{-3}$). Les seuils de densité de courant sont plus importants que pour la croissance précédente. La puissance disponible à température ambiante est bien plus élevée et peut atteindre plus de 50 mW pour InP1768 et plus de 150 mW pour la croissance InP1769. On notera que ces structures et plus particulièrement la seconde, ont montré des fragilités importantes à basse température et une grande diversité de fonctionnement selon les échantillons testés. On remarque notamment que le courant seuil varie peu entre 200 K et 300 K pour ces deux structures. On verra dans la section suivante que les résultats à haute température ont été obtenus pour la croissance InP1768. Compte tenu des forts courants nécessaires pour le fonctionnement de ce LCQ, on s'est orienté vers un laser de 3 mm de long et à un rapport cyclique de 5 %.

Dans cette partie, nous avons présenté la structure et les caractéristiques des LCQ MIR basés sur InP que nous avons développés et optimisés en puissance pour la réalisation de mélange d'ondes à température ambiante. Pour cela, la croissance par MOCVD s'est montré un outil fiable et efficace. Les croissances à différents dopages présentent des caractéristiques cohérentes avec les performances et les seuils de courant attendus. Nous avons ainsi pu améliorer la puissance émise d'un facteur 100, par rapport à la première croissance, obtenant ainsi les puissances nécessaires pour la démonstration du mélange d'ondes dans ces structures à température ambiante, dans la gamme télécom.

V.2 Mélange de fréquences dans les LCQ basés sur InP

V.2.1 Adaptation du montage expérimental

Bien que le principe du montage expérimental initialement présenté reste le même, plusieurs éléments ont dû être modifiés et adaptés pour permettre ces expériences mélange d'ondes dans le domaine télécom.

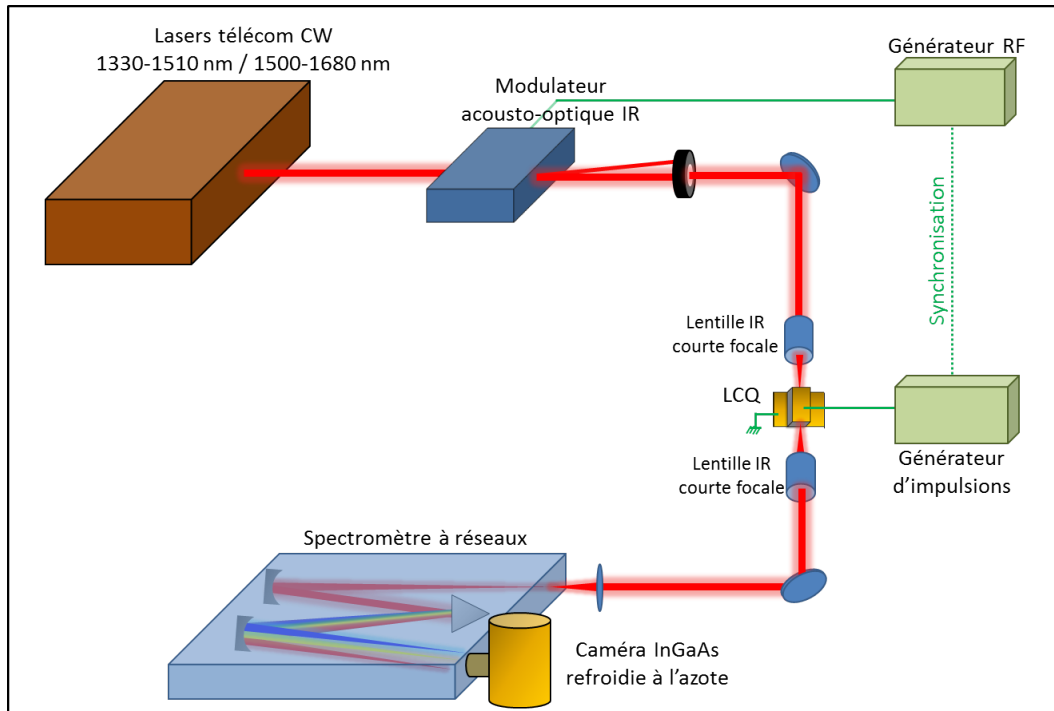


FIGURE V.10 – Schéma du montage expérimental de mélange d'ondes en transmission dans des LCQ basés sur InP sous une excitation télécom.

Deux sources du fabricant Yenista ont été utilisées selon les besoins en longueur d'onde. La première balaye une plage de longueurs d'onde de 1330 nm à 1510 nm. La seconde est accordable de 1500 nm jusqu'à 1680 nm. Ces deux sources ont été nécessaires pour obtenir les différentes configurations de mélange d'ondes expérimentées : génération de la SFG et de la DFG entre un LCQ THz ou MIR et une pompe télécom dans des LCQ maintenus à des températures allant de 77 K à température ambiante. Le montage adapté à ces nouvelles expériences est présenté sur la figure V.10.

A la place des objectifs de microscope adaptés au visible, des lentilles asphériques traitées pour les longueurs d'onde télécom sont utilisées pour focaliser le faisceau pompe et collecter le mélange en sortie du LCQ. Elles ont respectivement des distances focales de 13 mm et 15 mm ce qui permet de focaliser le faisceau de pompe sur 2 μm . Un nouveau modulateur acousto-optique adapté à la gamme télécom permet de synchroniser la pompe optique avec l'alimentation du LCQ, pour les rapports cycliques utilisés de 5 % à 30 %. Tous les miroirs qui guident les faisceaux de pompe et de mélange jusqu'au système de détection sont en or ou en argent. Une lentille de focale 3 cm traitée pour les longueurs d'onde télécom permet de focaliser les faisceaux à l'entrée du spectromètre. Parmi les différents réseaux du spectromètre vus précédemment (300 lignes/mm, 1200 lignes/mm et 1800 lignes/mm), seul le réseau de 300 traits/mm permet de disperser des faisceaux jusqu'à 1600 nm. C'est donc le seul que nous utiliserons dans cette partie, ce qui limite la résolution des spectres.

La caméra utilisée en détection est à présent une caméra équipée d'un détecteur InGaAs fourni par New Imaging Technologies, qui a été développée au laboratoire Pierre Aigrain par David Darson. Les caractéristiques de cette caméra ont été adaptées aux besoins de nos expériences, pour la recherche de signaux de faible intensité : détection au-delà de 1.5 μm , bas niveau de bruit, possibilité de faire des longues poses. J'ai activement participé au

développement et à l'optimisation de ce dispositif par des mesures de calibration et de niveau de bruit. Ce détecteur repose sur un circuit hybride : un substrat InGaAs est hybridé sur un circuit de lecture CMOS silicium par l'intermédiaire de billes InGaAs, comme représenté sur le schéma figure V.11. L'avantage du circuit de lecture CMOS repose sur le fait que chaque pixel accumule les charges et les convertit directement en tension, contrairement au circuit CCD. L'avantage supplémentaire de ce détecteur est sa dynamique de réponse en fonction de l'intensité lumineuse reçue. La dynamique du détecteur présente une première plage de réponse linéaire, puis, après une plage de transition, une seconde plage de réponse logarithmique. Cette dynamique est particulièrement intéressante pour faire ressortir de faibles signaux et éviter la saturation lors de longues poses.

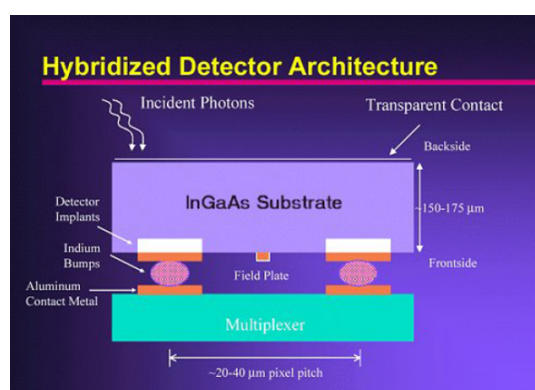


FIGURE V.11 – Schéma du détecteur hybride mis en œuvre pour la détection dans la gamme télécom.

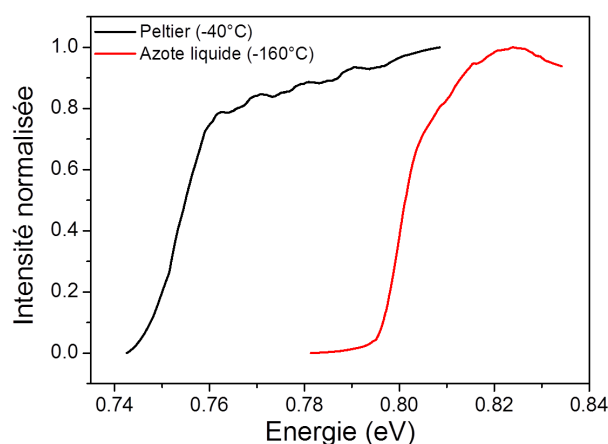


FIGURE V.12 – Réponse de la caméra InGaAs en lumière blanche, sous refroidissement Peltier (-40°C) et sous azote liquide (-160°C).

Sa limite de détection correspond à l'énergie de gap du substrat InGaAs du détecteur et dépend de la température à laquelle la caméra est refroidie. Un premier modèle refroidi grâce à un module Peltier (à -40°C) puis un second refroidi à l'azote liquide (jusqu'à -160 °C) ont été utilisés, permettant d'augmenter les temps d'intégration à faible bruit thermique.

On a tracé sur la figure V.12 le spectre de réponse de la caméra InGaAs sous refroidissement Peltier et sous refroidissement à l'azote liquide. La caméra répond sur une gamme spectrale limitée aux énergies supérieures au gap du substrat InGaAs à la température d'opération. On voit qu'à -160°C, la caméra coupe vers 0.8 eV soit 1.55 µm et à -40°C, elle coupe vers 0.76 eV soit 1.63 µm. Ces valeurs d'énergie correspondent bien à l'énergie de gap de l'InGaAs aux températures mentionnées. Sous azote, la température de la caméra peut être ajustée entre -160°C et 0°C grâce au chauffage d'une résistance. Nous verrons que pour certaines mesures nous aurons besoin d'augmenter la température de fonctionnement de la caméra pour décaler sa gamme spectrale de réponse, bien que le bruit thermique augmente.

V.2.2 Mélange d'ondes dans les LCQ MIR

Les expériences d'optique non-linéaire que nous présentons dans ce chapitre sont les premières portant sur les LCQ MIR basés sur InP, sous excitation dans la gamme télécom. Avant d'être à même de pouvoir générer du mélange d'ondes dans ces structures, il nous fallait savoir précisément à quelle longueur d'onde les exciter en résonance. Pour cela, nous avons réalisé

des mesures de photoluminescence, présentées sur la figure V.13, en fonction de l'énergie de pompe, pour différentes températures. On voit que le maximum de la photoluminescence se décale de 0.885 eV à 90 K jusqu'à 0.845 eV à 250 K. On remarque également un élargissement du spectre de photoluminescence avec la température, ce qui est cohérent avec l'augmentation du facteur d'élargissement Γ .

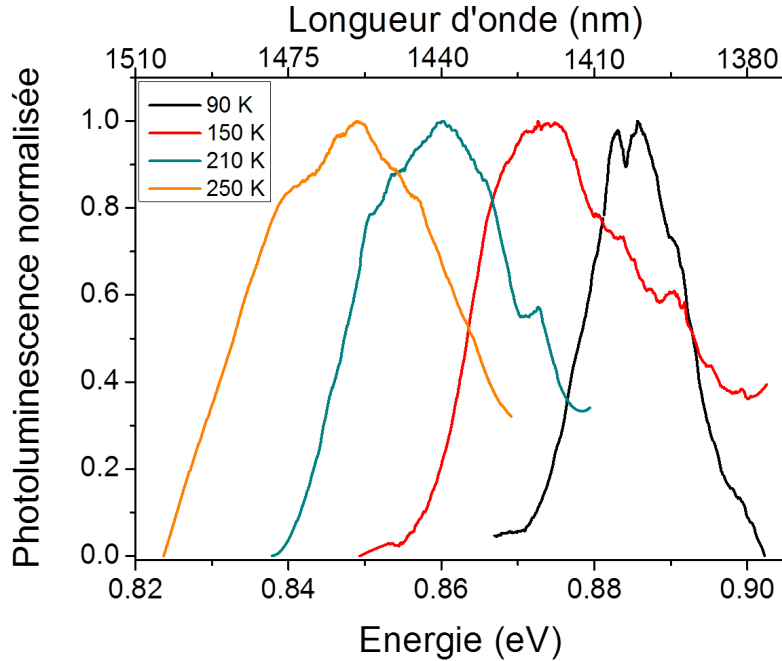


FIGURE V.13 – Intensité normalisée de la photoluminescence de la croissance InP1638 en fonction de l'énergie pour différentes températures, de 90 K à 250 K.

Compte tenu du décalage vers les plus faibles énergies, il faut adapter les longueurs d'onde d'excitation en fonction de la température d'opération du LCQ. Entre 90 K et 250 K, il faudrait typiquement décaler la pompe initialement autour de 1.3 μm jusqu'à la plage autour de 1.4 μm pour rester en résonance avec les transitions.

Grâce à un nouveau dispositif expérimental adapté pour la gamme télécom, des LCQ basés sur InP optimisés pour le mélange d'ondes et une étude complète en photoluminescence, nous allons démontrer dans cette partie la génération de la SFG et de la DFG dans la gamme télécom, mener une étude en fonction de la longueur d'onde de pompe et obtenir le mélange d'ondes à température ambiante.

Les premières démonstrations de mélange d'ondes résonant entre une pompe télécom et un LCQ MIR ont été obtenues grâce à la première génération de LCQ (InP1529) à 90 K.

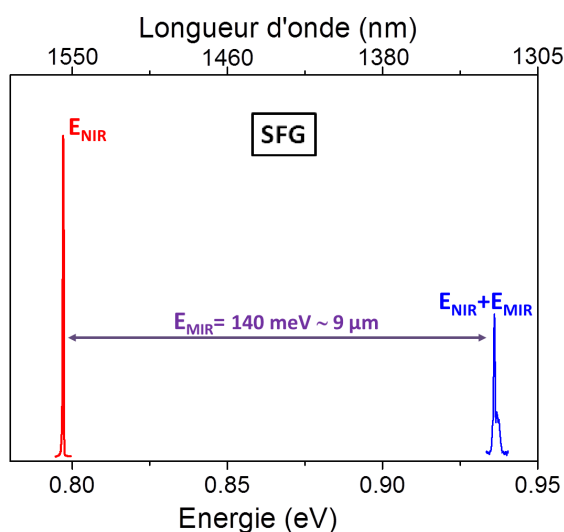


FIGURE V.14 – Génération de la SFG proche de $1.3 \mu\text{m}$ avec une pompe optique à $1.55 \mu\text{m}$, dans un LCQ MIR à 90 K .

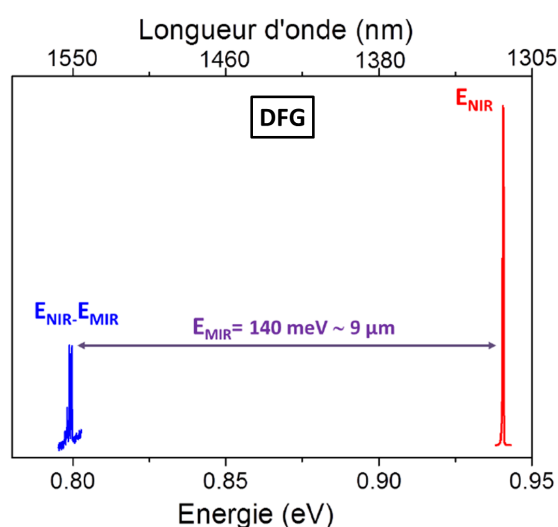


FIGURE V.15 – Génération de la DFG à $1.55 \mu\text{m}$ avec une pompe optique proche de $1.3 \mu\text{m}$, dans un LCQ MIR à 90 K .

La figure V.14 montre avec succès la génération de la SFG à $1.32 \mu\text{m}$, sous une excitation à $1.55 \mu\text{m}$. Le processus inverse de génération de la DFG à $1.55 \mu\text{m}$ sous excitation proche de $1.3 \mu\text{m}$, est mis en évidence de la même manière sur la figure V.15. Ces bons résultats montrent que l'on peut décaler la longueur d'onde entre $1.3 \mu\text{m}$ et $1.55 \mu\text{m}$, décalage très souvent opéré dans les télécommunications fibrées.

Dans ce chapitre, comme dans le suivant, nous nous intéresserons à la fois à la SFG et à la DFG, générée dans un LCQ. Revenons rapidement sur la géométrie du mélange de fréquences dans chacun des cas. On a vu pour la DFG que la pompe excite de manière résonante des transitions au-delà du gap, elle est donc rapidement absorbée. L'excitation est proche du gap de façon à ce que la DFG soit générée sous le gap, transmise jusqu'à l'extrémité du LCQ et détectée en sortie. Lorsque la pompe est à une énergie trop haute, l'énergie de la DFG passe également dans le domaine d'absorption et ne peut plus être détectée. Pour la SFG en géométrie de transmission, le même principe s'applique mais le processus est inversé. La pompe excite la zone active du LCQ à des énergies inférieures au domaine d'absorption, elle est donc transmise le long du LCQ. La SFG est générée en résonance avec des transitions des puits quantiques, à une énergie au-delà du gap. La SFG est donc rapidement absorbée dans le LCQ, seule la SFG générée dans l'extrémité finale du LCQ peut émerger et être détectée. De même, lorsque l'énergie de pompe augmente, la pompe n'excite plus que l'entrée du LCQ avant d'être absorbée et la SFG ne peut pas être détectée en sortie. Ces fonctionnements sont schématisés sur la figure V.16.

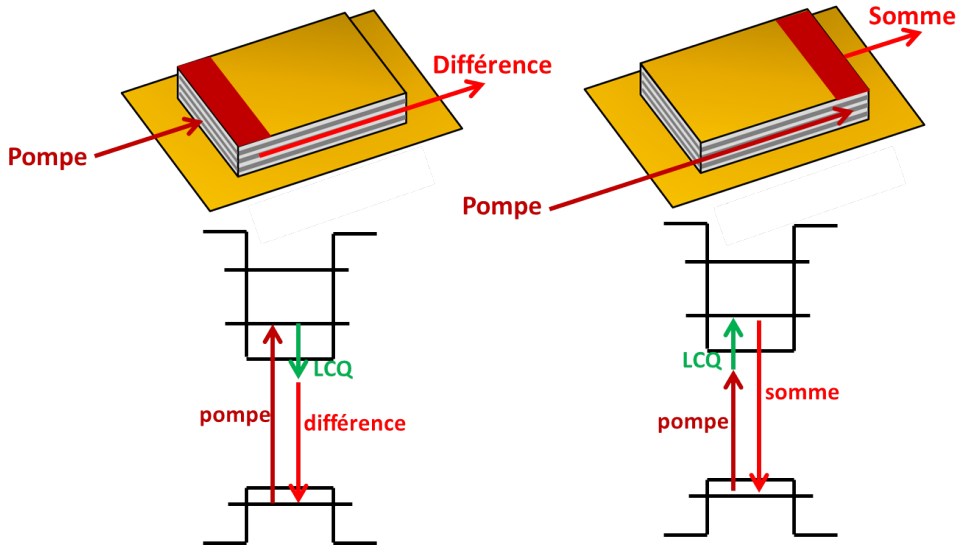


FIGURE V.16 – Schéma de génération de la DFG et de la SFG en géométrie de transmission.

Premières démonstrations à basse température

La première observation de mélange d'ondes dans la gamme télécom a été obtenue à 90 K grâce à la première génération d'échantillons, la moins dopée, nommée InP1529. Bien que la puissance de ce laser soit assez faible (8 mW à 90 K, caractéristiques LIV sur la figure V.6), le LCQ fonctionne à fort rapport cyclique ($> 40\%$) ce qui nous a permis de détecter le mélange d'ondes. Cependant, des études plus approfondies comme une étude en fonction de la longueur d'onde de pompe étaient très limitées par la faible efficacité du mélange ($< 10^{-7}$).

Pour aller plus loin, nous avons utilisé une deuxième génération de LCQ, la croissance InP1638, montrant de meilleures performances en puissance et en température (caractéristiques LIV sur la figure V.7). C'est grâce à ces nouveaux LCQ que nous avons pu montrer la génération de DFG dans la gamme télécom, de manière plus efficace à 90 K. Nous avons pu étudier l'évolution de l'intensité de la DFG en fonction de l'énergie de pompe sur une plage allant de 0.88 eV à 0.95 eV. Cette étude a cependant été limitée aux énergies de pompe supérieures à 0.88 eV car la DFG alors générée à 0.74 eV, est en limite de réponse du détecteur (premier modèle de caméra à refroidissement Peltier, température fixée à -40°C).

Cette deuxième génération de LCQ émettant jusqu'à quelques mW à température ambiante (figure V.7), on a cherché à générer du mélange de fréquences pour des plus hautes températures. À plus hautes températures, le gap de l'InGaAs est décalé vers les plus basses énergies, comme on l'a vu sur les mesures de photoluminescence, figure V.13.

Le décalage vers les plus faibles énergies est problématique à cause des limites de réponse du détecteur. À 250 K, une excitation à $1.4\ \mu\text{m}$ en résonance, conduit à la génération de la DFG à $1.66\ \mu\text{m}$, bien au-delà de la limite du détecteur (particulièrement refroidi à l'azote). On s'intéresse alors préférentiellement à la SFG et non plus à la DFG, afin que le faisceau généré soit à plus haute énergie et puisse être détecté par notre caméra. À l'inverse maintenant, une excitation à $1.66\ \mu\text{m}$ donnera un faisceau de SFG généré à $1.4\ \mu\text{m}$ (0.885 eV) dans la gamme de réponse du détecteur. Avec le LCQ InP1638, la génération de SFG n'a cependant pas pu être observée pour des températures supérieures à 180 K. La puissance du LCQ disponible à température ambiante (quelques mW) n'est probablement pas suffisante pour générer le mélange de fréquences à ces températures.

Ces résultats bien qu'obtenus à basse température sont très concluants. Le LCQ utilisé dans cette partie émet jusqu'à quelques mW à température ambiante, avec de forts rapports cycliques, mais cela n'est pas suffisant pour détecter le mélange de fréquences télécom à température ambiante dans les LCQ. Pour cela, on a travaillé avec une troisième croissance InP1768, de nouveau plus dopée que la précédente, qui émet plus de 60 mW à température ambiante (figure V.8).

Démonstrations plus efficaces à plus haute température

C'est grâce à la croissance InP1768, dont les caractéristiques ont été présentées sur la figure V.8, que nous avons pu démontrer la génération de mélange d'ondes dans la gamme télécom à plus haute température et jusqu'à la température ambiante. Pour cette nouvelle phase d'expériences, nous avons mis en place le second détecteur refroidi à l'azote liquide. Sauf cas spécifique, le détecteur est maintenu à -160°C et son énergie de coupure est celle présentée sur la figure V.12.

Les études en fonction de la longueur d'onde de pompe qui vont suivre, ont été réalisées avec minutie, en prenant une mesure tous les nanomètres sur près de 200 nm, en vérifiant les puissances d'entrée. Le couplage étant très sensible dans ces structures (zone active de 2 μm d'épaisseur sur 10 μm de large), on observe des variations importantes d'une valeur à la suivante, comme on peut le voir sur la figure V.17.

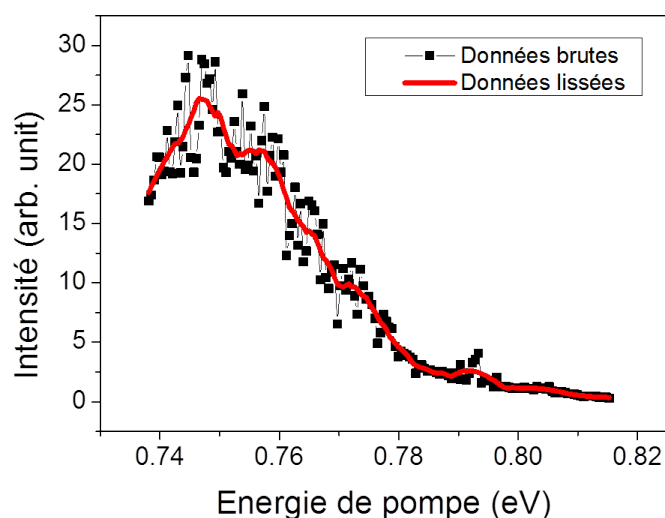


FIGURE V.17 – Évolution de l'intensité de la somme de fréquences en fonction de l'énergie de pompe à 250 K. En noir avec des symboles sont présentées les données brutes et en rouge la courbe lissée.

On s'intéresse à la tendance générale de l'évolution de l'intensité du mélange de fréquences en fonction de l'énergie de pompe, on présentera donc dans la suite de ce chapitre des courbes lissées.

La figure V.18 présente la génération de la SFG dans ces structures à 250 K, pour des valeurs de longueurs d'onde de pompe allant de 1510 nm à 1680 nm (pic normalisé). La SFG

est ainsi générée à 140 meV d'écart de la pompe, à des longueurs d'onde allant de 1300 nm à 1415 nm. Ces résultats ont été obtenus lorsque le LCQ alimenté à 5 % de rapport cyclique (par précaution), pour une densité de courant de 4.5 kA/cm² soit une puissance émise de 60 mW.

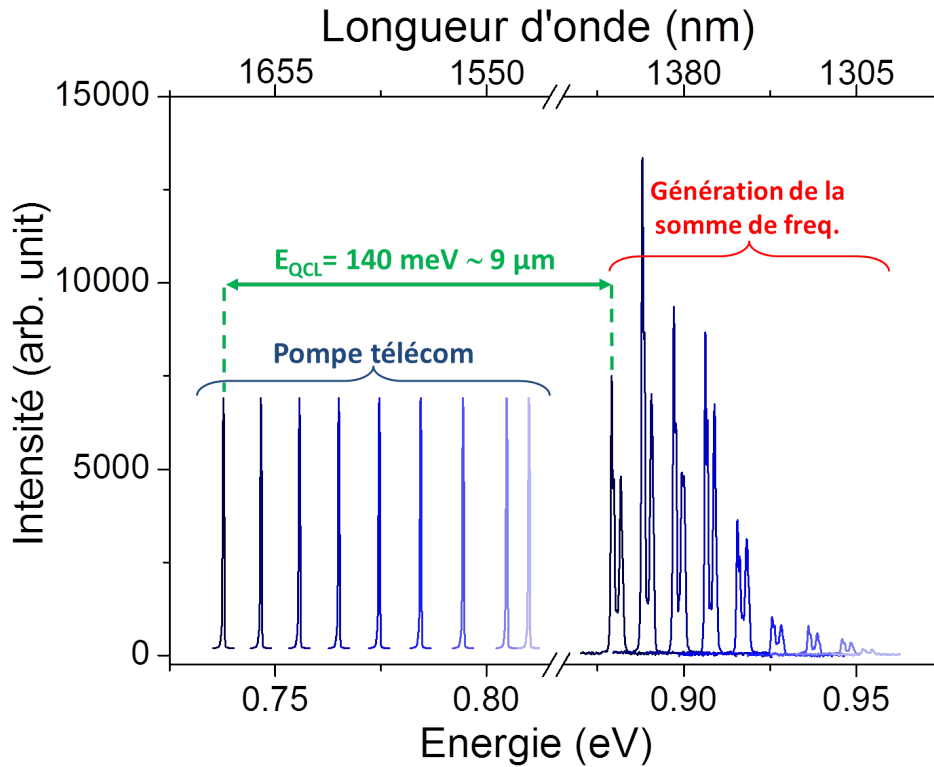


FIGURE V.18 – Génération de la SFG pour différentes longueurs d'onde de pompe à 250 K, dans l'échantillon InP1768. Le pic de pompe est normalisé pour plus de clarté.

On voit sur la figure V.18 que le transfert de longueur d'onde de 1.3 μm à 1.55 μm est toujours possible, bien que le signal de SFG généré soit plus faible que pour des longueurs d'onde de pompe plus longues. En effet, à plus haute température, le gap est décalé vers les plus basses énergies, comme on l'a vu sur les mesures de photoluminescence figure V.13 et une excitation de pompe à 1.55 μm est déjà en partie absorbée, limitant l'efficacité de la conversion. La limite d'excitation à 1680 nm est imposée par le laser télécom mais la génération de la SFG est a priori tout à fait possible pour des énergies plus faibles, compte tenu qu'une excitation à 1680 nm permet de générer de la SFG à une énergie bien supérieure aux premières transitions électron-trou, comme nous allons le voir.

La figure V.19 présente l'intensité intégrée (lissée) de la SFG générée en variant l'énergie de pompe, tracée en fonction de l'énergie de la SFG. Les premiers recouvrements électron-trou les plus intenses (supérieurs à 0.5 A en valeur absolue) ont été représentés par des symboles verts. Ces recouvrements ont été calculés à partir des états mis en évidence sur la structure de bandes présentée figure V.20.

Pour des énergies supérieures à 0.9 eV, l'intensité de la SFG diminue car l'énergie de la pompe commence à être absorbée. Pour générer la SFG à 0.9 eV, la pompe excite le LCQ à 0.76 eV. Cette valeur est plus faible que la valeur attendue pour le seuil d'absorption dans les

puits quantiques de la zone active à 250 K. On peut s'intéresser à la transmission à travers le LCQ comme élément d'information pour comprendre l'absorption. La figure V.21 compare, en traits pleins, la transmission à 250 K lorsque le LCQ est éteint (noir) et lorsque le LCQ est alimenté (rouge). On observe un décalage important de 25 meV vers les basses énergies lorsque le LCQ est allumé, ce décalage est probablement dû à une élévation locale de température lorsque le LCQ doit dissiper la puissance électrique, comme on l'a vu précédemment sur les LCQ GaAs. Lorsque le LCQ est alimenté, l'absorption débute dès 0.765 eV d'après les courbes de la figure V.21, ce qui est cohérent avec la diminution observée sur l'intensité de la SFG, figure V.18.

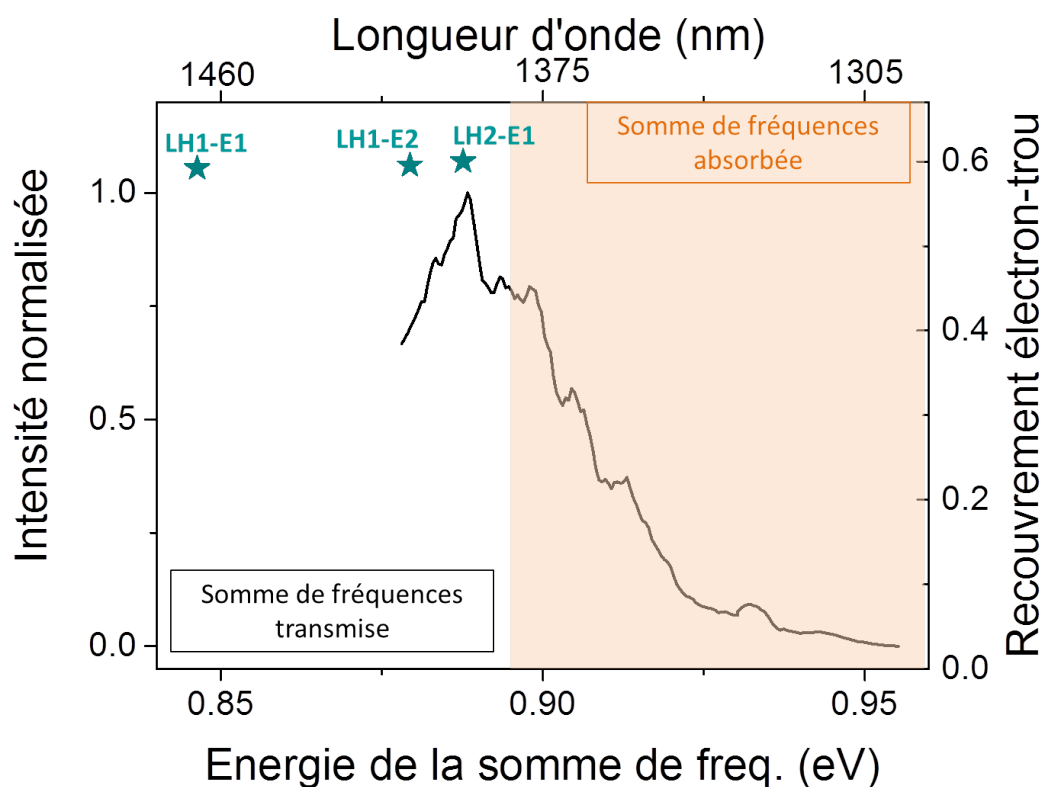


FIGURE V.19 – Intensité de la somme de fréquences en fonction de l'énergie de la SFG, à 250 K dans l'échantillon InP1768. Elle est comparée aux principaux recouvrements électron-trou léger (symboles verts).

La puissance de la pompe transmise qui excite l'extrémité opposée du LCQ pour générer la somme, est progressivement de plus en plus faible à mesure que l'énergie de pompe augmente, au-delà du seuil d'absorption. L'intensité de la somme de fréquences (proportionnelle à la puissance de pompe) diminue en conséquence. Cette diminution est lente (sur près de 50 meV), plus lente que ce que l'on a pu observer dans les LCQ basés sur GaAs à 210 K (diminution sur 30 meV). Une justification simple repose sur le fait qu'on génère maintenant le mélange de fréquences à plus haute température. La transition entre énergie transmise et énergie absorbée est bien moins abrupte à 250 K qu'à 90 K, comme on peut le voir sur la figure V.21, où est tracée en pointillés la transmission à travers le LCQ alimenté (rouge) ou éteint (noir). La transition entre énergies transmises et énergies absorbées se fait sur plus de 40 meV, lorsque le LCQ est alimenté à 250 K, alors qu'elle ne se fait que sur 25 meV lorsque le LCQ est alimenté à 90 K. A plus haute température, les transitions s'élargissent, ce qui explique que

la transition entre énergies transmises et énergies absorbées soit moins abrupte.

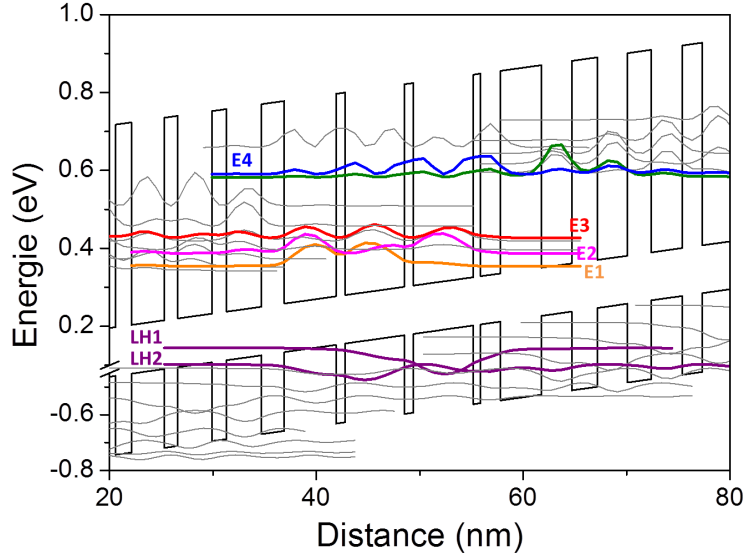


FIGURE V.20 – Structure de bandes du LCQ MIR basé sur InP, les états électroniques impliqués et les états de trou donnant les principaux recouvrements sont surlignés en couleurs.

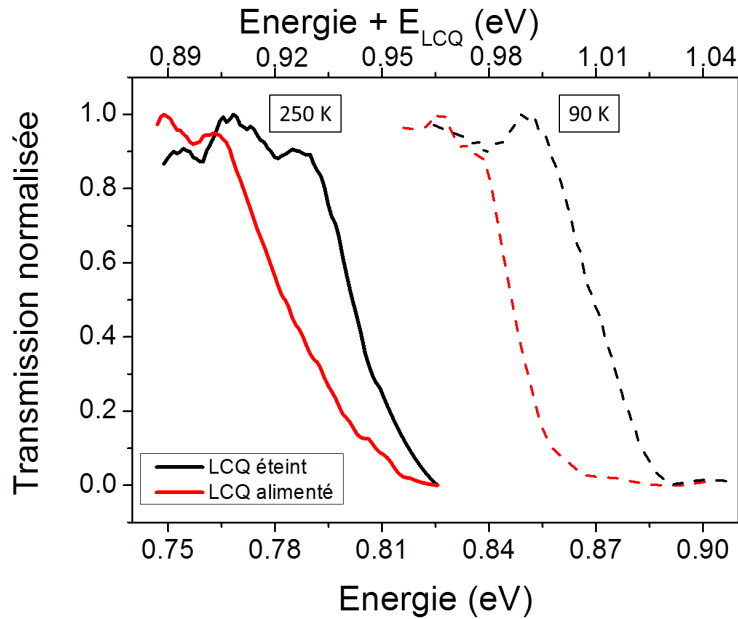


FIGURE V.21 – Transmission normalisée pour InP1768 à 250 K (traits pleins) et à 90 K (traits pointillés), en noir lorsque le LCQ est éteint et en rouge lorsque le LCQ est en fonctionnement.

La limite d'excitation à 1680 nm (SFG générée à 0.875 eV), imposée par le laser télécom nous contraint à observer l'évolution en fonction de l'énergie que sur une très petite plage d'énergie avant le seuil d'absorption. Les simulations des recouvrements électron-trou nous indiquent la présence de transitions favorables à de plus faibles énergies, autour de 0.85 eV d'énergie de la SFG, soit une longueur d'onde de pompe de 1.75 μm . Il aurait été intéressant d'explorer la plage 0.8 - 0.9 eV pour comparer l'évolution de l'intensité de la SFG avec $\chi^{(2)}$

ou encore étudier les effets en polarisation.

Des mesures de photoluminescence à la température d'opération de 250 K ont permis de confirmer la présence de transitions de plus basses énergies, vers 0.85 eV, en accord avec les calculs de recouvrement électron-trou (voir la précédente figure des mesures de photoluminescence en température, figure V.13). Si les moyens techniques l'avaient permis, il aurait été intéressant d'exciter ces transitions de plus basses énergies, à l'aide d'un laser de longueur d'onde supérieure à 1680 nm.

On présente ici une mesure complémentaire de la génération de la SFG en fonction du courant injecté. Les spectres de SFG, reportés sur la figure V.22, sont tracés pour différents courants injectés, en fonction de la longueur d'onde d'émission du LCQ (déduite de $E_{LCQ} = E_{somme} - E_{pompe}$). Ces spectres sont comparés aux spectres directs du LCQ MIR, mesurés à l'aide d'un spectromètre MIR (Bristol Instruments), reportés sur la figure V.23, pour les mêmes courants appliqués. Le spectre de la SFG semble reproduire les modes du LCQ, bien que la résolution du réseau limite la mise en évidence des détails. On reconnaît sur les deux figures des caractéristiques similaires, comme l'élargissement progressif du spectre avec l'augmentation du courant injecté. On peut envisager d'utiliser des spectromètres de la gamme télécom, moins coûteux que dans la gamme THz-MIR dont la résolution peut atteindre le picomètre.

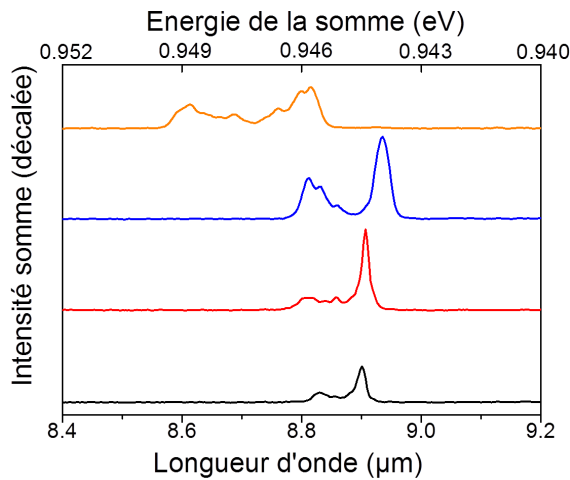


FIGURE V.22 – Spectres de la SFG générée pour différents courants injectés dans le LCQ MIR InP1638.

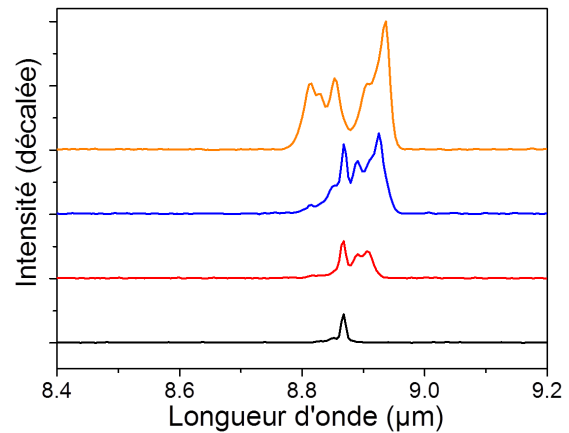


FIGURE V.23 – Spectres du LCQ MIR InP1638, pour différents courants injectés, mesurés au spectromètre MIR, aux mêmes courants que la figure V.22.

Dans cette partie, nous avons présenté la première démonstration de génération de la somme de fréquences entre une excitation dans la gamme télécom et un LCQ MIR basé sur InP. L'évolution de l'intensité du faisceau généré a été étudiée en fonction de l'énergie de pompe, montrant un effet résonant puis une diminution liée à l'absorption. Ces résultats ont été démontrés à 250 K et sont très encourageants pour une démonstration à température ambiante.

V.2.3 Mélange d'ondes dans les LCQ MIR à température ambiante

Avec la croissance plus dopée réalisée (InP1768), nous avons obtenu le mélange de fréquences à température ambiante dans la gamme télécom. La difficulté est qu'à température ambiante, le gap se décale vers les faibles énergies ou les grandes longueurs d'onde. A nouveau, il devient difficile soit d'exciter suffisamment bas en énergie pour générer la somme de fréquences (limite maximale de notre laser à 1680 nm) soit l'excitation est possible à plus haute énergie pour générer la DFG, mais la détection est impossible pour des longueurs d'onde au-delà de 1650 nm. La figure V.24 présente l'évolution de l'intensité de la somme de fréquences sur une petite plage de longueurs d'onde, jusqu'en limite du laser d'excitation, à température ambiante (290 K).

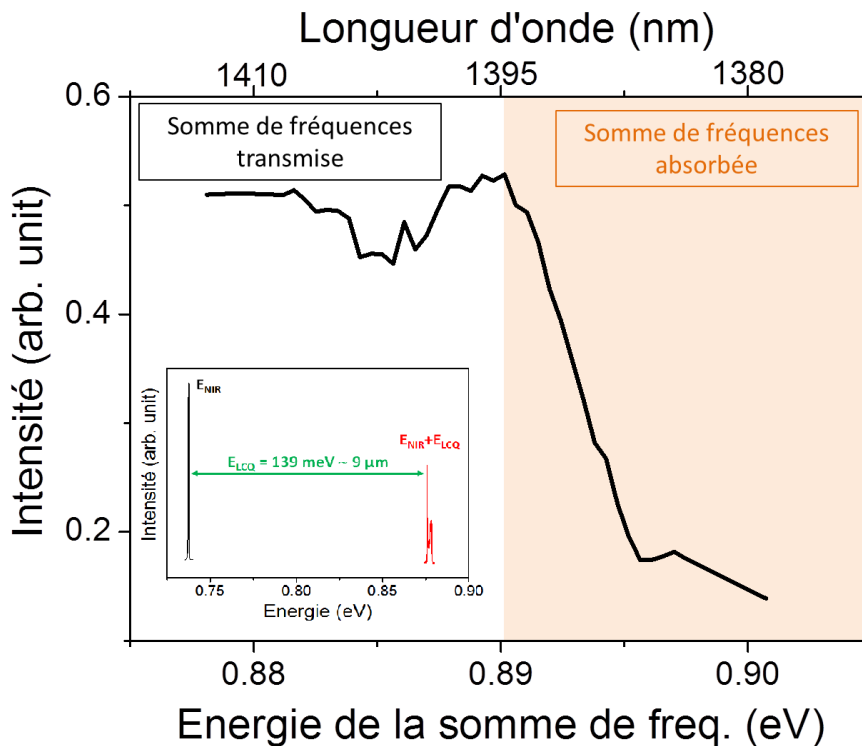


FIGURE V.24 – Evolution de l'intensité intégrée de la somme de fréquences en fonction de la longueur d'onde de pompe à 290 K.

La limite de génération de SFG observée à 0.878 eV correspond à la limite du laser d'excitation, à une longueur d'onde de pompe de 1680 nm. La diminution dès 0.89 eV est due à l'absorption de la pompe. L'étude en fonction de l'énergie est très restreinte à haute température, mais nous avons démontré que le mélange de fréquences à température ambiante était possible, ouvrant la porte vers de possibles applications bien plus facilement implémentables grâce à des conditions d'opération à température ambiante.

Pour dépasser les limites que l'on constate à température ambiante, il faudrait dépasser l'absorption qui a lieu dès une énergie faible à cette température (0.745 eV, soit 1660 nm). Pour cela, deux idées ont été avancées. La première consiste à développer un nouveau dessin de structure de bandes, composé de puits quantiques plus étroits, dans lesquels les états électroniques seraient décalés vers de plus hautes énergies. On pourrait ainsi décaler la limite

due à l'absorption et les transitions résonantes vers de plus hautes énergies et ainsi rendre à nouveau possible le transfert de longueur d'onde entre $1.3 \mu\text{m}$ et $1.55 \mu\text{m}$ à température ambiante. Ce dessin de structure de bandes est présenté dans l'annexe D. On note que le LCQ lui-même risque d'être moins performant car les états électroniques de la transition laser sont plus proches du continuum d'énergie.

Une seconde idée propose une nouvelle géométrie d'excitation à travers une fente gravée à la surface du LCQ. Cette géométrie en réflexion par la surface est appliquée dans le cas de LCQ THz dans le chapitre VI. Dans cette géométrie, on réduit la longueur d'interaction à quelques μm (épaisseur de la zone active) ce qui diminue fortement l'absorption par rapport à la géométrie en transmission le long de plusieurs mm de cavité. Des échantillons ont été fabriqués à partir de la croissance InP1768. Une fente a été gravée à la surface à l'aide d'un faisceau focalisé d'ions (Focused Ion Beam FIB en anglais) sur quelques μm à la surface du LCQ. Ces échantillons seront testés expérimentalement très prochainement.

Comme on a pu le faire dans la partie IV.5, il est intéressant de comparer le comportement de l'intensité de la SFG et le comportement de la puissance du LCQ en fonction de la température. L'énergie de pompe doit être décalée avec la température pour rester en résonance avec le maximum d'émission, en suivant la même loi que celle du décalage de l'énergie de gap avec la température.

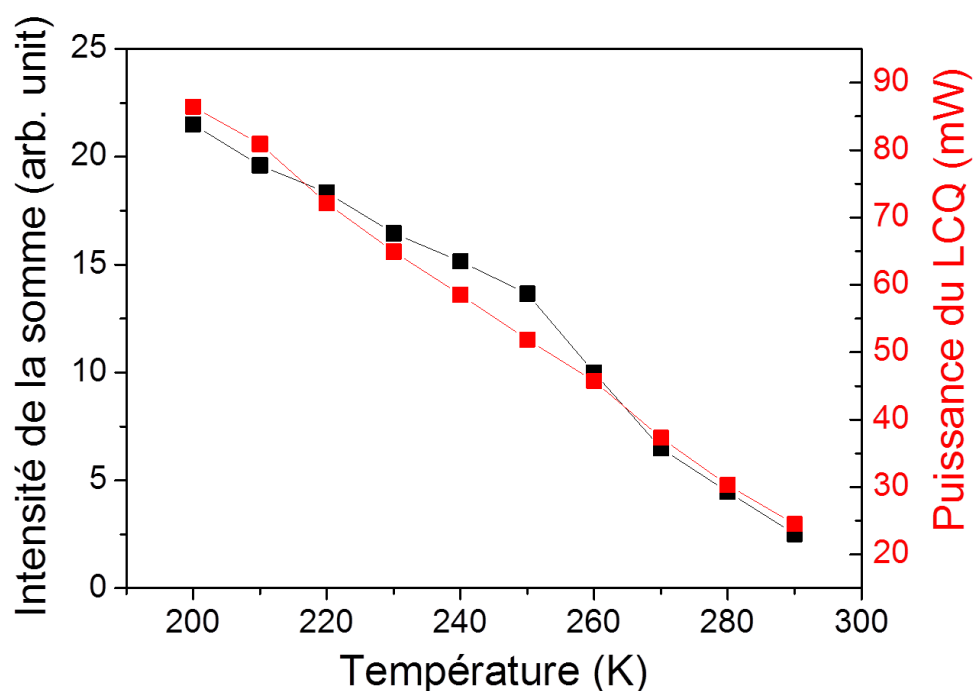


FIGURE V.25 – Évolution de l'intensité de la SFG (axe de gauche, en noir) en fonction de la température, comparée à l'évolution de la puissance émise par le LCQ (axe de droite, en rouge) en fonction de la température.

La figure V.25 présente ces résultats avec sur l'axe de gauche l'intensité intégrée de la SFG (en noir, unités arbitraires) et sur l'axe de droite la puissance du LCQ (en rouge). On retrouve sur ces résultats un comportement similaire en fonction de la température. Cette observation vient confirmer la précédente démonstration dans la partie IV.5, la puissance du LCQ est le facteur prédominant qui est influencé par la température, la susceptibilité non-linéaire l'est

très peu, sur la plage de température étudiée. On remarque que la courbe de puissance ne diverge pas de la courbe d'intensité de la SFG à hautes températures, contrairement à ce que l'on a vu dans le chapitre IV, figure IV.18. Dans le cas présent, même à température ambiante, les LCQ MIR basés sur InP sont toujours dans une bonne gamme d'opération.

Forts de ces démonstrations d'optique non-linéaire dans la gamme télécom, en utilisant des LCQ MIR basés sur InP, nous nous sommes intéressés au mélange de fréquences dans les LCQ THz basés sur InP. Grâce aux précédents travaux sur les LCQ THz basés sur GaAs [8] [9] et aux démonstrations théoriques présentées dans le chapitre II, on peut s'attendre à des non-linéarités plus importantes aux fréquences THz. Il est intéressant ici de mener des expériences de mélange d'ondes dans les LCQ THz basés sur InP, afin de comparer l'efficacité du processus dans les LCQ THz et MIR, dans les mêmes conditions expérimentales.

V.3 Caractérisation des LCQ THz basés sur InP

V.3.1 Structure de bandes

Le LCQ THz basé sur InP employé dans les expériences de mélange d'ondes sous excitation télécom présentées dans ce chapitre, a été dessiné par Sukhdeep Dhillon et Raffaele Colombelli. La croissance a été réalisée par MBE à Thalès et le process par nos collaborateurs de l'IEF. Le dessin de la structure de bandes que nous présentons sur la figure V.26 n'est donc pas publié dans la littérature.

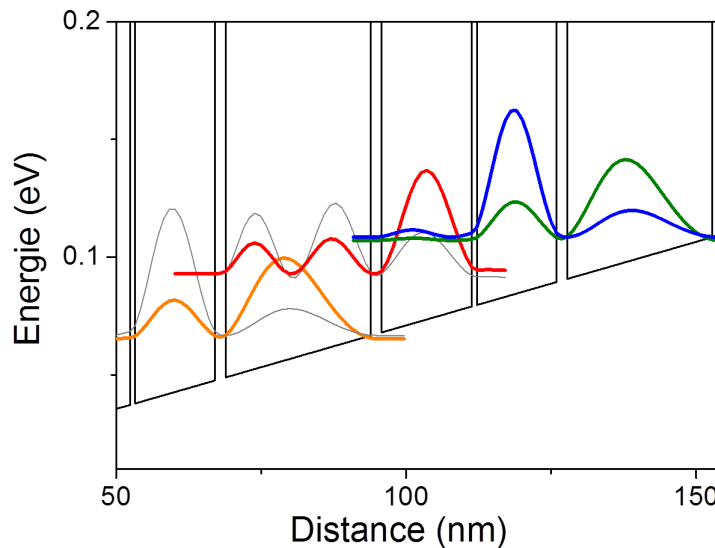


FIGURE V.26 – Structure de bandes du LCQ THz basé sur InP (ART2601), la séquence de croissance est : **1.9**/13.7/**0.9**/15.5/**1.9**/25 nm. Les couches barrière de $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ sont marquées en gras et les couches puits de $\text{In}_{53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ sont en écriture latine. Les couches dopées type n en Si ($n = 2e16 \text{ cm}^{-3}$) sont soulignées.

Ce LCQ émet à 4 THz. On retrouve en vert l'état injecteur qui peuple l'état haut de la transition (en bleu). La transition diagonale a lieu vers l'état bas (en rouge) en émettant un photon de 17 meV soit une longueur d'onde d'environ 73 μm . La dépopulation s'effectue

en résonance avec un LO-phonon vers un autre état électronique représenté en orange. La séquence est répétée 185 fois.

V.3.2 Caractéristiques LIV

La figure V.27 présente les caractéristiques Puissance-Tension-Courant du LCQ THz basé sur InP que l'on a utilisé. Cet échantillon, doté d'un guide double métal, fonctionne jusqu'à 110 K à 1 % de rapport cyclique. Pour garder une bonne puissance d'émission en évitant le refroidissement à l'hélium, nous avons travaillé à 77 K pour ces expériences.

L'échantillon sur lequel on a travaillé dans cette partie, est constitué d'un ruban de 1 mm de long et 160 μm de large. Nous avons pu calibrer la puissance émise à 77 K à environ 2 mW crête. Il est doté d'un guide double métal, qui nous permet de confiner à la fois le champ THz et le faisceau d'excitation NIR. Des couches InGaAs dopé ($5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$) de 50 nm et 100 nm assurent la jonction entre la zone active et les couches d'or de guide.

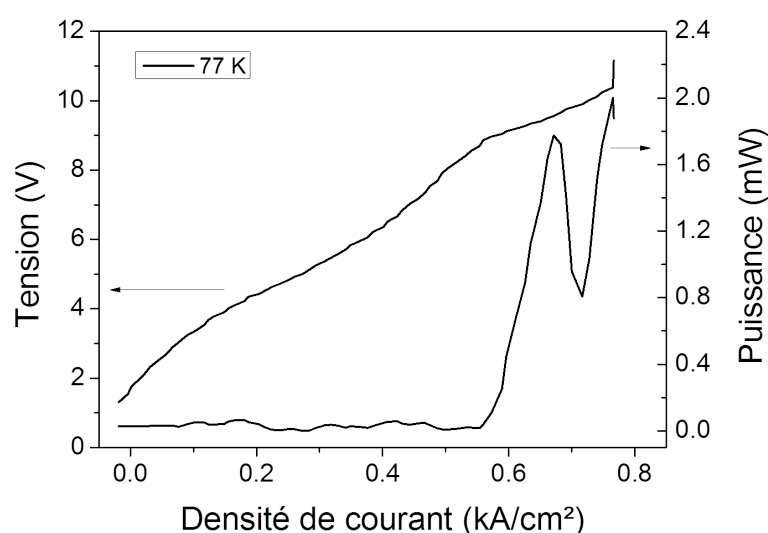


FIGURE V.27 – Caractéristiques Puissance-Tension-Courant à 77 K pour le LCQ THz basé sur InP.

V.4 Mélange d'ondes dans les LCQ THz

Les énergies d'excitation télécom utilisées pour le mélange dans les LCQ THz sont situées autour de 1.55 μm , afin d'exciter de manière résonante les transitions électroniques proches du gap de InGaAs à 77 K, à 0.81 eV. Le mélange généré, SFG ou DFG, n'est décalé que de l'énergie THz, ici 17 meV. La figure V.28 montre la génération de la SFG dans un LCQ THz, comparée à la génération de la SFG dans un LCQ MIR, pour une même longueur d'onde d'excitation à 1.55 μm . La SFG issue d'un LCQ THz est générée proche de la pompe, dans le cas de la figure V.28 à 1520 nm, dans la même bande télécom entre 1.5 μm et 1.6 μm .

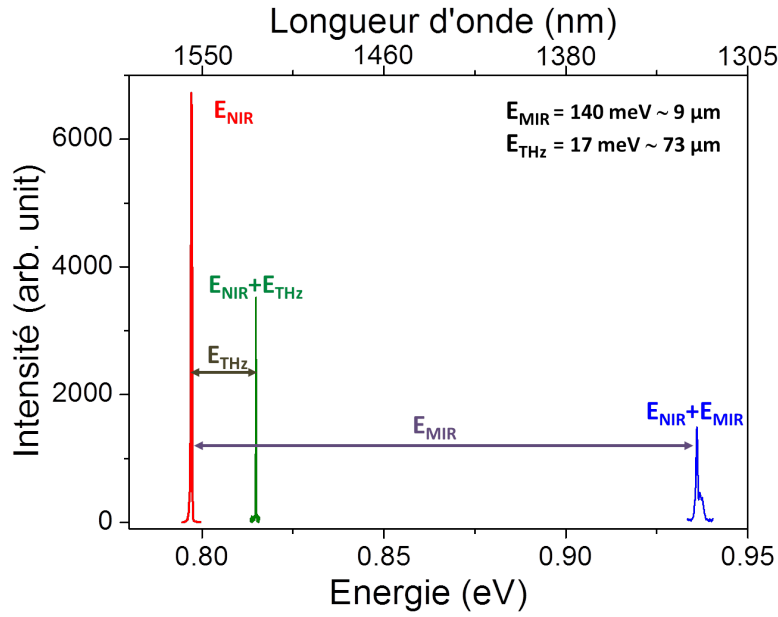


FIGURE V.28 – Génération de la SFG dans un LCQ THz basé sur InP, comparée à la génération de la SFG dans un LCQ MIR basé sur InP vue précédemment.

Nous avons pu étudié à la fois la génération de la SFG et de la DFG dans ce LCQ THz basé sur InP à 77 K. Les figures V.29 et V.30 montrent sur la partie supérieure la génération de la SFG (bleu) et de la DFG (rouge) générées pour différentes énergies de pompe représentées sur la partie inférieure. Pour ces expériences, c'est également le détecteur refroidi à -160°C à l'azote liquide qui est utilisé. On voit d'ailleurs que la détection de la différence de fréquences pour les plus faibles énergies de pompe est limitée par la réponse du détecteur, au-delà de $1.56\ \mu\text{m}$. Le décalage entre la pompe et le mélange est de 35 nm dans cette gamme télécom.

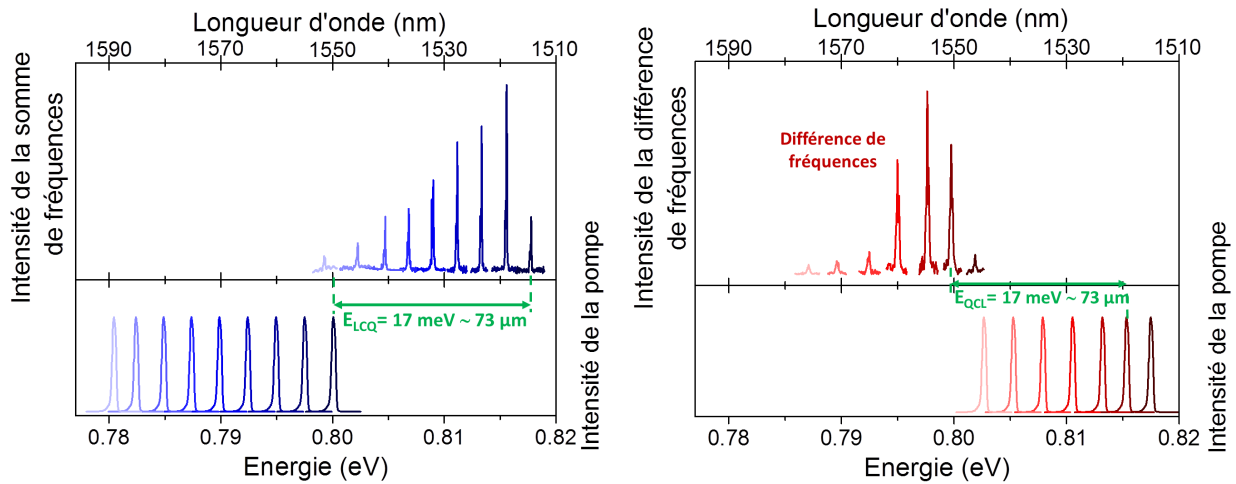


FIGURE V.29 – Génération de la SFG pour différentes longueurs d'onde de pompe.

FIGURE V.30 – Génération de la DFG pour différentes longueurs d'onde de pompe.

La figure V.31 montre l'intensité de la DFG (noir) et de la SFG (rouge) tracée en fonction de l'énergie de pompe et de l'énergie de la SFG respectivement. On reconnaît une partie

croissante à mesure que la pompe est plus proche des meilleures conditions de résonance et la partie de rapide décroissance correspondant à l'absorption de la DFG ou de la pompe (pour la génération de la SFG). La figure insérée montre les premiers recouvrements électron-trou léger, calculés à partir des états de la structure de bandes reportée sur la figure V.32. Le premier recouvrement intense a lieu à 0.825 eV, entre les états LH1 et E4.

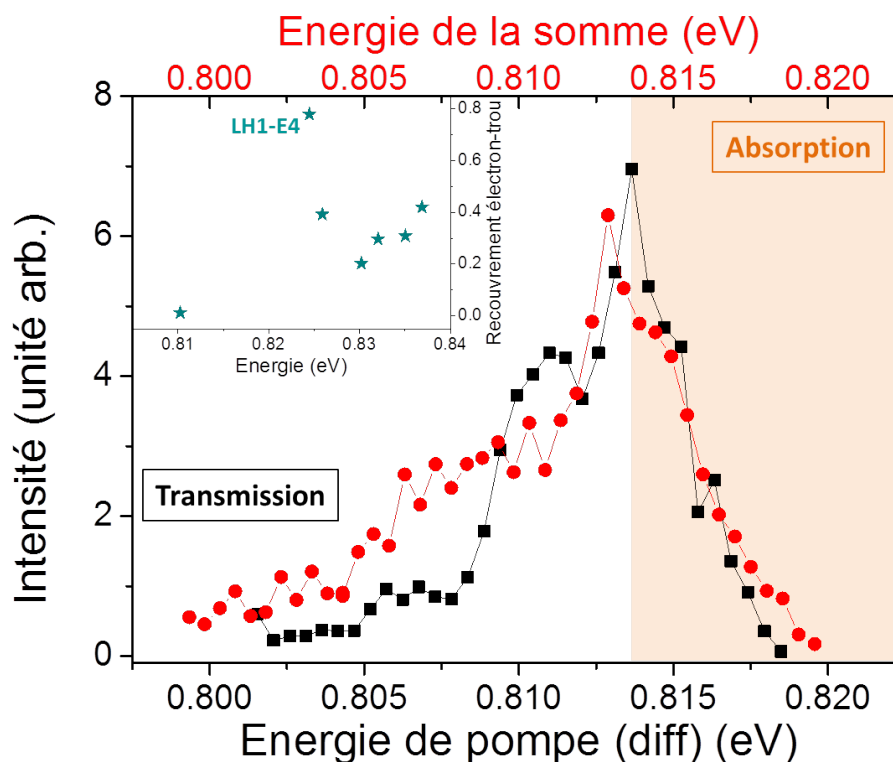


FIGURE V.31 – Intensité de la DFG (noir) et de la SFG (rouge) de fréquences en fonction de l'énergie de pompe (DFG) ou de l'énergie de la SFG. Inset, recouvrements électron-trou léger.

On peut remarquer que le mélange de fréquences est détecté à partir de 0.8 eV, en dessous du gap à 77 K (0.81 eV). L'intensité de la SFG générée augmente d'abord lentement entre 0.8 et 0.81 eV avant de montrer une augmentation beaucoup plus rapide entre 0.81 eV et 0.815 eV. Le mélange d'ondes détecté à si basse énergie peut reposer sur des non-linéarités non-résonantes du massif (on verra d'autres démonstrations dans le chapitre suivant) ou sur des transitions diagonales. On peut voir sur la figure insérée de la figure V.31 qu'il existe de faibles recouvrements diagonaux à 0.81 eV. L'augmentation rapide débute lorsque l'énergie de la pompe (pour la génération de DFG) ou l'énergie de la SFG s'approche des résonances avec les premières transitions intenses à 0.825 eV (en considérant toujours un certain élargissement spectral). L'absorption limite la détection du mélange de fréquences dès 0.815 eV. Sans la diminution liée à l'absorption, l'intensité devrait continuer à augmenter, profitant de l'exaltation due à des conditions de résonances plus favorables.

La DFG est très faible jusqu'à une énergie de pompe de 0.808 eV, contrastant avec la génération de la SFG qui augmente plus tôt. Cette faible intensité de la DFG peut s'expliquer par la plus faible réponse du détecteur pour des énergies inférieures à 0.79 eV. En dehors de cette différence, les évolutions de la SFG et de la DFG sont très similaires, en fonction de l'énergie de pompe ou l'énergie de la SFG. L'absorption a lieu pour une énergie de pompe entre

0.813 et 0.82 eV, soit une énergie de la DFG de 0.796-0.803 eV. Cette énergie est inférieure à l'énergie du gap attendue pour 77 K (0.81 eV) (voir les discussions du chapitre précédent).

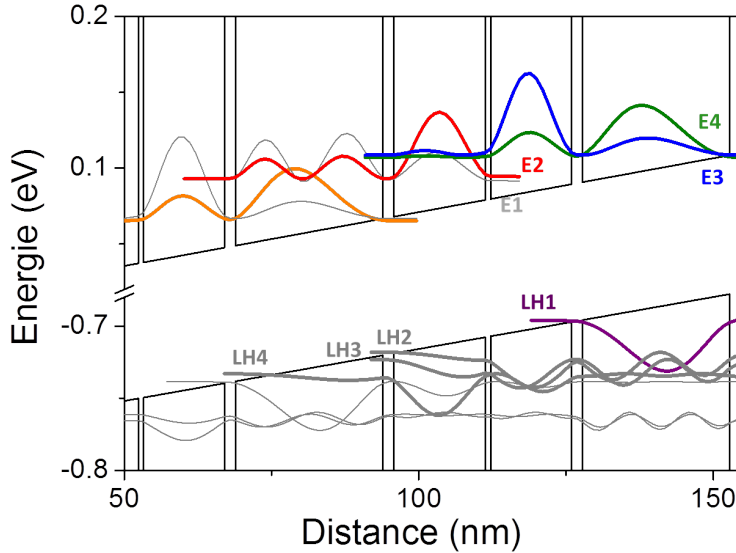


FIGURE V.32 – Structure de bandes du LCQ THz basé sur InP. Les états électroniques et les états trous légers sont représentés.

Nous avons montré dans cette partie la génération de SFG et DFG dans un LCQ THz basé sur InP. Nous nous sommes intéressés à l'évolution en fonction de l'énergie de pompe, retrouvant le comportement résonant attendu, limité par l'absorption.

On peut noter ici que grâce au fort confinement du champ THz dans le guide double métal, nous avons également réussi à observer la génération d'une bande latérale d'ordre 2 à une énergie $E_{pompe} + 2E_{THz}$. Nous n'avons pas approfondi plus ce point, déjà bien explicité dans le travail précédent de Cavalié et al. [9] dans les LCQ THz basés sur des couches GaAs/AlGaAs.

V.5 Efficacité et $\chi^{(2)}$

Il est intéressant de comparer la valeur obtenue expérimentalement pour la susceptibilité non-linéaire dans les deux configurations présentées dans ce chapitre, le mélange d'ondes dans la gamme télécom dans des LCQ MIR et THz basés sur InP. On fera à nouveau l'hypothèse de négliger le désaccord de phase devant les pertes de pompe, dans les deux cas, avant de comparer les valeurs expérimentales aux prédictions théoriques et de conclure.

V.5.1 $\chi^{(2)}$ par la mesure de l'efficacité

L'efficacité a pu être déterminée en mesurant d'une part l'intensité du mélange généré et d'autre part l'intensité de la pompe transmise sur la caméra. Celle-ci a été obtenue pour le maximum de génération de la SFG dans le LCQ THz basé sur InP à 77 K pour une excitation à 1.555 μm et une génération à 1.52 μm . On a mesuré une efficacité $\eta_{THz} = 2e-5$. Cette valeur est plus faible que l'efficacité obtenue précédemment dans les LCQ THz basés sur GaAs, mais elle dépend de la puissance du LCQ, des pertes... Il est donc plus pertinent de comparer les

valeurs de $\chi^{(2)}$. Pour évaluer l'efficacité du mélange dans le LCQ MIR basé sur InP à 250 K, on se place au maximum de génération de la SFG, pour une excitation vers 1.66 μm et une génération à 1.398 μm . Pour effectuer cette dernière mesure, la caméra est maintenue à -40°C afin de décaler la réponse du détecteur vers les plus faibles énergies. On obtient une efficacité $\eta_{MIR} = 1\text{e-6}$.

Bien que l'on s'intéresse ici au processus de génération de la SFG et non plus au processus de génération de la DFG, le raisonnement mené au chapitre II est parfaitement symétrique pour les deux processus, l'absorption sur la pompe étant remplacée par l'absorption sur la SFG. Pour évaluer la susceptibilité non-linéaire à partir de la mesure expérimentale de l'efficacité, on peut donc à nouveau utiliser la formule en inversant le rôle du faisceau de pompe et du faisceau généré :

$$|\chi^{(2)}| \approx \sqrt{\eta_{sum} \frac{\epsilon_0 n_{NIR} n_{LCQ} n_{sum} c \lambda_{pompe}^2 S \alpha_{sum}^2}{32\pi^2 P_{LCQ}}}$$

On évalue les différents paramètres intervenant dans cette expression, pour le mélange dans les LCQ THz et dans les LCQ MIR. Les indices sont calculés aux longueurs d'onde appropriées. Pour le mélange dans le LCQ THz, ils sont tels que $n_{NIR} = 3.53$, $n_{sum} = 3.54$ et $n_{THz} = 3$. Pour le mélange dans le LCQ MIR, les indices sont tels que $n_{NIR} = 3.48$, $n_{sum} = 3.55$ et $n_{MIR} = 3.2$. Les puissances intracavité ont été évaluées à partir des mesures de puissance habituelles. En prenant en compte un coefficient de réflexion de 0.3, on évalue la puissance intracavité du LCQ MIR à $P_{MIR} = 85$ mW. Pour le LCQ THz, compte tenu du guide double métal, on suppose un coefficient de réflexion de 0.9, on évalue la puissance intracavité à $P_{THz} = 20$ mW. Compte tenu de la largeur des rubans des LCQ respectifs, on prendra le recouvrement entre les modes égal à 500 μm^2 pour le LCQ THz et 100 μm^2 pour le LCQ MIR.

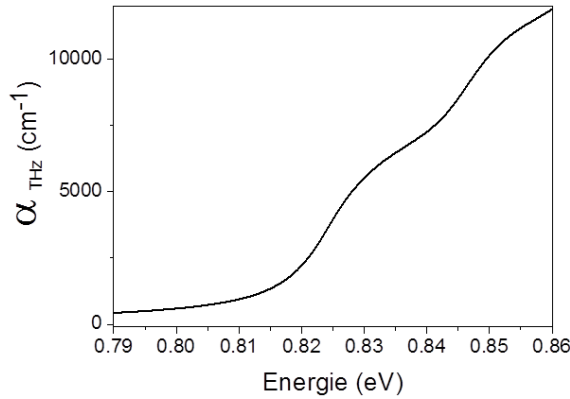


FIGURE V.33 – Coefficient d'absorption (en cm^{-1}) pour la structure de bandes du LCQ THz en fonction de l'énergie d'excitation.

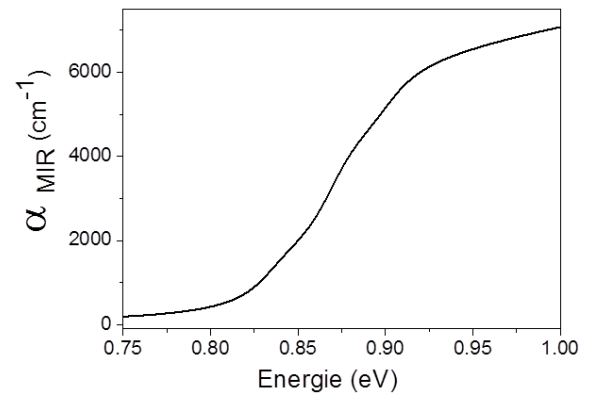


FIGURE V.34 – Coefficient d'absorption (en cm^{-1}) pour la structure de bandes du LCQ MIR en fonction de l'énergie d'excitation.

Comme on l'a vu dans le chapitre précédent, les pertes peuvent être évaluées grâce au calcul de $\chi^{(1)}$ dont on déduit le coefficient d'absorption $\alpha = \frac{\omega}{c} \text{Im}(\chi^{(1)})$. Les coefficients d'absorption ainsi calculés pour le LCQ THz et pour le LCQ MIR sont tracés en fonction de l'énergie d'excitation, respectivement sur les graphes des figures V.33 et V.34. Les calculs de ces coefficients ont été menés aux températures d'opération (77 K pour le THz, 250 K pour le MIR), avec des coefficients Γ correspondant (5 meV à 77K, 15 meV à 250 K). A partir de ces courbes, on extrait un coefficient de pertes de 3000 cm^{-1} pour le LCQ THz et un coefficient

de 5000 cm^{-1} pour le LCQ MIR, à l'énergie du maximum de génération.

A l'aide de tous ces paramètres, on peut donner une valeur de la susceptibilité non-linéaire d'ordre deux à partir de la mesure expérimentale de l'efficacité. Pour le mélange dans le LCQ THz à 77 K, on trouve $\chi^{(2)} = 6.10^{-9} \text{ m/V}$, soit 6.10^3 pm/V . Pour le mélange dans le LCQ MIR à 250 K, on trouve $\chi^{(2)} = 6.10^{-10} \text{ m/V}$, soit 600 pm/V . On va pouvoir comparer ces valeurs extraites des expériences aux valeurs de $\chi^{(2)}$ calculées théoriquement.

V.5.2 Calcul théorique de $\chi^{(2)}$

Grâce aux simulations numériques de $\chi^{(2)}$ (présentées dans le chapitre II), nous avons pu évaluer la valeur théorique de $\chi^{(2)}$ pour la structure du LCQ THz à 77 K (avec $\Gamma = 5 \text{ meV}$) et pour la structure du LCQ MIR à 250 K (avec $\Gamma = 15 \text{ meV}$). Les figures V.35 et V.36 montrent l'intensité de la SFG générée et le module de $\chi^{(2)}$ calculé respectivement pour les structures réelles du LCQ THz et du LCQ MIR respectivement.

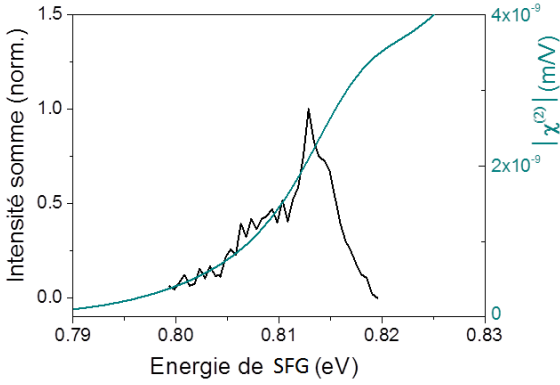


FIGURE V.35 – Intensité de la SFG en fonction de l'énergie de la SFG pour le LCQ THz basé sur InP à 77 K. Comparée au module de $\chi^{(2)}$ calculé.

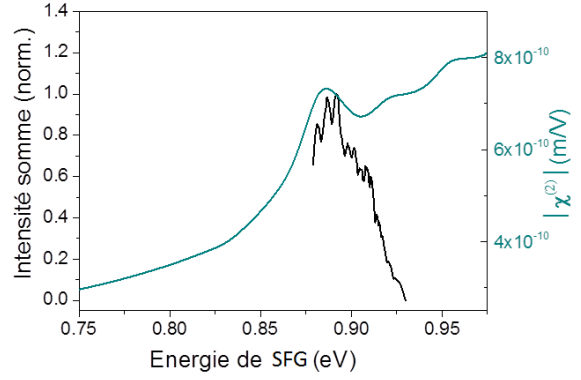


FIGURE V.36 – Intensité de la SFG en fonction de l'énergie de la SFG pour le LCQ MIR basé sur InP à 250 K. Comparée au module de $\chi^{(2)}$ calculé.

On peut extraire de ces calculs la valeur théorique de la susceptibilité dans chacun des cas. Pour la structure THz, $\chi^{(2)} = 3.10^{-9} \text{ m/V}$ soit 3.10^3 pm/V . Cette valeur est du même ordre que la valeur obtenue expérimentalement (6.10^3 pm/V). On peut tout de suite remarquer que la valeur de $\chi^{(2)}$ dans le THz est plus faible que celle qui a pu être mesurée précédemment dans les LCQ THz GaAs ($\chi_{GaAs}^{(2)} \approx 1.10^4 \text{ pm/V}$). Cependant, nous avons vu que la limite due à l'absorption avait lieu pour des énergies extrêmement proches du début des conditions de résonance, limitant en grande partie l'exaltation de $\chi^{(2)}$ par résonance avec les transitions interbandes. Pour la structure MIR, on peut extraire $\chi^{(2)} = 7.10^{-10} \text{ m/V}$ soit 700 pm/V . Cette valeur est en accord relatif avec la valeur obtenue expérimentalement (300 pm/V).

Le plutôt bon accord entre la mesure expérimentale et valeur théorique de $\chi^{(2)}$ pour le mélange de fréquences dans le LCQ MIR nous laisse penser qu'ici encore, l'effet du désaccord de phase doit être négligeable par rapport aux pertes. On peut tout de même vérifier et évaluer le désaccord de phase dans les structures MIR. En moyenne sur la plage de longueur d'onde de pompe explorée, on peut considérer un désaccord d'environ 4000 cm^{-1} . Si on prend en compte

ce désaccord de phase, on peut évaluer la susceptibilité non-linéaire grâce à la formule :

$$\eta_{diff} = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 P_{LCQ}}{\epsilon_0 n_{NIR} n_{diff} n_{LCQ} c \lambda_{diff}^2} \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right) + \sinh^2\left(\frac{\alpha_p L}{4}\right)}{\left(\frac{\Delta k L}{2}\right)^2 + \left(\frac{\alpha_p L}{4}\right)^2} e^{-\alpha_p \frac{L}{2}}$$

On obtient ainsi une valeur expérimentale de $\chi^{(2)}$ pour le mélange de fréquences dans les LCQ MIR, en prenant en compte Δk de l'ordre de 1.10^{-9} m/V soit 1.10^3 pm/V. Cette valeur est légèrement supérieure à celle obtenue sans Δk (600 pm/V) et reste en bon accord avec la valeur théorique (700 pm/V).

Les valeurs théoriques et expérimentales de $\chi^{(2)}$ obtenues dans les LCQ MIR et THz montrent le même écart d'un ordre de grandeur démontré dans le chapitre précédent. On est tentés de penser, comme on l'a vu pour les LCQ GaAs, que cet écart repose sur un effet quantique. Les états électroniques sont plus distants en énergie dans les LCQ MIR, rendant les conditions de résonance moins favorables (seulement simple résonance). Cet effet mis en évidence dans les simulations d'un système simple de deux puits couplés, présentées dans le chapitre II, semble également être l'effet principal dans les expériences présentées dans ce chapitre.

Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre les premières démonstrations de mélange de fréquences dans la gamme télécom dans des LCQ basés sur InP. On a pour cela développé un nouveau dispositif expérimental adapté à cette gamme de longueurs d'onde et optimisé les LCQ basés sur InP pour le mélange de fréquences (croissance par MOCVD). Nous avons montré le mélange de fréquences dans les LCQ MIR basés sur InP à 9 μm jusqu'à température ambiante. On s'est également intéressé au mélange de fréquences dans les LCQ THz basés sur InP, montrant une plus forte efficacité. Enfin, nous avons comparé les valeurs de $\chi^{(2)}$ obtenues dans ces deux types de structures, THz et MIR, et nous avons conclu que la différence observée entre ces valeurs était propre aux différences des structures entre transition THz et transition MIR.

Ces résultats de génération de mélange de fréquences à température ambiante dans la gamme télécom sont très encourageants pour explorer de possibles applications pour le décalage de longueur d'onde pour les télécommunications. Le domaine de longueurs d'onde accordable est encore limité par l'absorption dans le gap mais de nouvelles solutions proposées devraient permettre d'ouvrir la gamme de longueurs d'onde accessibles.

CHAPITRE VI

MÉLANGE D'ONDES EN EXCITATION PAR LA SURFACE D'UN LCQ

Les précédents chapitres ont montré la génération de mélange de fréquences dans les LCQ en transmission dans les LCQ basés sur GaAs et sur InP. Ces démonstrations ont également mis en évidence les limites de cette géométrie liées à l'absorption. Ce chapitre présente les résultats de mélange de fréquences dans une nouvelle géométrie en réflexion, pour une excitation à travers une fente gravée sur la surface supérieure d'un LCQ THz basé sur GaAs. Cette géométrie permet d'extraire plus facilement le mélange avec une interaction sur une dizaine de microns plutôt que sur la longueur totale de la cavité (quelques millimètres). L'absorption est ainsi en partie dépassée et la gamme d'énergie de pompe accessible est étendue. On a alors accès à des configurations de mélange plus résonantes, avec des états plus hauts en énergie. Des simulations numériques de $\chi^{(2)}$ prenant en compte toutes les transitions possibles nous permettent d'appuyer les démonstrations expérimentales et mettent en évidence de possibles effets d'interférence entre les contributions.

Introduction

Nous avons montré dans les précédents chapitres la génération de mélange de fréquences entre une excitation optique interbande et des faisceaux THz et MIR, en transmission à travers un LCQ. Nous avons obtenu à la fois la SFG et la DFG jusqu'à température ambiante. Cependant, nous avons vu les limites de cette configuration d'excitation. Si le processus reste relativement efficace lorsque le faisceau généré a une énergie inférieure à l'énergie du gap, dès que celle-ci atteint une valeur trop élevée, l'absorption le long du LCQ (plusieurs millimètres) empêche le mélange d'être détecté en sortie du LCQ. C'est d'autant plus limitant que le cas théoriquement plus favorable pour le mélange de fréquences est la configuration double résonance qui ne peut être atteinte que pour des excitations bien au-delà du gap.

Pour dépasser cette limitation, nous avons cherché à réduire la longueur d'interaction et éviter l'absorption à haute énergie. Nous avons ainsi opté pour une excitation par la surface supérieure du LCQ, à travers une fente gravée, n'affectant pas le fonctionnement du LCQ lui-même. La pompe ou le mélange d'ondes peut se réfléchir sur la couche d'or faisant office de miroir, sous la zone active. Le mélange de fréquences est ensuite collecté en réflexion. La longueur d'interaction en transmission est de quelques millimètres selon la longueur du LCQ. En réflexion avec une excitation par la surface, la longueur d'interaction est fortement réduite et correspond au maximum à un aller-retour dans l'épaisseur du LCQ THz (de l'ordre de 10 μm).

Dans cette configuration d'excitation, il faut remarquer que les vecteurs d'onde des trois faisceaux impliqués dans le mélange de fréquences (pompe, faisceau généré et LCQ) ne sont plus colinéaires contrairement à la configuration en transmission. En excitation par la surface, les vecteurs d'onde des faisceaux pompe et DFG/SFG sont selon l'axe z de croissance, alors que le vecteur d'onde du LCQ est dans le plan des couches, perpendiculaire aux précédents. Le désaccord de phase vectoriel est a priori défavorable pour obtenir des effets non-linéaires. Dans le cas présent, le vecteur d'onde du LCQ est très petit devant les deux autres ($\lambda_{THz} \gg \lambda_{NIR}$). Il nous paraît donc tout de même possible de pouvoir générer du mélange de fréquences dans cette configuration.

Dans ce chapitre nous présenterons les résultats obtenus pour le mélange fréquences en réflexion par la surface d'un LCQ THz basé sur GaAs. Nous montrerons qu'en dépassant en partie l'absorption, il devient possible d'exciter des états électroniques de bien plus haute énergie, permettant à la fois d'étendre la gamme possible de mélange et d'accéder à des nouvelles configurations de résonance. Nous comparerons ces résultats avec des calculs précis de $\chi^{(2)}$ intégrés sur l'ensemble des transitions possibles. Nous verrons que l'on peut, grâce à une plus grande plage d'excitation, parvenir à une description plus détaillée de la structure. Dans cette configuration d'excitation, il faut prendre en compte à la fois des contributions des transitions électron-trou lourd et des transitions électron-trou léger et que ces deux contributions peuvent interférer pour donner une valeur de $\chi^{(2)}$ proche de 0.

VI.1 Vers une excitation en réflexion par la surface

VI.1.1 Caractéristique du LCQ L773

Dans ce chapitre, nous revenons vers un LCQ basé sur des puits GaAs/AlGaAs. Le LCQ THz que nous avons utilisé pour ces expériences a été précédemment employé par l'équipe pour démontrer la génération de bandes latérales d'ordre supérieur [9]. La croissance originale de ce LCQ THz (de code L773) s'appuie sur une transition diagonale et une dépopulation par

LO-phonon. Elle émet à 2.7-3 THz et elle est issue de la référence [22]. La structure de bandes est représentée sur la figure VI.1. On retrouve en vert l'état injecteur qui peuple l'état haut de la transition (en bleu). La transition diagonale a lieu vers l'état bas (en rouge) en émettant un photon de 12 meV soit une longueur d'onde d'environ 100 μm . La dépopulation est mixte, impliquant deux états couplés et une extraction par un LO-phonon. La séquence est répétée 180 fois.

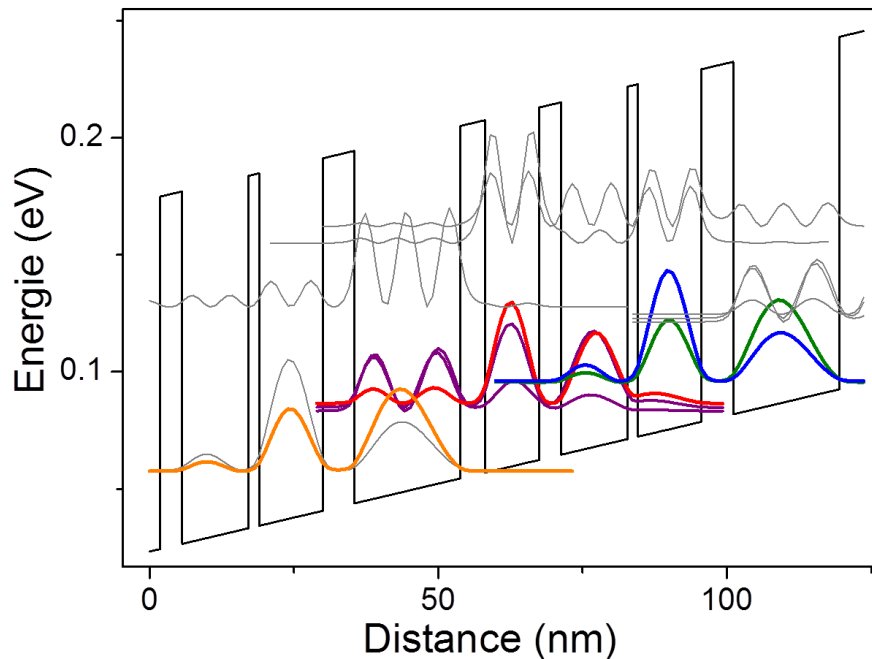


FIGURE VI.1 – Structure de bandes du LCQ L773, la séquence de croissance est : **5.5/11.0/1.8/11.5/3.8/9.4/4.2/18.4** nm. Les couches barrière de $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ sont marquées en gras et les couches puits de GaAs sont en écriture normale. Les couches dopées type n en Si ($n = 2e16\text{cm}^{-3}$) sont soulignées.

La croissance de cet échantillon a été réalisée par nos collaborateurs à l'université de Leeds en Angleterre et le proces de ce LCQ a été réalisé par nos collaborateurs de l'IEF à Orsay.

La caractéristique Puissance-Tension-Courant du LCQ L773 est présentée sur la figure VI.2, en fonction de la densité de courant. Le seuil de cette structure est bas vers 150 A/cm^2 . L'échantillon dont les caractéristiques sont présentées ici a une cavité de 3 mm de long et un ruban de 150 μm de large. On a travaillé à 10 K à un rapport cyclique de 30 % (6 μs et 50 kHz). Nous avons pu calibrer la puissance crête émise à 4.5 mW. Compte tenu du guide double métal, on évalue le coefficient de réflexion sur les facettes à 0.9 et on peut supposer que la puissance mesurée correspondant à 10 % de la puissance THz disponible à l'intérieur de la cavité.

Pour affiner la description de cet échantillon, on peut noter que la zone active a une épaisseur totale de 11 μm . Entre la zone active et la couche supérieure d'or, a priori toutes les couches de GaAs dopé et la couche d'arrêt de AlGaAs servant au transfert pour le proces double métal ont été retirées. Entre la zone active et la couche inférieure d'or se trouve une couche de 50 nm de GaAs dopé ($5e18\text{cm}^{-3}$).

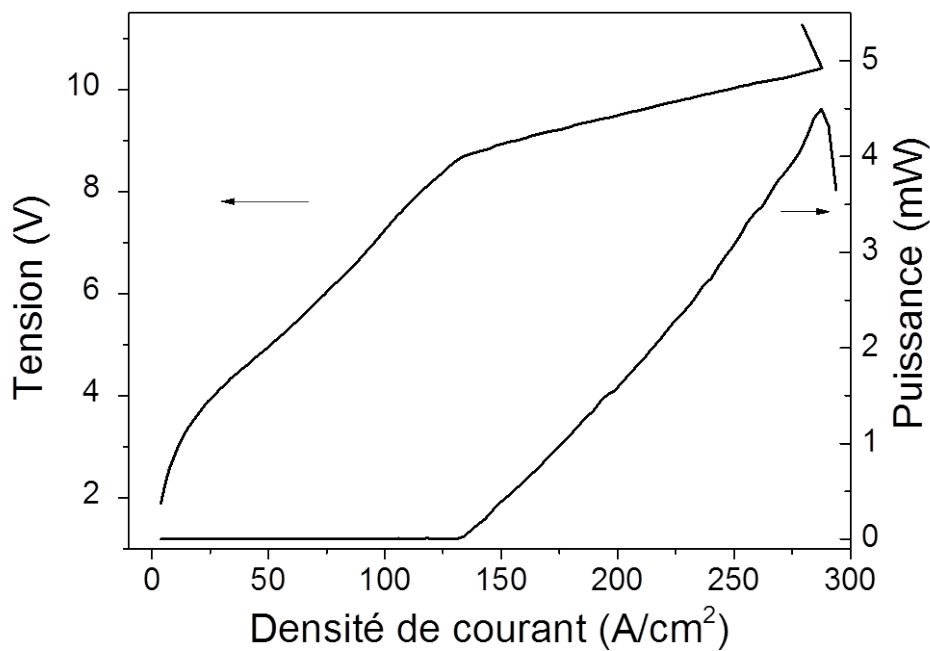


FIGURE VI.2 – Caractéristique Puissance-Tension-Courant pour le LCQ L773 à 10 K, en fonction de la densité de courant. L'axe de gauche reporte la tension et l'axe de droite la puissance.

VI.1.2 Ouverture gravée à la surface du LCQ

Comme on l'a vu, ce LCQ présente de bonnes caractéristiques de puissance à basse température. Il est doté d'un guide double métal, ce qui est très favorable pour un fort confinement du champ THz dans la cavité et pour la géométrie en réflexion que l'on souhaite mettre en place.

La couche supérieure de métal sert non seulement pour l'alimentation électrique mais aussi comme guide d'ondes plasmonique pour confiner le champ THz du LCQ. Il faut donc être prudent pour graver une ouverture dans la couche supérieure d'or, afin de ne pas diminuer le confinement du champ THz et les performances du LCQ. Néanmoins, pour une même puissance surfacique d'excitation, plus la surface éclairée est importante, plus le mélange de fréquences généré sera important. On va donc travailler sur l'ingénierie de fentes à graver sur le dessus du LCQ permettant un compromis entre le confinement du THz et la surface éclairée.

La configuration la plus simple serait de graver une seule fente au centre. J'ai mené des simulations 2D (à l'aide de COMSOL) du champ THz dans la cavité du LCQ muni de cette fente, elles sont présentées sur la figure VI.3. On voit en haut le mode fondamental et en dessous le mode excité où le champ THz est confiné de part et d'autre de la fente. La figure VI.4 montre les simulations 2D d'une autre configuration proposée, avec deux fentes gravées à la surface. Pour réaliser le mélange de fréquences, il est nécessaire d'avoir un recouvrement spatial entre le mode THz et le mode NIR. Que le LCQ fonctionne sur le mode fondamental ou sur le mode excité, la configuration à deux fentes assure un recouvrement spatial entre NIR et THz sous la fente excitée, cette configuration est plus favorable.

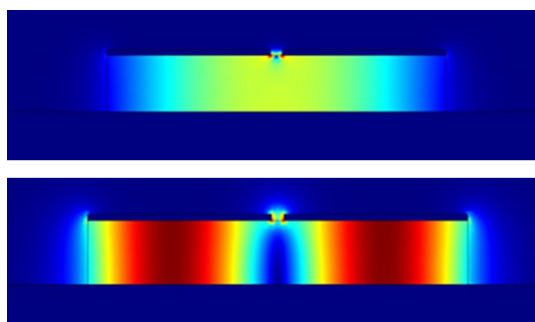


FIGURE VI.3 – Simulations 2D du champ THz dans la cavité d'un LCQ double-métal muni d'une fente gravée sur la surface. Haut : mode fondamental. Bas : mode excité.

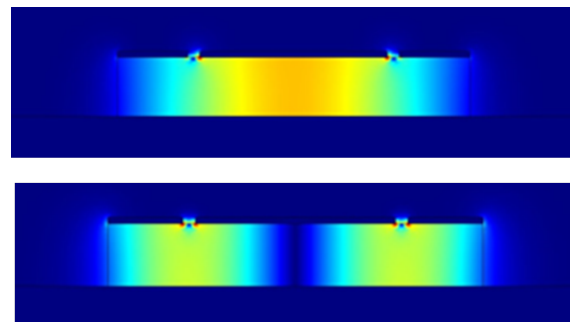


FIGURE VI.4 – Simulations 2D du champ THz dans la cavité d'un LCQ double-métal muni de deux fentes gravées sur la surface. Haut : mode fondamental. Bas : mode excité.

Cette deuxième configuration, plus adaptée au mélange de fréquences, a été réalisée. Les fentes ont été gravées à Leeds en Angleterre, à l'aide d'une sonde ionique focalisée (Focused Ion Beam, FIB en anglais). Elles mesurent 1 mm de long et 3 μm de large. Elles sont séparées l'une de l'autre de 45 μm . Les performances du LCQ gravé sont tout à fait équivalentes aux performances du LCQ avant la gravure.

VI.1.3 Adaptation du montage expérimental

Afin d'obtenir le mélange de fréquences en excitation par la surface du LCQ, le montage expérimental a été adapté. Comme on l'a vu dans la sous-partie précédente, nous avons choisi de graver des fentes sur 1 mm de longueur à la surface de l'échantillon pour exciter optiquement une plus grande surface, en conservant la même puissance surfacique d'excitation. Pour cela, on choisit d'utiliser expérimentalement une lentille cylindrique de focale 3 cm qui permet de focaliser le faisceau sous une forme elliptique, allongée dans la longueur des fentes. Celle-ci nous permet d'éclairer toute la longueur de la fente, comme on peut le voir sur le schéma de principe figure VI.5.

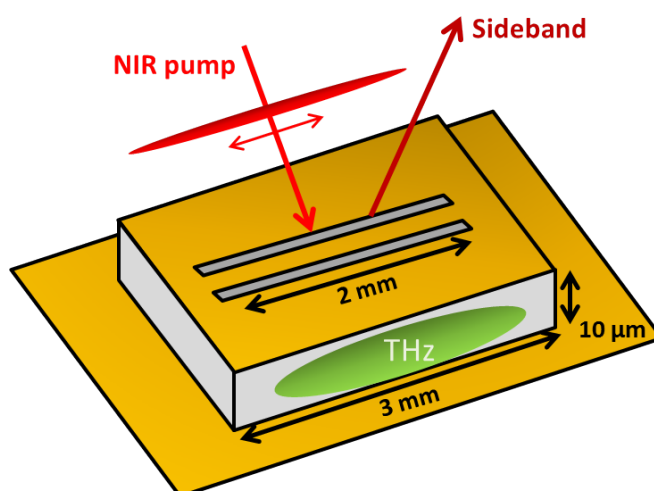


FIGURE VI.5 – Schéma d'excitation par la surface du LCQ, à travers les fentes.

Cette même lentille nous permet de collecter les faisceaux réfléchis qui sont ensuite déviés vers le spectromètre à l'aide d'une lame séparatrice qui réfléchit 90%. La détection s'effectue de la même manière qu'au chapitre IV à l'aide du spectromètre à réseaux et d'une caméra CCD.

Pour suivre l'alignement du faisceau de forme elliptique sur l'une des deux fentes gravées, on installe une petite caméra qui nous permet de voir la surface de l'échantillon. On peut voir ci-dessous deux exemples d'images obtenues à l'aide de cette caméra. La figure VI.6 montre la surface de l'échantillon composé de plusieurs LCQ. Les fils de gauche sont connectés à la masse et les deux fils de droite alimentent le LCQ avec les fentes. Les connections ont été appliquées aux extrémités du LCQ, de part et d'autre des fentes. Sur cette première figure, le LCQ n'est pas alimenté.

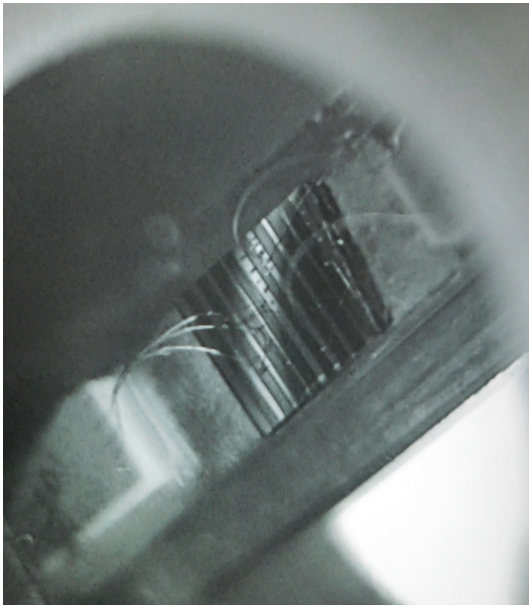


FIGURE VI.6 – Image de la surface du LCQ L773 obtenue à l'aide d'une petite caméra sensible dans le proche IR.

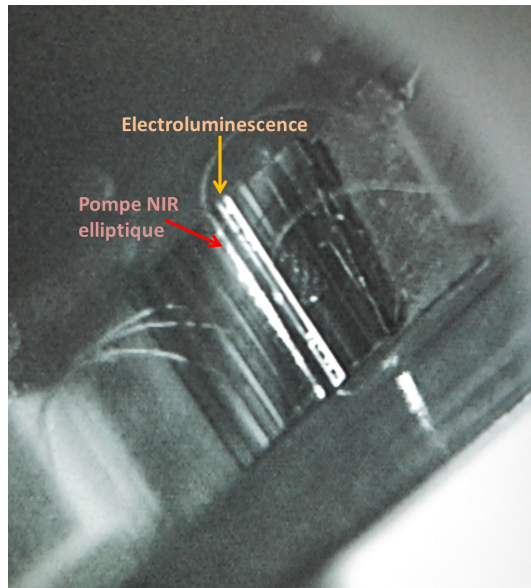


FIGURE VI.7 – Même image où le LCQ alimenté apparaît illuminé (droite) et on approche le faisceau de pompe de forme elliptique (gauche).

Lorsque le LCQ est alimenté, il apparaît illuminé sur la caméra, sans excitation optique. Cette électroluminescence observée a pour origine la recombinaison interbande des électrons du dopage de la bande de conduction avec des trous présents à proximité des contacts Schottky lors de la fabrication du guide double-métal [80] (non observé pour les LCQ simple plasmon). Le LCQ alimenté peut ainsi être repéré sur la caméra, comme on peut le voir sur la figure VI.7. On voit également les fentes apparaître en ombre à la surface du LCQ. Le faisceau elliptique (la puissance a été fortement atténuée pour ne pas éblouir la caméra) est approché par la gauche de ce LCQ pour l'aligner avec l'une des fentes. Pour optimiser l'alignement du faisceau à travers l'une des fentes, on se sert de la photoluminescence émise lorsque la pompe excite la zone active à travers la fente.

VI.2 Mise en évidence du mélange d'ondes au-delà de l'absorption

Dans cette partie, on s'intéressera à la nouvelle géométrie proposée, en réflexion par la surface du LCQ, à travers une des deux fentes gravées dans l'or. Nous démontrons la géné-

ration efficace de la SFG et de la DFG dans cette géométrie. On commencera par étudier théoriquement l'évolution de $\chi^{(2)}$ dans une telle configuration d'excitation. Nous présenterons ensuite les résultats expérimentaux, la génération de la SFG et de la DFG en réflexion par la surface, en fonction de l'énergie de pompe. On montrera qu'on peut dépasser la limite imposée par l'absorption.

VI.2.1 Evolution théorique attendue

Comme on l'a vu précédemment, l'efficacité de conversion du mélange est proportionnelle au carré du module de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2. En collaboration avec nos collègues théoriciens du laboratoire Pierre Aigrain, nous avons pu mener des calculs complets, permettant de prendre en compte tous les états électroniques et états de trous de la structures. Nous avons également affiné la prise en compte des transitions avec les trous lourds ou les trous légers selon la géométrie adoptée. On représente ainsi sur la figure VI.10, l'évolution de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 en fonction de l'énergie de pompe, calculée pour la structure de bandes exacte du LCQ L773, sommée sur toutes les transitions possibles. Les figures VI.8 et VI.9 présentent la structure de bandes avec les états électroniques et les états trous légers ou trous lourds respectivement. Considérant ici la géométrie en réflexion par la surface, nous avons pris en compte les trous légers et les trous lourds, ces derniers avec un coefficient supplémentaire de $\sqrt{3}$ (règles de sélection vues au chapitre I [17]). Dans un premier temps, on n'a pas pris en compte l'absorption éventuelle dans les puits quantiques après une longueur d'interaction de l'ordre de 20 μm . On discutera du modèle à adopter pour décrire l'absorption dans la sous-partie VI.2.4.

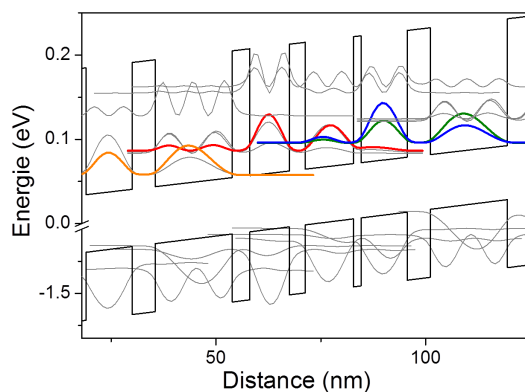


FIGURE VI.8 – Structure de bandes du LCQ THz L773, électrons et trous légers.

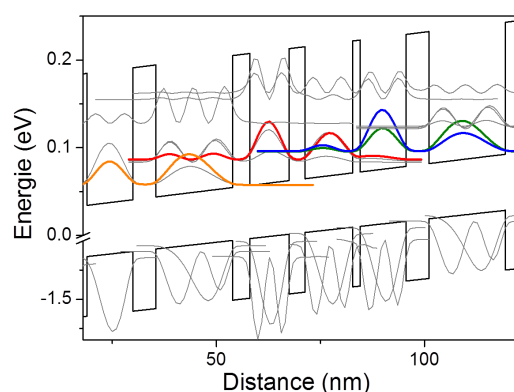


FIGURE VI.9 – Structure de bandes du LCQ THz L773, électrons et trous lourds.

Dans les chapitres précédents, on s'était uniquement intéressé à la première partie croissante de la courbe car le mélange à plus haute énergie n'était pas accessible expérimentalement à cause de l'absorption. Dans la géométrie en réflexion, on va montrer que l'on est capable de générer le mélange de fréquences à plus hautes énergies, on s'intéresse donc ici à l'évolution de $\chi^{(2)}$ sur une plage d'énergie plus grande. Il est alors d'autant plus important de prendre en compte toutes les transitions possibles, y compris celles de plus hautes énergies.

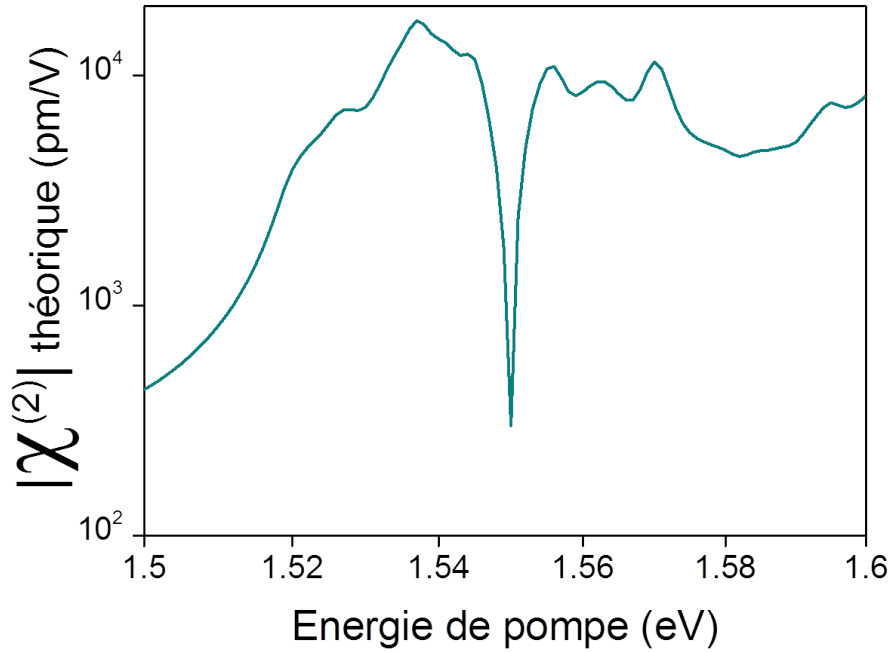


FIGURE VI.10 – Calcul théorique de $\chi^{(2)}$ (vert) pour la génération de la DFG en fonction de l'énergie de pompe, tracée en échelle logarithmique.

On a fixé l'énergie du gap des puits de GaAs à 1.508 eV dans ce calcul, en accord avec l'absorption observée expérimentalement en transmission (voir figure VI.13). Sur la figure VI.10, on observe que le module de $\chi^{(2)}$ augmente très rapidement à partir de 1.515 eV, lorsque l'excitation de pompe devient résonante avec les états électroniques au delà du gap. $\chi^{(2)}$ continue d'augmenter jusqu'à 1.54 eV, énergie pour laquelle l'état haut de la transition du LCQ est excité.

On observe une diminution très piquée pour une énergie de pompe de 1.55 eV. Cette caractéristique est inattendue pour l'évolution du module de $\chi^{(2)}$ en fonction de l'énergie de pompe. On a cherché à comprendre la raison de ce creux. En géométrie de réflexion par la surface, le faisceau de pompe est polarisé dans le plan des couches et excite à la fois les transitions électron-trou lourd (E-HH) et les transitions électron-trou léger (E-LH). Pour le calcul théorique de $\chi^{(2)}$, on somme les contributions de toutes les transitions possibles participant au mélange de fréquences. Ici on doit donc prendre en compte à la fois les transitions E-LH mais aussi les transitions E-HH. Ces contributions peuvent être de signe positif ou négatif selon le signe du produit des 3 dipôles des états impliqués (2 dipôles interbandes et un diôle intersousbande). On rappelle la formule générale de $\chi^{(2)}$:

$$\chi^{(2)}(\omega_{NIR} - \omega_{THz}) = \frac{1}{\epsilon_0 V_{cr}} \sum_k \sum_{mnv} \frac{\mu_{mn} \mu_{nv} \mu_{vm}}{\Delta E_{nm} + E_k - E_{diff} - i\Gamma_{nm}} \left(\frac{\rho_m - \rho_v}{\Delta E_{vm} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma_{vm}} + \frac{\rho_n - \rho_v}{\Delta E_{nv} + E_k - E_{NIR} - i\Gamma_{nv}} \right)$$

On a détaillé comment chaque type de transitions (E-HH ou E-LH) participait à l'évolution de $\chi^{(2)}$. Pour mettre en évidence la contribution positive ou négative de chaque type de

transition, on s'est intéressé à la partie réelle et à la partie imaginaire de $\chi^{(2)}$, dans le cas où seules les transitions E-HH sont prises en compte et dans le cas où seules les transitions E-LH sont prises en compte dans le calcul de $\chi^{(2)}$. Ces résultats sont reportés sur la figure VI.11. La partie supérieure montre la partie réelle de $\chi^{(2)}$, calculée pour chaque type de transitions (E-HH seules en rouge et E-LH seules en noir). La partie inférieure montre la partie imaginaire de $\chi^{(2)}$, calculée pour chaque type de transitions (E-HH seules en rouge et E-LH seules en noir). On note que les contributions des transitions E-HH et E-LH pour $\chi^{(2)}$ s'additionnent algébriquement dans notre modèle où les états lourds et légers sont indépendants. Le module de $\chi^{(2)}$ est ensuite obtenu normalement en prenant la racine de la somme des carrés des parties réelle et imaginaire.

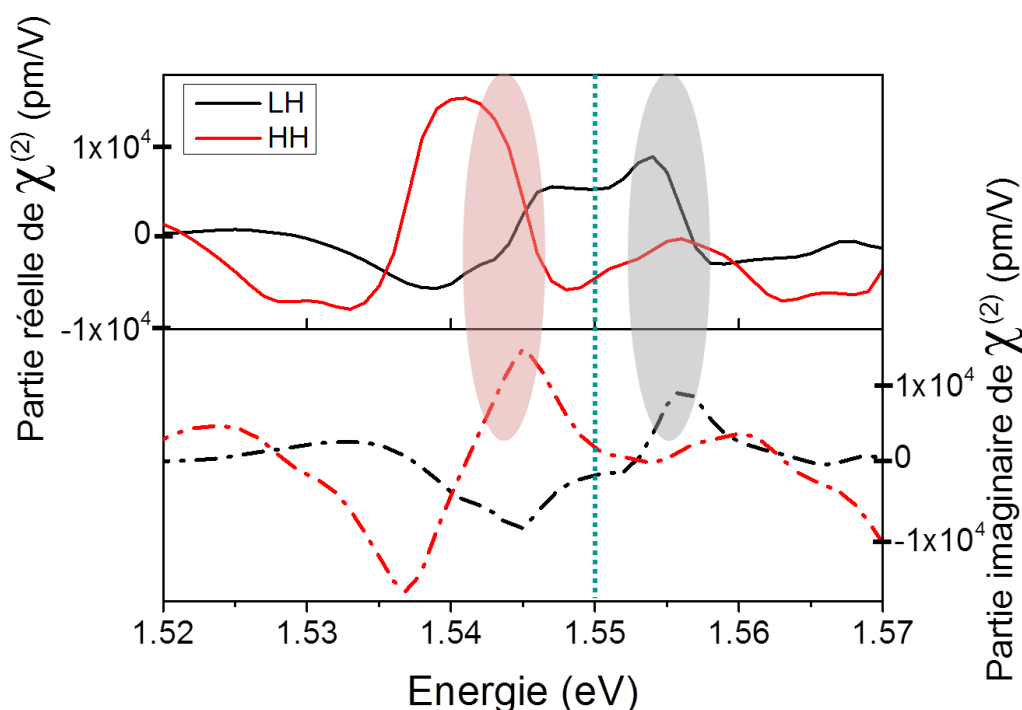


FIGURE VI.11 – Partie supérieure, partie réelle de $\chi^{(2)}$ calculée pour seulement les transitions E-LH et seulement les transitions E-HH (rouge). Partie inférieure, partie imaginaire de $\chi^{(2)}$ pour les mêmes configurations de transitions.

Pour le calcul complet de $\chi^{(2)}$ présenté figure VI.10, on somme les contributions réelles et imaginaires de toutes les transitions possibles (E-HH et E-LH) participant au mélange de fréquences. Ces contributions pouvant être positives ou négatives, il peut arriver que pour une certaine énergie les contributions se compensent conduisant à une valeur de $\chi^{(2)}$ très faible. C'est ce qu'il se passe pour le creux observé à 1.55 eV (marqué par une ligne en pointillés sur la figure VI.11), la contribution des transitions E-LH et la contribution des transitions E-HH se compensent pour cette énergie, aussi bien sur la partie réelle que sur la partie imaginaire. La figure VI.11 montre que pour des énergies autour de 1.545 eV, les contributions des transitions E-HH (rouge) sont dominantes, aussi bien sur la partie réelle que sur la partie imaginaire. Pour des énergies autour de 1.555 eV, cette tendance s'est inversée et ce sont les contributions des trous légers qui dominant (en noir). C'est pour une énergie intermédiaire, pendant cet inversement de tendance, que les contributions des transitions E-HH et E-LH se

compensent et s'annulent presque, avec les coefficients adaptés à l'excitation par la surface (1/3 pour E-LH et 2/3 pour E-HH). Cette énergie critique est marquée par un trait vert en pointillés et correspond au creux observé sur le module de $\chi^{(2)}$.

On peut discuter ici la robustesse du creux obtenu par les calculs théoriques. L'effet mis en évidence repose fortement sur la valeur et le signe de chaque contribution et donc sensiblement sur la valeur des dipôles, donc des fonctions d'onde calculées. Nous avons mené les mêmes calculs en variant sensiblement le champ électrique appliqué à la structure, en restant dans le cas cohérent de l'émission du LCQ. Les caractéristiques observées sur le calcul de $\chi^{(2)}$ sont restées identiques. Il serait intéressant de prendre en compte le dopage dans le calcul des fonctions d'onde, car cet effet local (et non plus global comme le champ appliqué) pourrait entraîner des modifications peut-être plus notables sur les caractéristiques de $\chi^{(2)}$.

Grâce à la combinaison des expériences de mélange d'ondes à plus haute énergie et des calculs précis de $\chi^{(2)}$, il devient possible de décrire la structure et les phénomènes dans leur ensemble et de mettre en lumière un effet tel que l'annulation de $\chi^{(2)}$ par interférences des différentes contributions.

VI.2.2 Étude en fonction de l'énergie de pompe

On démontre dans cette partie la génération expérimentale de la SFG et de la DFG dans cette nouvelle géométrie en réflexion par la surface. Ces démonstrations nécessitent des faisceaux de pompe de puissance similaire (1-2 mW) et montrent que l'intensité des faisceaux générés est tout à fait équivalente à la géométrie en transmission.

La figure VI.12 montre sur la partie supérieure l'évolution de l'intensité de la DFG (noir) et de la SFG (rouge) en fonction de l'énergie de pompe ou de l'énergie de la SFG respectivement, en géométrie de réflexion. L'intensité est tracée en échelle logarithmique pour mettre en valeur les émissions faibles.

Il est intéressant de comparer cette évolution en géométrie de réflexion par la surface, avec l'évolution de l'intensité pour la géométrie classique en transmission par la facette, tracée sur la partie inférieure de la figure VI.12. La première partie des résultats, pour des énergies de pompe de 1.5 eV à 1.53 eV, montre une évolution de l'intensité similaire dans les deux géométries. L'intensité présente une augmentation lente au début puis plus rapide à partir d'une énergie de 1.515 eV puis une rapide diminution vers 1.525 eV. Cette valeur d'absorption est en accord avec les mesures de transmission effectuées avec et sans alimentation du LCQ, présentées sur la figure VI.13. Le phénomène d'absorption commence effectivement autour de 1.51 eV lorsque le LCQ est alimenté. On retrouve un décalage vers les basses énergies lorsque le LCQ est alimenté, dû à la dissipation thermique de la puissance électrique d'alimentation.

En géométrie de réflexion, on détecte à nouveau du mélange de fréquences pour des énergies supérieures à la limite d'absorption de 1.53 eV observée en transmission. Après une forte diminution du signal, l'intensité de la SFG et de la DFG augmente à nouveau, juste après 1.53 eV. On observe une deuxième diminution vers 1.545 eV puis la SFG seule est observée jusqu'à presque 1.56 eV, dépassant largement la limite précédente due à l'absorption. Le mélange de fréquences peut à présent être détecté sur une plage de près de 60 meV, la limite liée à l'absorption est en partie dépassée grâce à cette géométrie.

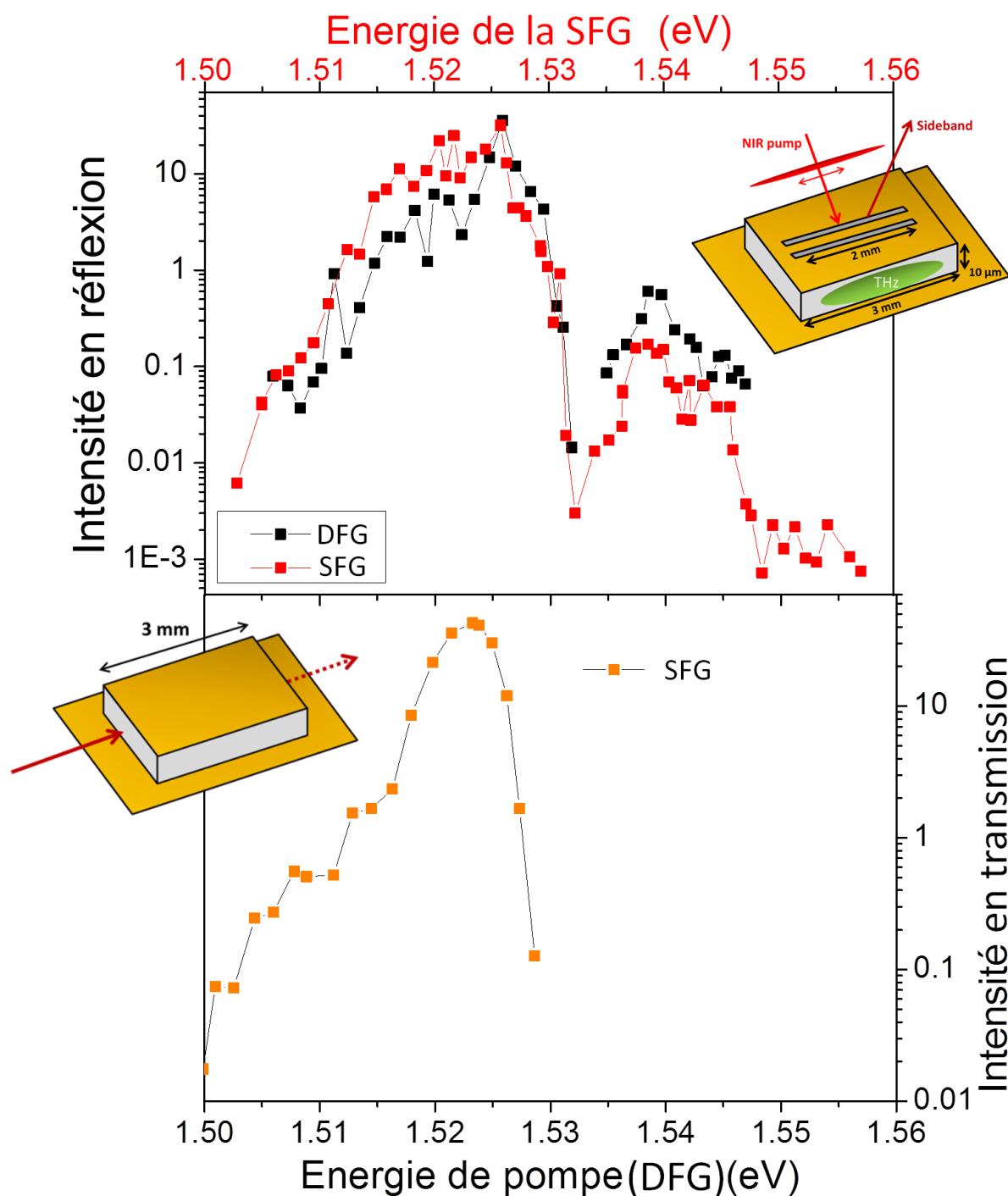


FIGURE VI.12 – Partie supérieure : intensité de la SFG (rouge) et de la DFG (noir) générées en excitation par la surface, en fonction de l'énergie de pompe pour la DFG ou de l'énergie de la SFG. Partie inférieure : intensité de la SFG (orange) en géométrie de transmission, en fonction de l'énergie de la SFG.

La diminution globale du signal entre 1.525 eV et 1.56 eV laisse penser qu'un effet d'absorption reste effectif en géométrie de réflexion et entraîne une atténuation du signal. La distance parcourue par les faisceaux en géométrie de réflexion par la surface peut approcher les 20

μm , ce qui reste suffisant pour voir des effets d'absorption. Je reviendrai sur les mécanismes d'absorption dans la partie VI.2.4.

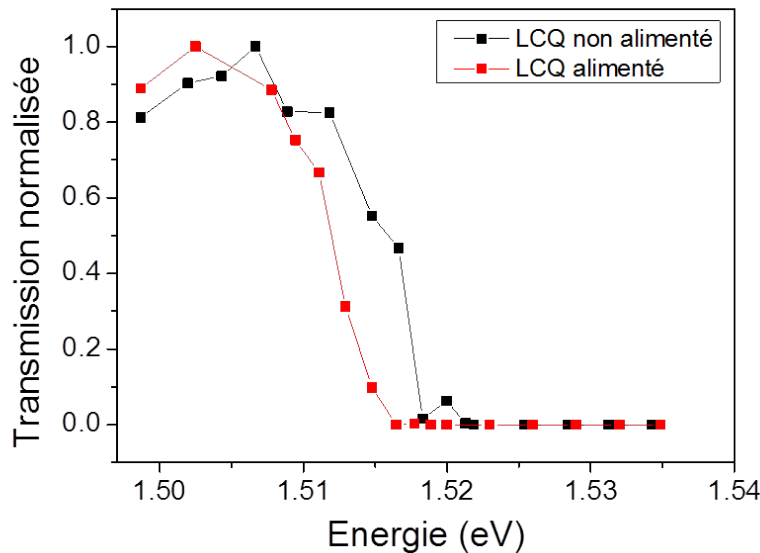


FIGURE VI.13 – Intensité normalisée de la transmission mesurée à travers le LCQ L773, lorsque celui-ci est alimenté (rouge) ou non alimenté (noir).

Nous n'avons vu aucun effet de la polarisation du faisceau de pompe sur la génération du mélange de fréquences. Dans cette configuration, quelle que soit la polarisation, celle-ci est dans le plan des couches, les deux polarisations sont donc équivalentes. Nous avons vérifié que la fente n'introduisait pas de polarisation préférentielle.

VI.2.3 Quantifier la puissance

Il serait intéressant de comparer l'efficacité de génération de mélange de fréquences en géométrie de réflexion par la surface par rapport à la géométrie de transmission présentée précédemment. Cependant, il est très difficile de connaître la puissance NIR qui excite effectivement la zone active du LCQ dans cette géométrie.

En géométrie de transmission, il était aisé de mesurer la puissance du faisceau effectivement couplée dans la cavité du LCQ, en regardant la puissance transmise, pour une énergie de pompe inférieure à l'absorption. En géométrie de réflexion par la surface à travers la fente, on connaît la puissance à l'entrée de la lentille cylindrique mais pas la puissance qui traverse la fente, ni la proportion qui en ressort.

Pour une puissance de pompe à l'entrée de la lentille similaire dans les deux géométries, on obtient une intensité de signal semblable. La surface éclairée en réflexion est plus importante, ce qui devrait conduire à une meilleure intensité générée mais on ne sait absolument pas la puissance réelle couplée dans le LCQ à travers la fente, c'est un aspect critique.

Pour mesurer la puissance transmise à travers la fente, une idée serait de graver une fente identique dans un substrat test et mesurer la puissance transmise. Cela donnerait un ordre d'idée mais il resterait encore à prendre d'autres facteurs en compte comme notamment la puissance qui ressort effectivement à travers la fente.

VI.2.4 Prise en compte de l'absorption en réflexion

Bien que la configuration décrite dans ce chapitre, excitation par la surface supérieure à travers une fente et collection en réflexion, permette de limiter les effets de l'absorption en diminuant la longueur d'interaction, ces derniers sont effectifs dès quelques μm d'interaction.

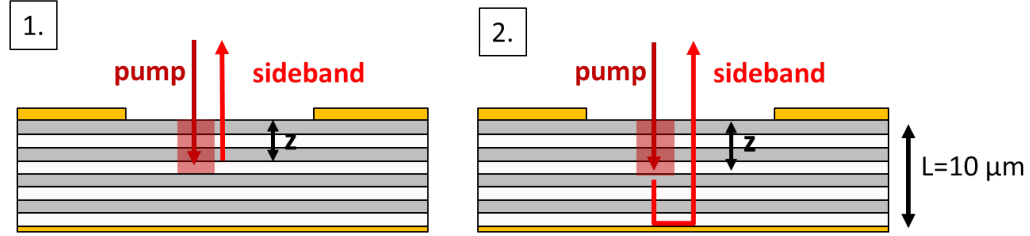


FIGURE VI.14 – Schémas des processus d'absorption possibles pour le mélange en réflexion sous excitation par la surface. Le facteur F1 correspond au schéma 1 et le facteur F2 correspond au schéma 2.

On propose deux mécanismes possibles de génération du mélange de fréquences, ces modèles sont schématisés sur la figure VI.14. Le premier schéma propose que la pompe excite la zone active à une profondeur z après avoir subi une absorption sur une longueur z , de la forme $\exp(-\alpha_P \cdot z)$ avec α_P le coefficient d'absorption de la pompe. Le mélange ainsi généré ressort directement de la cavité (réfléchi sur les couches) en subissant une absorption sur une longueur z , de la forme $\exp(-\alpha_M \cdot z)$ où α_M est le coefficient d'absorption du mélange. En supposant une génération de mélange indépendante de la position dans le LCQ et en intégrant sur z , entre 0 et L l'épaisseur de l'échantillon, on trouve que le facteur d'absorption F1 s'exprime :

$$\begin{aligned} F1 &= \int_0^L \exp(-\alpha_P \cdot z) \exp(-\alpha_M \cdot z) \frac{dz}{L} \\ &= \frac{1 - \exp(-(\alpha_P + \alpha_M)L)}{(\alpha_P + \alpha_M)L} \end{aligned}$$

Le second schéma, représenté sur la figure VI.14 propose que la pompe excite la zone active à une profondeur z après avoir subi une absorption sur une longueur z de la forme $\exp(-\alpha_P \cdot z)$. Le mélange ainsi généré continue son parcours dans la cavité et est réfléchi sur la surface d'or. Il ressort de la cavité après avoir subi une absorption sur une longueur $(L-z)+L$, de la forme $\exp(-\alpha_M \cdot (L-z)) * \exp(-\alpha_M \cdot L)$. En intégrant sur z , entre 0 et L , on trouve que le facteur d'absorption F2 s'exprime :

$$\begin{aligned} F2 &= \int_0^L \exp(-\alpha_P \cdot z) \exp(-\alpha_M \cdot (L-z)) \exp(-\alpha_M L) \frac{dz}{L} \\ &= \exp(-2\alpha_M L) \frac{1 - \exp(-(\alpha_P - \alpha_M)L)}{(\alpha_P - \alpha_M)L} \end{aligned}$$

Pour voir l'effet de chacun de ces facteurs, on a multiplié le module au carré de $\chi^{(2)}$ par F1 ou par F2. Les résultats du calcul de $\chi^{(2)}$ théorique, prenant en compte l'un ou l'autre des facteurs sont superposés aux données expérimentales sur la figure VI.15. Le calcul prenant en compte le facteur F1 est tracé en violet et le calcul prenant en compte le facteur F2 est tracé en vert.

Le calcul théorique avec le coefficient F1 montre une différence d'à peine un ordre de grandeur entre l'intensité de $|\chi^{(2)}|^2$ avant et après le creux critique à 1.55 eV. Or la diminution

que l'on observe de part et d'autre du creux à 1.53 eV est de 2 ordres de grandeur et celle que l'on observe entre le maximum et la décroissance après 1.55 eV est de 4 ordres de grandeur. Il nous semble que le facteur F1 sous-estime fortement l'absorption. Le facteur F2 semble mieux correspondre à la situation observée expérimentalement, avec une différence de 4 ordres de grandeur entre le maximum de $|\chi^{(2)}|^2$ et la valeur au creux à 1.55 eV. Le rebond après 1.55 eV, mis en évidence dans les calculs théoriques, pourrait correspondre à l'intensité du mélange de fréquences détectée entre 1.55 eV et 1.56 eV. Il faudrait éventuellement ajouter un facteur d'absorption massive dû à la couche de GaAs de 50 nm proche de la couche d'or. Néanmoins, ces calculs donnent une idée raisonnable en accord avec les données expérimentales.

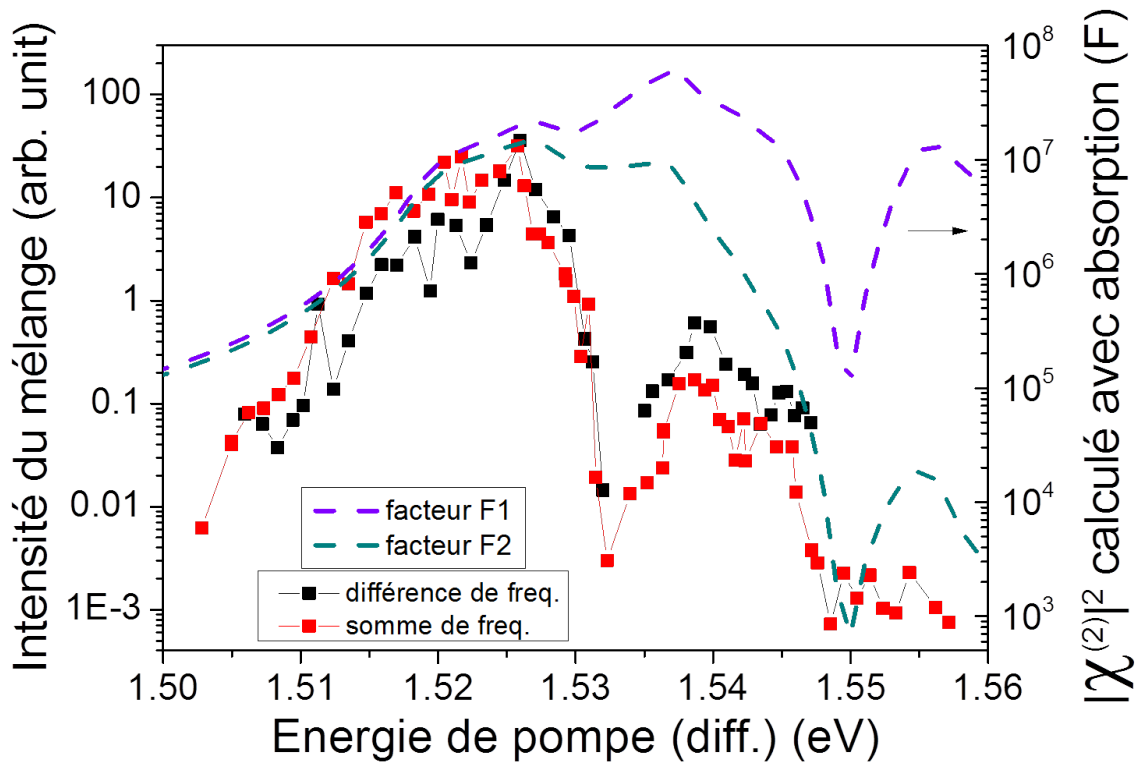


FIGURE VI.15 – Intensité de la SFG (rouge) et de la DFG (noir) générées sous excitation par la surface en fonction de l'énergie. Calcul théorique de $|\chi^{(2)}|^2$, multiplié par un facteur d'absorption F1 (violet) ou F2 (vert).

D'autres explications possibles permettant de justifier le creux observé sur les mesures à 1.53 eV sont envisagées. On peut se demander si la cavité verticale de 11 μm d'épaisseur formée d'un côté par l'interface zone active/air et de l'autre par l'interface zone active/or n'influe pas sur la pénétration du faisceau de pompe dans la zone active. Cela pourrait justifier le creux observé à 1.53 eV, mais ces calculs doivent être approfondis.

L'approche d'excitation par la surface pour dépasser les limites liées à l'absorption est déjà très convaincante au vu des résultats de mesure. Il serait intéressant de poursuivre cette approche et de l'accentuer, en prévoyant par exemple un dispositif conçu avec une épaisseur plus fine ne servant qu'au mélange de fréquences, réduisant encore les effets d'absorption.

On pourrait ainsi espérer exciter à des énergies encore plus hautes et réduire l'absorption restante. De plus, la structure de bandes des LCQ est très complexe et optimisée dans le but premier de maximiser l'émission du LCQ. On pourrait concevoir une structure plus simple adaptée uniquement au mélange de fréquences. Grâce aux calculs de $\chi^{(2)}$ développés ici, cette structure pourrait être optimisée afin de maximiser l'intensité du mélange de fréquences, en maximisant $\chi^{(2)}$.

Cette configuration d'excitation par la surface sera prochainement étendue au LCQ MIR basés sur InP, grâce à la gravure de fentes à la surface (croissance InP1768 présentée dans le chapitre précédent). Cette configuration promet des effets plus importants encore pour les expériences de mélange de fréquences dans les LCQ MIR. En effet, on a vu que les conditions de double résonance ne sont possibles que pour une excitation à bien plus haute énergie (les états électroniques étant séparés d'un photon MIR). La différence entre la configuration en transmission avec absorption et en réflexion par la surface en limitant l'absorption devrait être plus marquée que pour les LCQ THz. De plus, la zone active est bien moins épaisse que pour les LCQ THz, on peut espérer s'affranchir d'autant plus de l'absorption.

VI.3 Étude en transmission et $\chi^{(2)}$ massif

VI.3.1 Mélange d'ondes en transmission

Grâce aux améliorations apportées au dispositif expérimental depuis les premières études de mélange d'ondes dans les LCQ THz en transmission, nous avons pu optimiser le mélange de fréquences dans cette géométrie. Ce paragraphe revient donc sur la configuration en transmission et présente une étude de l'intensité du mélange d'ondes en fonction de l'énergie de pompe dans cette géométrie avec un pas fin, pour la SFG et la DFG. On présente sur la figure VI.16 l'intensité de la SFG générée en fonction de l'énergie du faisceau généré.

On observe un comportement identique aux précédentes démonstrations : lorsque l'on augmente l'énergie de pompe, l'intensité du mélange de fréquences augmente, on s'approche des meilleures conditions de résonance. L'exaltation de la susceptibilité lorsque que l'excitation devient résonante débute pour une énergie proche de 1.515 eV. Pour une énergie de la SFG proche de 1.525 eV, l'excitation de pompe, à $E_{\text{somme}} - E_{\text{LCQ}} = 1.513$ eV, commence à être absorbée et ne peut plus exciter l'extrémité finale du LCQ.

Sur la figure VI.16, on remarque un effet intéressant qui n'avait été observé dans les précédentes études de mélange d'ondes dans les LCQ : on est capable de générer du mélange de fréquences pour des énergies de pompe et de mélange bien en deçà de l'énergie de gap. On est donc capable de détecter du mélange de fréquences généré lorsque l'excitation est non-résonante. Les non-linéarités ici ne sont dues qu'à la susceptibilité non-linéaire intrinsèque dans le GaAs massif. Les effets de résonance d'exaltation de $\chi^{(2)}$ sont négligeables pour des énergies bien inférieures, comme le confirment des calculs théoriques menés sur un plus grand nombre d'états, avec une meilleure convergence, présentés en annexe E. On détaillera les effets non-linéaires hors résonance dans le paragraphe suivant et nous verrons que l'on peut évaluer la valeur de la susceptibilité intrinsèque obtenue expérimentalement et la comparer à la valeur de $\chi^{(2)}$ pour le GaAs massif dans la littérature.

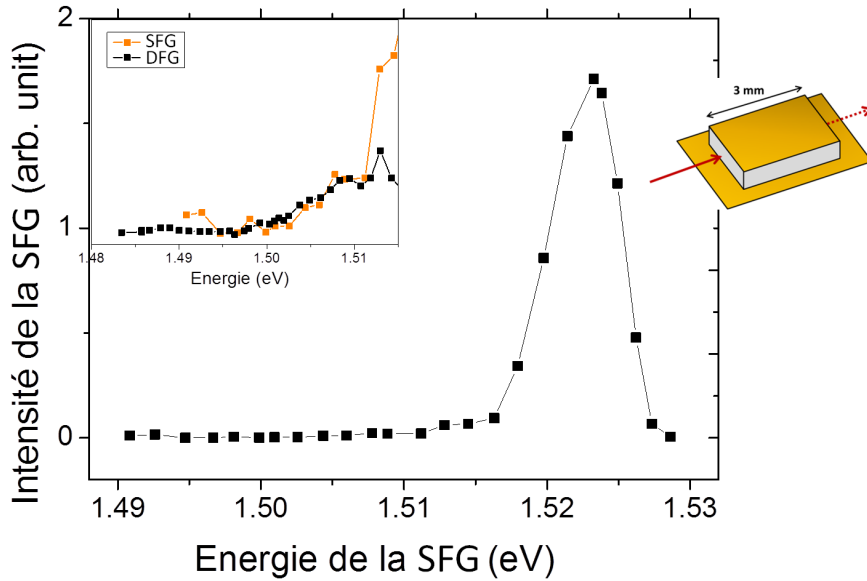


FIGURE VI.16 – Intensité de la SFG en transmission, tracée en fonction de l'énergie de l'énergie de la SFG. Inset : zoom sur la partie d'énergie de pompe 1.48-1.51 eV

VI.3.2 Mesure de $\chi^{(2)}$ non-résonant (massif)

Les semiconducteurs massifs de structure blende de zinc (cas du GaAs) ont été l'objet de nombreuses recherches en optique non-linéaire car ce sont la classe de cristaux la plus simple présentant une susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 [81]. Cette susceptibilité a pour origine physique la légère ionicité des liaisons ou l'asymétrie des charges dans ces liaisons. La polarisabilité de la liaison est alors affectée par champ appliqué ce qui introduit une non-linéarité dans la réponse optique du matériau [82].

Malgré l'absence d'accord de phase, le mélange de fréquences, à la fois la SFG et la DFG, a pu être observé pour des énergies de pompe (resp. de somme) bien inférieures à l'énergie de gap. Dans cette situation, l'excitation est hors résonance et l'effet non-linéaire observé ne peut être dû qu'à la susceptibilité intrinsèque du GaAs massif. Les intensités de la différence et de la somme de fréquences sont représentées sur la figure insérée à la figure VI.16, pour les énergies inférieures au gap.

On observe un comportement semblable pour la SFG et la DFG. On observe d'abord une intensité constante entre 1.48 eV et 1.50 eV. Puis une augmentation analogue apparaît entre 1.5 eV et 1.51 eV. On atteint ensuite rapidement les conditions d'exaltation des non-linéarités par résonance dans les puits quantiques. On peut penser que la première partie de la courbe correspond à une situation très hors résonance quelle que soit l'énergie et donne une intensité de mélange constante. A l'approche de l'énergie du gap, les non-linéarités peuvent être légèrement exaltées (résonance massive), expliquant ainsi l'augmentation observée dans les deux configurations de mélange. Enfin les transitions électroniques des puits quantiques sont excitées en résonance et on observe une très forte augmentation du mélange.

Grâce à l'efficacité du mélange obtenue expérimentalement à des énergies inférieures à l'énergie du gap, nous allons pouvoir évaluer la susceptibilité massive du GaAs. Celle-ci a été mesurée de l'ordre de 100 pm/V [77] et du même ordre à 269 pm/V [83], en bon accord avec

les prévisions théoriques de 256 pm/V [81]. L'excitation étant sous le gap, il n'y a dans ce cas pas d'effet de perte à prendre en compte. On peut donc relier l'efficacité à la susceptibilité non-linéaire par la formule générale :

$$\eta_{diff} = \frac{P_{diff}}{P_{NIR}} = \frac{8\pi^2 |\chi^{(2)}|^2 L^2 P_{LCQ} \sin^2(\frac{\Delta k L}{2})}{\epsilon_0 n_1 n_2 n_3 c \lambda_{diff}^2 S (\frac{\Delta k L}{2})^2} \quad (\text{VI.1})$$

L'efficacité mesurée expérimentalement dans la partie d'énergie de pompe bien inférieure au gap est de 1.10^{-7} . La longueur de cavité est de 3 mm. Les indices de réfraction sont $n_{NIR} = 3.66$, $n_{diff} = 3.65$, $n_{THz} = 3.57$. La puissance intracavité du LCQ est évaluée à 45 mW. La surface d'interaction est prise à $1000 \mu\text{m}^2$. Le désaccord de phase (moyen) peut être évalué à 1000 cm^{-1} , plus faible pour le mélange d'ondes avec le THz que le mélange avec le MIR.

On obtient ainsi une valeur de $\chi^{(2)}$ a priori massif obtenu expérimentalement de 110 pm/V. Cette valeur parait tout à fait raisonnable en référence aux valeurs publiées dans la littérature (100 pm/V ou 269 pm/V).

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que les limites du mélange de fréquences liées à l'absorption, rencontrées en géométrie de transmission, pouvaient être en partie dépassées grâce à une nouvelle géométrie, en réflexion par la surface supérieure du LCQ THz. Nous avons obtenu du mélange de fréquences en résonance sur une plage d'énergie de près de 45 meV, soit 3 fois la plage accessible en transmission. Grâce à cette plus grande plage d'énergie accessible, on peut approcher des conditions de résonance plus favorables. On a développé un calcul complet prenant en compte toutes les transitions possibles et nous avons mis en évidence que certaines contributions pouvaient se compenser à une énergie donnée, conduisant à une valeur de $\chi^{(2)}$ proche de 0. La prise en compte de l'absorption a permis d'approcher les calculs théoriques des résultats expérimentaux. Enfin, grâce à l'amélioration du dispositif expérimental, nous avons mis en évidence la génération de mélange de fréquences non-résonant pour des énergies d'excitation bien inférieures à l'énergie de gap. On a pu ainsi évaluer la valeur expérimentale de la susceptibilité non-linéaire intrinsèque du GaAs.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Le travail présenté dans cette thèse s'est intéressé à l'utilisation des lasers à cascade quantique pour des expériences tout-intégrées d'optique non-linéaire résonante et à la compréhension de ces phénomènes. J'ai réalisé avec succès plusieurs avancées importantes en démontrant les expériences de mélange d'ondes dans les LCQ MIR, puis dans la gamme télécom à température ambiante et en dépassant en partie les limites liées à l'absorption.

Les expériences d'optique non-linéaire résonante dans les puits quantiques, entre un faisceau THz et un faisceau NIR, ont connu un fort intérêt scientifique depuis la fin des années 1990. Ces expériences ont mis en évidence que la susceptibilité non-linéaire d'un milieu composé de puits quantiques pouvait être largement exaltée grâce à une excitation NIR résonante avec des transitions interbandes du milieu ou une excitation THz résonante avec des transitions intersousbandes. Ces expériences reposent sur des champs THz intenses délivrés par des sources telles que les lasers à électrons libres. Pour dépasser la contrainte de l'encombrement de ces sources, notre équipe a proposé d'utiliser des lasers à cascade quantique comme source THz pour de telles expériences, en exploitant le champ intracavité intense de ces dispositifs. Mon travail de thèse s'inscrit dans le contexte scientifique de ces travaux d'optique non-linéaire résonante dans les LCQ.

J'ai montré pendant ma thèse que le mélange de fréquences, obtenu précédemment dans les LCQ THz, pouvait être étendu aux LCQ MIR, grâce au faible impact de l'accord de phase devant les pertes. Nous avons ainsi généré la différence de fréquences entre un faisceau de pompe NIR et un LCQ MIR basé sur GaAs à 9 μm . Le caractère résonant du processus a été mis en évidence en variant l'énergie de pompe. La génération de la DFG a également pu être démontrée jusqu'à température ambiante dans ces dispositifs, démontrant que l'élargissement des niveaux avec la température (facteur Γ), n'était pas problématique. Ce résultat permet d'envisager la mise en place facilitée d'éventuelles applications pour les télécommunications.

C'est dans ces perspectives que nous avons développé un nouveau dispositif expérimental pour démontrer le mélange de fréquences dans les LCQ, adapté à la gamme télécom (1.3 μm -1.6 μm). Pour obtenir ces résultats, nous avons optimisé les performances de LCQ MIR basés

sur InP, en travaillant avec nos collaborateurs sur la croissance et le process de ces structures. Nous avons obtenu la génération de la SFG et de la DFG dans des LCQ MIR optimisés émettant à 9 μm , jusqu'à température ambiante, démontrant ainsi le transfert possible entre la bande télécom centrée à 1.3 μm et celle centrée à 1.55 μm . Nous avons également montré la génération de la SFG et de la DFG dans des LCQ THz basés sur InP refroidis à l'azote liquide, ouvrant la voie vers des décalages de longueurs d'ondes plus proches, à l'intérieur d'une même bande de transmission.

Pour toutes ces expériences, nous nous sommes intéressés à la démonstration du caractère résonant du processus non-linéaire et nous l'avons mis en évidence grâce à des études en fonction de l'énergie de pompe. Afin d'approfondir la compréhension des phénomènes impliqués dans le mélange de fréquences, nous avons développé un modèle théorique décrivant l'évolution de la susceptibilité non-linéaire d'ordre 2 dans ce type d'expériences. Ces études combinées, à la fois expérimentales et théoriques, dans le THz et le MIR, nous ont permis de comparer les valeurs de susceptibilité extraites des expériences et de montrer le bon accord avec les calculs théoriques. Ces études nous ont également permis de mettre en évidence des résonances plus accessibles dans les LCQ THz, justifiant ainsi une plus grande efficacité de conversion dans les LCQ THz, par rapport aux LCQ MIR.

Ces résultats de mélange de fréquences en géométrie de transmission à travers un LCQ sont très prometteurs mais ont été limités à des énergies d'excitation proche du gap, à cause de l'absorption. En effet, lorsque l'énergie de pompe est trop importante, à la fois la pompe et le mélange de fréquences sont absorbés dans la cavité et ce dernier ne peut pas être détecté à l'autre extrémité du LCQ. On ne peut alors pas explorer les états de plus haute énergie notamment des configurations plus favorables comme la double résonance. Pour dépasser ces limites, nous avons proposé une nouvelle géométrie d'excitation, en réflexion par une fente gravée à la surface du LCQ. Nous avons démontré le mélange de fréquences dans cette configuration, pour un LCQ THz basé sur GaAs, sur une plage d'énergie bien plus étendue que celle accessible en géométrie de transmission. On a montré grâce à cette nouvelle approche que l'on pouvait en partie dépasser les limites liées à l'absorption et ainsi explorer des excitations résonantes à plus haute énergie. Ces résultats ont été comparés aux simulations numériques de $\chi^{(2)}$, calculées en prenant en compte toutes les transitions possibles, mettant en évidence une possible annulation de $\chi^{(2)}$ par interférence entre les contributions des trous lourds et des trous légers.

Les résultats présentés dans cette thèse ont montré que les LCQ sont des outils remarquables pour réaliser des expériences d'optique non-linéaire résonante dans la gamme THz-MIR, mettant en œuvre des excitations à la fois interbandes et intersousbandes. Nous avons montré la versatilité de l'utilisation des LCQ pour du mélange de fréquences dans la gamme d'excitation NIR avec des LCQ THz et MIR basés sur GaAs et dans la gamme d'excitation télécom avec des LCQ THz et MIR basés sur InP. Ce travail met en avant le potentiel des LCQ comme source pour sonder les propriétés d'optique non-linéaire de nouveaux matériaux à travers tout le spectre électromagnétique et grâce à l'exaltation des résonances, en utilisant des puissances relativement faibles. Je présente maintenant les perspectives de mon travail de thèse, tournées à la fois vers les applications et vers les intérêts de physique fondamentale.

Perspectives

J'ai démontré dans cette thèse que les lasers à cascade quantique constituent un outil pertinent et versatile donc d'autant plus prometteur, pour le mélange de fréquences entre un

faisceau proche infrarouge ou télécom et un faisceau THz ou MIR. J'ai démontré la possibilité d'étendre la gamme de longueurs d'ondes de pompe et celles du LCQ et l'obtention du phénomène à température ambiante, ce qui rend le dispositif transposable pour de potentielles applications. Le premier axe de perspectives est donc d'améliorer l'efficacité du processus en spécialisant les LCQ avec l'objectif de performance du mélange d'ondes.

Vers plus d'efficacité

Dans tous les travaux de recherche présentés ici, le milieu non-linéaire utilisé pour le mélange de fréquences est la zone active du LCQ elle-même. Or celle-ci est optimisée pour l'émission laser du LCQ et pas pour le mélange de fréquences. Grâce au modèle théorique complet et adapté au mélange d'ondes dans les LCQ que nous avons développé, il serait envisageable d'optimiser une structure de bandes dans l'objectif du mélange d'ondes. Cette structure, probablement plus simple que la zone active d'un LCQ, aurait pour seule fonction d'être le milieu non-linéaire pour le processus de mélange d'ondes résonant.

Nous avons commencé à implémenter cette idée, sans résultat expérimental pour le moment, en insérant une couche de puits quantiques adaptés au mélange d'ondes au sein de la cavité d'un LCQ. Cette approche est présentée dans l'annexe B. Une couche indépendante, propre au mélange de fréquences est insérée à proximité de la zone active du LCQ afin d'être excitée par le champ THz ou MIR contenu dans la cavité du LCQ et par un faisceau NIR résonant, en géométrie de transmission. Le guide peut être adapté pour permettre le confinement du faisceau NIR préférentiellement dans la couche qu'on qualifie de couche non-linéaire.

Nous avons démontré dans le dernier chapitre qu'une géométrie d'excitation par la surface du LCQ permettait de dépasser en partie les limites liées à l'absorption. Cette configuration pourrait elle aussi être poussée plus loin et adaptée plus spécifiquement au mélange de fréquences. Tout d'abord, un prochain projet sera d'adapter cette géométrie aux LCQ MIR basés sur InP, avec des améliorations de l'efficacité actuelle (plus faible que pour le THz) très prometteuses.

Il serait intéressant de poursuivre cette approche et de l'accentuer, en prévoyant par exemple un dispositif conçu avec, une épaisseur plus fine ne servant qu'au mélange, réduisant encore les effets d'absorption. Une couche réfléchissante au proche infrarouge et non-absorbante à la longueur d'onde du LCQ, pourra se trouver juste en dessous de la couche non-linéaire, ne modifiant pas le fonctionnement du LCQ mais permettant d'optimiser le mélange d'ondes en réflexion. On pourrait ainsi espérer exciter à des énergies encore plus hautes et réduire l'absorption restante. La structure de cette couche pourra, être optimisée pour le mélange d'ondes en optimisant la susceptibilité non-linéaire grâce aux calculs développés dans cette thèse.

Vers des applications concrètes

Grâce à la versatilité des longueurs d'ondes exploitables et au caractère compact du mélange de fréquences démontré dans les LCQ, il est envisageable de penser à des applications de ce dispositif à d'autres fins que celle de mettre en évidence le phénomène d'optique non-linéaire lui-même.

On a détaillé dans ce manuscrit une utilisation possible du dispositif pour le décalage de longueurs d'onde dans la gamme NIR ou dans la gamme télécom. Ce décalage peut être envisagé sur une grande plage de faisceaux d'excitation (via la SFG et la DFG) et il peut être de quelques nanomètres à quelques dizaines de nanomètres dans le NIR ou de quelques

centaines de nanomètres dans la gamme télécom. Ces applications de décalage tout-optique en télécommunications permettraient d'augmenter les vitesses de transmission, actuellement limitées par l'électronique.

Un autre point intéressant et utile est la conversion des modes THz ou MIR du LCQ vers le domaine NIR. La possibilité d'obtenir le spectre d'un LCQ, avec seulement une source NIR (quelques mW de puissance) et un système de détection NIR (spectromètre et caméra CCD) est un avantage certain par rapport au spectromètre à transformée de Fourier. On montre en annexe A que la résolution et la sensibilité sont similaires permettant de caractériser facilement des LCQ bloqués en modes ou des LCQ très large bandes. La détection de l'impulsion du LCQ elle-même transférée dans le NIR, est envisageable grâce à des détecteurs rapides, disponibles dans le NIR.

Une autre intégration possible du dispositif, serait de transférer une modulation haute fréquence vers un faisceau de la gamme télécom. En effet, les technologies actuelles ne permettent de moduler les faisceaux qu'à des fréquences de l'ordre de quelques GHz. Grâce à notre dispositif, on peut moduler le LCQ jusqu'à plusieurs dizaines de GHz et transposer cette modulation sur le faisceau de mélange de fréquences, dans le domaine télécom.

Vers de nouveaux matériaux et d'autres phénomènes d'optique non-linéaire

Les phénomènes d'optique non-linéaire résonante démontrés dans ce manuscrit s'attachent à l'interaction dans des puits quantiques de semiconducteurs. Nous avons vu d'une part, que le mélange d'ondes permettait de caractériser les propriétés optiques du milieu d'interaction par l'obtention de la valeur de $\chi^{(2)}$. D'autre part, nous avons démontré que le processus de mélange d'ondes pouvait servir de sonde pour étudier la structure de bandes grâce à son caractère résonant (en comparant avec des simulations théoriques). Les systèmes composés de puits quantiques sont aujourd'hui bien connus mais il pourrait être intéressant de caractériser de nouveaux matériaux, à la fois leurs propriétés optiques et leur structure électronique. Pour cela, on pourra également investiguer d'autres phénomènes d'optique non-linéaire tels que la génération de bandes latérales d'ordre supérieur.

Optique non-linéaire dans le graphène

De par sa structure de bandes en cône de Dirac, le graphène est un milieu d'interaction particulièrement intéressant pour des expériences d'optique non-linéaire. De nombreuses études théoriques [84] [85] vont dans ce sens, mettant notamment en avant des effets non-linéaires plus importants dans la gamme THz. De précédentes expériences [86] montrent la réalisation de mélange à 4 ondes (génération d'un faisceau de fréquence $\omega_3 = 2\omega_1 - \omega_2$), où les longueurs d'onde des faisceaux impliqués sont dans la gamme 800 nm - 1200 nm. Les auteurs montrent que les non-linéarités attendues seraient encore plus fortes à des fréquences THz.

Dans la perspective d'étudier le mélange de fréquences NIR et THz dans le graphène, nous avons mis en place une nouvelle expérience (en cours de développement). Grâce au caractère compact du LCQ, le graphène a été intégré directement à proximité du champ THz émis par le LCQ. On a utilisé pour cela des sources LCQ THz émettant par la surface, développées à l'IEF à Orsay, par l'équipe de Raffaele Colombelli [41]. On dépose alors du graphène à la surface de ces LCQ, dans la zone éclairée par le champ THz, permettant une excitation NIR en réflexion sur la surface. Une étude en fonction de la longueur d'onde NIR sera très intéressante pour apporter un autre éclairage sur les propriétés du graphène.

Génération de bandes latérales d'ordre élevé

La génération de bandes latérales d'ordre élevé est un phénomène d'optique non-linéaire impliquant un faisceau NIR résonant avec une transition excitonique et un faisceau THz. Démonstré dans différents systèmes de matière condensée, ce phénomène conduit à la génération de faisceaux à des énergies $E_{NIR} \pm nE_{THz}$, n pouvant prendre des valeurs jusqu'à 20 selon les systèmes.

Le fonctionnement de ce processus est très similaire à un processus bien connu dans les systèmes atomiques, découvert au début des années 1990 [47] [48] [87] [88] : la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Lorsqu'un faisceau NIR femtoseconde intense (d'énergie E_{NIR}) excite un atome, ce dernier peut s'ioniser. L'électron arraché n'est plus soumis qu'au champ laser, il est alors éloigné puis redirigé vers l'atome avec lequel il se recombine en libérant l'énergie cinétique accumulée, sous forme de photons dont l'énergie est un multiple de l'énergie initiale du laser nE_{NIR} . Ce phénomène a été d'abord mis en évidence dans les gaz atomiques puis moléculaires avant d'être démontré dans les solides [89]. Un travail récent démontre la génération d'harmoniques dans un solide de GaSe, excité par un champ THz [90].

Dans le cas du phénomène de génération de bandes latérales, le faisceau NIR permet de créer un exciton dans le matériau, c'est-à-dire une paire électron-trou liée par la force de Coulomb. Le faisceau THz excite alors cette entité à une énergie inférieure à l'énergie de liaison de l'exciton. Bien que toujours soumis au potentiel coulombien, l'électron est éloigné puis redirigé vers le trou. L'électron recollisionne avec le trou, libérant l'énergie cinétique accumulée sous forme de photons d'énergies $E_{NIR} \pm nE_{THz}$. La théorie décrivant ce phénomène a été développée en 2007 [91][92] et les démonstrations expérimentales ont été mises en évidence à Santa Barbara dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs [68] puis dans du GaAs massif [70]. Des travaux théoriques proposent d'utiliser le graphène comme milieu d'interaction [93]. De récents travaux montrent la génération de bandes latérales dans des dichalcogénures de métaux de transition WSe₂ [71].

Ces démonstrations récentes montrent le vif intérêt pour l'étude de ces phénomènes fondamentaux de recollision électron-trou, mettant également en avant les propriétés d'optique non-linéaire prometteuses des nouveaux matériaux 2D. Grâce aux LCQ, il serait possible de réaliser un dispositif tout-intégré où les matériaux à étudier comme milieu non-linéaire sont approchés de la source LCQ, afin d'étudier de ces phénomènes. Les largeurs de raies des modes émis par les LCQ sont très fines, accordables dans toute la gamme THz-MIR et le blocage de modes de ces sources permet de générer des impulsions pour sonder la gamme dynamique. Le caractère compact et versatile du dispositif est un avantage supplémentaire pour des études dans différentes gammes de longueurs d'onde.

ANNEXES

Annexe A : Spectres de LCQ bloqués en modes obtenus par mélange de fréquences .	142
Annexe B : Mélange d'ondes dans une couche non-linéaire	143
Annexe C : Mélange LCQ InGaAs guide couches InGaAs	146
Annexe D : Dessin de nouvelles structures de bandes décalées vers les hautes énergies	147
Annexe E : Convergence des calculs de $\chi^{(2)}$	148

Annexe A: Spectres de LCQ bloqués en modes obtenus par mélange de fréquences

Le transfert du spectre du LCQ dans le domaine NIR est une application du mélange d'ondes très intéressante. Nous l'avons mise en œuvre dans l'équipe pour regarder le spectre de LCQ bloqués en mode. Pour bloquer un LCQ en modes, on ajoute à l'alimentation électrique quasi continue, une modulation radiofréquence (RF) à la fréquence de résonance de la cavité. Pour un LCQ de 3 mm de long, cette fréquence est autour de 12 GHz. On peut voir sur la figure .17 le spectre d'un LCQ THz sans modulation RF mesuré directement à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) en noir. Ce dernier est comparé au spectre en rouge, de la différence de fréquences obtenue en excitant le LCQ avec un faisceau pompe NIR résonant. La figure .18 présente les mêmes mesures lorsque le LCQ est modulé à 12.3 GHz, avec une puissance de 24 dBm. On peut être très satisfaits de l'accord entre le spectre FTIR et le spectre de la différence de fréquences. Ce dernier reproduit parfaitement les différents modes du LCQ. On voit très bien l'élargissement spectral et la forme plus gaussienne attendue lorsque le laser est bloqué en modes. En effet, en blocage de modes, le LCQ émet des impulsions THz et donc un spectre plus élargi du fait de la réduction des impulsions. Les modes plus faibles à 3.23 THz et à 3.33 THz sur le spectre mesuré au FTIR correspondent aux pics d'absorption de l'eau, le dispositif de mesure n'étant pas sous atmosphère inerte.

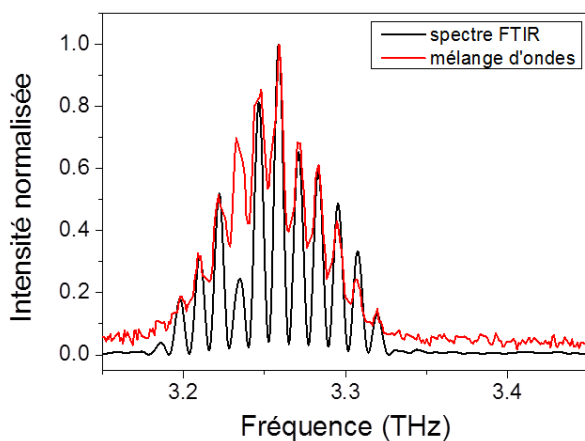


FIGURE .17 – Spectre du LCQ sans modulation RF mesuré au FTIR et spectre de la différence de fréquences dans les mêmes conditions.

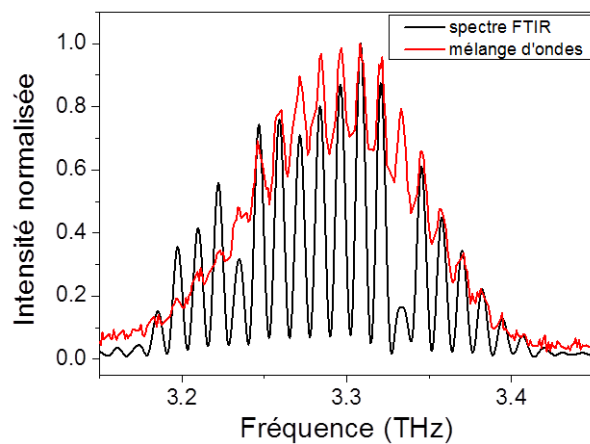


FIGURE .18 – Spectre du LCQ avec modulation RF mesuré au FTIR et spectre de la différence de fréquences dans les mêmes conditions.

Annexe B: Mélange d'ondes dans une couche non-linéaire

L'idée développée dans ce paragraphe était de découpler la zone active servant à l'émission du champ THz du milieu non-linéaire servant pour le mélange d'ondes. Il serait alors possible d'optimiser le milieu non-linéaire pour le mélange d'ondes, sans altérer les propriétés du LCQ. Pour conserver le caractère « tout-intégré » de nos expériences et continuer d'utiliser le LCQ comme source THz ou MIR et comme guide optique, nous avons proposé d'ajouter une couche indépendante, devant servir uniquement de milieu non-linéaire, dans la croissance du LCQ. On qualifie cette couche de « couche non-linéaire ».

Nous nous sommes intéressés en parallèle à l'élaboration d'une couche composée de puits quantiques à intégrer dans la croissance de LCQ MIR basés sur GaAs et à l'élaboration d'une couche de matériau massif quaternaire à intégrer dans la croissance de LCQ MIR basés sur InP. Grâce à cette nouvelle approche, on profite du fait que cette couche non-linéaire est proche de la zone active, donc elle peut être excitée par le champ du LCQ à l'intérieur de la cavité, mais elle n'est pas responsable de l'émission THz ou MIR, elle peut donc être optimisée pour le mélange non-linéaire sans modifier l'émission du LCQ.

Couche non-linéaire composée de puits quantiques

Pour cette première approche, j'ai proposé une structure de bandes composée de puits InGaAs, avec 5 % d'indium pour conserver l'accord de longueur de maille avec le GaAs. Les états électroniques confinés dans les puits seront à plus basse énergie que les états électroniques de la zone active, il sera plus facile de les exciter sélectivement en résonance. Les barrières sont composées d'AlGaAs à 28 % d'aluminium. Grâce à cette forte concentration, le contraste de bande de conduction est de 235 meV, ce qui est suffisant pour nous permettre d'avoir un écart d'énergie dans le MIR entre deux niveaux électroniques confinés. Le champ électrique appliqué au LCQ a été pris en compte. Le dessin final est présenté figure .19.

Nous nous sommes orientés vers une structure avec deux puits couplés et deux barrières. J'ai ajusté la structure pour obtenir dans le puits large, deux états électroniques espacés d'une énergie proche de 135 meV. Nous avons choisi de fixer cette énergie à 110 meV, pour profiter du caractère résonant avec le champ MIR du LCQ en minimisant l'absorption. J'ai également calculé le recouvrement électron-trou, afin de s'assurer de forts dipôle favorisant l'exaltation non-linéaire. Pour la structure optimale, les recouvrements des états électroniques 1 et 2 avec le premier trou sont respectivement de 0.5 et 0.4, à des énergies de 1.39 eV et 1.5 eV. J'ai ainsi obtenu une structure de puits optimisée pour le mélange d'ondes, indépendante de la zone active.

L'étape suivante dans les simulations concerne le guide d'ondes. En effet, on a vu précédemment l'importance du recouvrement spatial entre les modes NIR et MIR avec le milieu non-linéaire. Il s'agit maintenant de confiner le champ NIR dans la couche non-linéaire, celle-ci devant également profiter de l'étalement du mode MIR autour de la zone active. Les détails du guide final sont répertoriés dans le tableau 20.

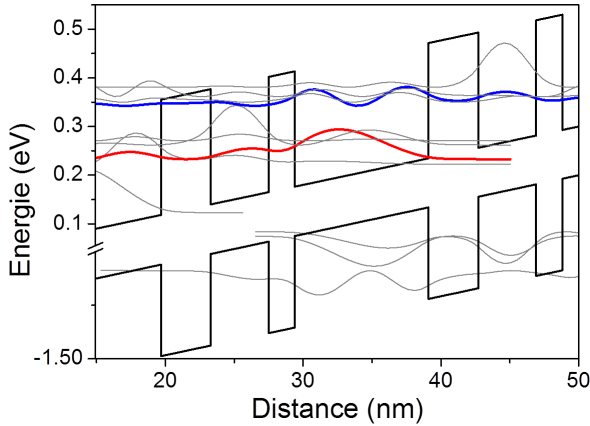


FIGURE .19 – Simulation des puits quantiques InGaAs/AlGaAs optimisés pour le mélange d'ondes dans la couche non-linéaire.

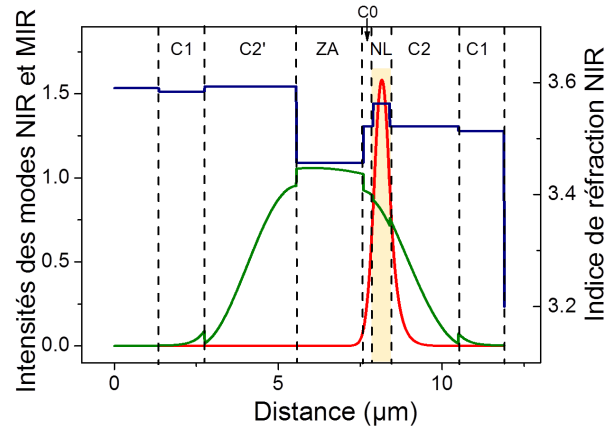


FIGURE .20 – Simulation du guidage du faisceau MIR (vert) et du faisceau NIR (rouge) dans la couche non-linéaire (orange). L'indice de réfraction pour le NIR est tracé en bleu.

Les simulations des modes MIR et NIR dans ce dispositif sont présentés sur la figure .20. On reconnaît la zone active de 2 μm d'épaisseur puis très proche la couche non-linéaire de 0.5 μm d'épaisseur, éloignée seulement par une couche d'AlGaAs de 0.3 μm d'épaisseur. L'épaisseur des différentes couches composant ce guide a été optimisée pour obtenir à la fois :

- un bon recouvrement entre le champ NIR et la couche non-linéaire, pour permettre l'excitation interbande résonante,
- un bon recouvrement entre le champ MIR et la zone active, pour maintenir le bon fonctionnement du LCQ,
- un recouvrement suffisant entre le champ MIR et la couche non-linéaire pour obtenir le recouvrement spatial nécessaire au mélange d'ondes.

	C0	C1	C2	C2'	ZA	CNL
Epaisseur (μm)	0.3	1.4	2.1	2.8	2.0	0.5
Dopage (cm^{-3})	1e16	6e18	8e16	8e16	1.4e17	1e16
Aluminium (%)	8	0	8	8	17	8

Table 20 – Caractéristiques du guide d'ondes optimisé pour le mélange de fréquences dans la couche non-linéaire

On voit que le mode NIR se confine préférentiellement dans la couche non-linéaire, grâce au contraste d'indice, le recouvrement spatial du mode NIR avec la couche non-linéaire est de 66 %. Le mode MIR quant à lui, est bien confiné dans la zone active avec un recouvrement de 43% et des pertes de 18 cm^{-1} ce qui permet au LCQ de fonctionner correctement mais il présente également un recouvrement de 10% avec la couche non-linéaire. Les deux modes ont donc un certain recouvrement avec la couche non-linéaire, bien que celui du MIR soit 4 fois plus faible que dans la zone active, cela devrait tout de même permettre au mélange d'ondes d'avoir lieu.

Cet échantillon, optimisé pour le mélange d'ondes, semble très prometteur. Il n'a cependant pas montré d'émission laser et des seuils de tension très élevés. On en a déduit que le dopage des puits InGaAs était peut-être insuffisant pour assurer un bon transport des électrons dans la structure.

Mélange dans une couche non-linéaire InGaAsP

L'échantillon présenté dans ce paragraphe, a été dessiné par Margaux St-Jean, chez nos collaborateurs du MPQ à Paris 7. On propose ici de modifier un LCQ MIR basé sur InP émettant à $9\ \mu\text{m}$ et d'ajouter une couche indépendante pour le mélange d'ondes, constituée d'un matériau quaternaire InGaAsP. Les contraintes pour le mélange d'ondes sont les suivantes : il faut un matériau dont le gap est autour de $1.3\ \mu\text{m}$ à température ambiante pour éviter toute absorption à $1.55\ \mu\text{m}$ et il faut un indice de réfraction aux alentours de 3.6 pour des meilleures conditions d'accord de phase. Dans ces conditions, nous avons opté pour un matériau dans les proportions $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}_{0.7}\text{P}_{0.3}$, donnant un gap plus proche de $1.39\ \mu\text{m}$. Le guide d'ondes a ensuite été optimisé de manière analogue à ce qui a été présenté précédemment, pour avoir un bon recouvrement spatial entre les modes MIR et NIR et la couche non-linéaire.

Cet échantillon de code InP1639, présente de bonnes caractéristiques Puissance-Tension-Courant, présentées dans le chapitre V, dans la partie V.1.3. La couche non-linéaire a pu être bien identifiée par des mesures de photoluminescence. Le couplage optique sélectivement dans cette couche a été démontré.

La couche non-linéaire a été optimisée à température ambiante pour que le gap soit vers $1.3\text{-}1.4\ \mu\text{m}$. Cependant, cette croissance n'émet que quelques mW de MIR à température ambiante, ce qui est insuffisant pour le mélange d'ondes. On a cherché à générer le mélange d'ondes à plus basse température mais l'excitation résonante dans la couche non-linéaire était alors au-delà de la gamme de notre laser télécom. La figure .21 montre les courbes de photoluminescence de la couche non-linéaire pour différentes températures et la gamme accessible de notre laser télécom.

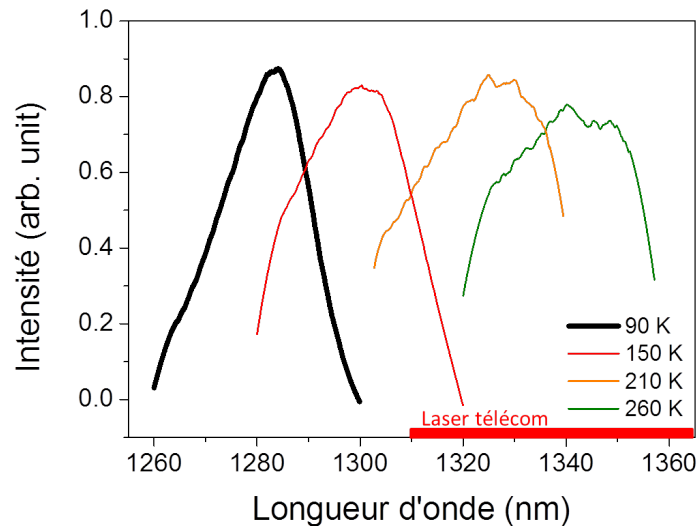


FIGURE .21 – Photoluminescence de la couche non-linéaire de quaternaire en fonction de la température.

Nous n'avons pas pu observer de mélange d'onde. L'absence d'observation de mélange d'ondes dans cette couche peut venir du fait que les non-linéarités sont peu exaltées dans un matériau massif ou que les puissances d'excitation MIR sont insuffisantes.

Annexe C: Mélange LCQ InGaAs guide couches InGaAs

Dans cette partie, on compare la différence d'efficacité de mélange d'ondes dans les LCQ MIR basés sur InP en présence ou non des couches de guide d'InGaAs encadrant la zone active. La figure .22 montre le spectre de la somme de fréquence générée pour une excitation à 1510 nm dans un LCQ MIR basé sur InP à 9 μm , sans couches d'InGaAs (croissance InP1638). Dans les conditions d'expérience, ce LCQ émet 26 mW de puissance à 90 K. Sur la figure .23 est présenté le spectre de la somme de fréquences générée dans un LCQ MIR basé sur InP, émettant à 7.9 μm doté de couches de guide d'InGaAs. A 90 K, ce LCQ émet 330 mW, soit plus de 10 fois plus de puissance MIR que le premier LCQ à 9 μm .

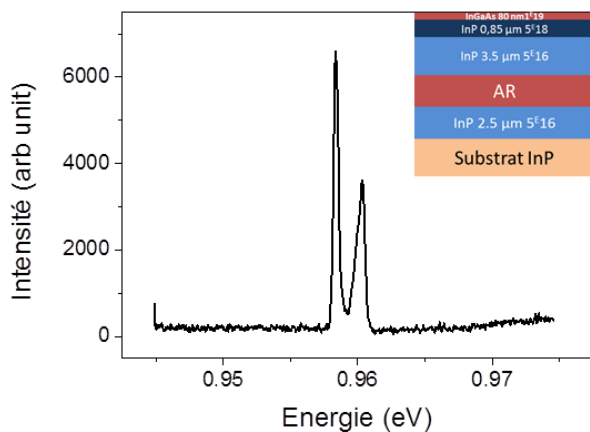


FIGURE .22 – Emission de la somme de fréquences dans un LCQ MIR basé sur InP à 9 μm , sans couches de guide InGaAs.

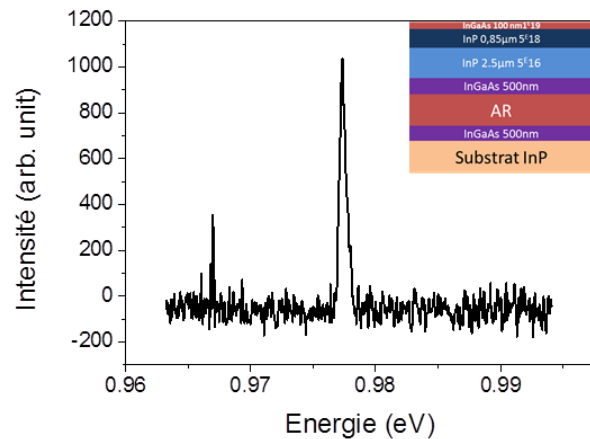


FIGURE .23 – Emission de la somme de fréquences dans un LCQ MIR basé sur InP à 7.9 μm , doté de couches cladding InGaAs.

On a mesuré dans les deux cas les efficacités de génération de la somme de fréquences. Malgré une puissance MIR émise bien plus importante dans le LCQ avec les couches InGaAs (330 mW contre 26 mW), la génération de la somme de fréquences est 40 fois plus efficace dans le LCQ MIR dont le guide a été adapté sans les couches d'InGaAs. Ces observations justifient nos efforts pour réadapter le guide d'ondes sans couche d'InGaAs, bien que la puissance MIR émise soit plus faible.

Annexe D: Dessin de nouvelles structures de bandes décalées vers les hautes énergies

On présente ci-dessous le dessin d'une nouvelle structure de bandes de LCQ MIR basé sur InP, dont les états impliqués dans la transition laser et dans le processus de mélange d'ondes ont été décalés vers les plus hautes énergies. On parvient en réduisant la largeur des puits à décaler tous les états électroniques de près de 60 meV. On pourra ainsi exciter ce LCQ pour générer du mélange d'ondes en résonance à des énergies de pompe plus hautes. On espère ainsi être capables de produire la transition entre 1.3 μm et 1.55 μm plus efficacement à température ambiante.

La séquence est la suivante :

2,4/3,9/1,4/4,3/1,4/4,5/1/2,2/5/2,5/3,5/2,5/3,5/2,7/3/2,7/1,9/2,5/2/2,6/2,3/2,9.

Les couches barrière de $\text{In}_{0.52}\text{Al}_{0.48}\text{As}$ sont marquées en gras et les couches puits de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$ sont en écriture normale. Les couches dopées type n en Si sont soulignées. Nous avons effectué plusieurs croissances avec différents dopages pour ces couches pour améliorer les performances de ces LCQ. Nous présenterons l'optimisation de ces échantillons dans la partie V.1.3.

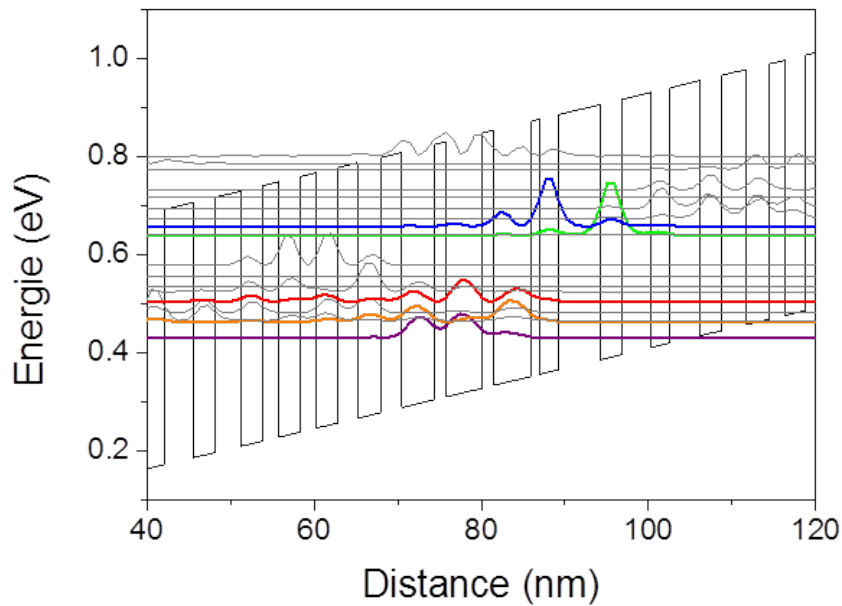


FIGURE .24 – Nouveau dessin de structure de bandes, les niveaux électroniques sont décalés de 63 meV vers de plus hautes énergies.

Annexe E: Convergence des calculs de $\chi^{(2)}$

Les calculs de $\chi^{(2)}$ présentés dans le chapitre VI montrent une susceptibilité non-linéaire théorique calculée en sommant toutes les contributions des transitions entre états confinés. La somme portent donc sur une vingtaine d'états.

Nous observons sur ces calculs que pour des énergies de pompe bien inférieures à l'énergie de gap, la susceptibilité non-linéaire ne tend pas vers une valeur très faible mais reste à un niveau supérieur à quelques centaines de pm/V. Cette observation est étonnante, on s'attend à ce que l'exaltation due aux résonances s'estompe rapidement dès que l'on passe sous le gap.

Pour comprendre cette observation, il faut revenir sur la convergence des calculs de $\chi^{(2)}$ menés dans ce chapitre. La formule de $\chi^{(2)}$ étant de la forme $1/x$, il faut en réalité prendre en compte un plus grand nombre d'états pour assurer la convergence de la somme à basse énergie. La figure .25 montre le calcul de $\chi^{(2)}$ pour 20 états (en rouge) et pour 50 états, dont des états non confinés (en noir). On voit qu'avec plus d'états, la somme converge mieux et $\chi^{(2)}$ tend vers une valeur inférieure à 100 pm/V.

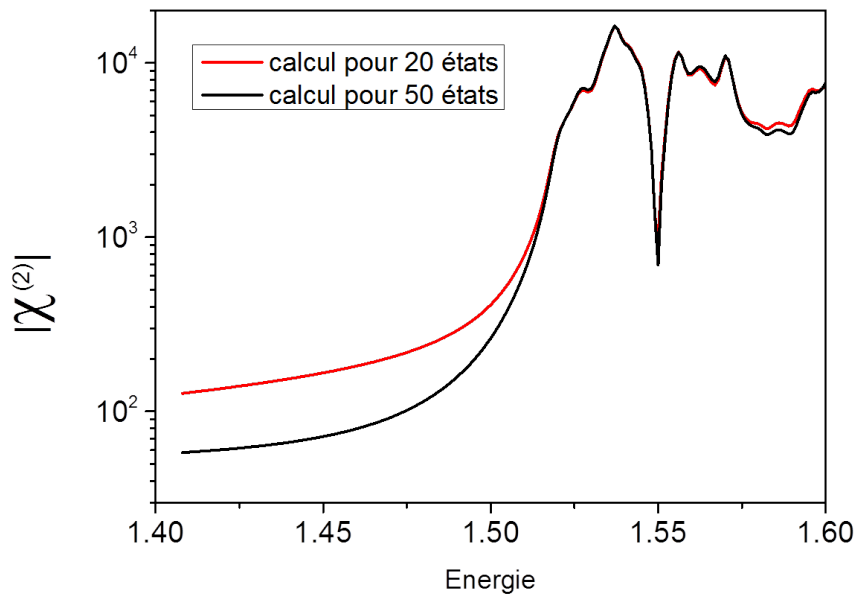


FIGURE .25

LISTE DES PUBLICATIONS

- COURANT 2017 (en préparation à la date d'écriture de ce manuscrit)
Nonlinear optics in QCLs : Towards Broadband THz-to-Optical Up-conversion, S. Houver, A. Lebreton, R. Colombelli, L. H. Li, E. H. Linfield, A. G. Davies, T. A. S. Pereira, R. Feirerra, J. Tignon and S. S. Dhillon.
- COURANT 2017 (en finalisation à la date d'écriture de ce manuscrit)
Multi-THz Sideband Generation on an optical telecom carrier at room temperature, S. Houver, A. Lebreton, A. Mottaghizadeh, M. I. Amanti, C. Sirtoti, G. Beaudoin, I. Sagnes, O. Parillaud, R. Colombelli, J. Tignon and S. S. Dhillon.
- COURANT 2017
Ultra-short terahertz pulse generation from a dispersion compensated modelocked semiconductor laser, F. Wang, H. Nong, T. Fobbe, V. Pistore, S. Houver, S. Markmann, N. Jukam, M. I. Amanti, C. Sirtori, S. Moundji, R. Colombelli, L. H. Li, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Mangeney, and J. Tignon and S. S. Dhillon, submitted to Laser & Photonics Reviews.
- MARS 2017
Terahertz nonlinear optics with a compact semiconductor device, S. Houver, P. Cavalié, J. Mangeney, J. Tignon and S. S. Dhillon, SPIE Newsroom (<http://spie.org/x124795.xml>). DOI : 10.1117/2.1201612.006803)
- JANVIER 2015
Optical sideband generation up to room temperature with mid-infrared quantum cascade lasers, S. Houver, P. Cavalié, M. Renaudat St-Jean, M. Amanti, C. Sirtori, L. H. Li, E. H. Linfield, A. G. Davies, T. A. S. Pereira, A. Lebreton, J. Tignon, and S. S. Dhillon, Opt. Express 23, 4012-4020 (2015).

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho, Quantum cascade laser, *Science*, 264(5158) :553–556, 1994. (document), I, I.2.2, III
- [2] R. Kohler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Iotti, and F. Rossi, Terahertz semiconductor-heterostructure laser, *Nature*, 417 :156–159, 2002. (document), I, I.3.2, I.5, III
- [3] E. Rosencher, A. Fiore, B. Vinter, V. Berger, P. Bois, and J. Nagle, Quantum engineering of optical nonlinearities, *Science*, 271(5246) :168–273, 1996. (document), II.2.1, II.3.1
- [4] J. Kono, M. Y. Su, T. Inoshita, T. Noda, M. S. Sherwin, S. J. Allen, Jr., and H. Sakaki, Resonant terahertz optical sideband generation from confined magnetoexcitons, *Phys. Rev. Lett.*, 79 :1758–1761, Sep 1997. (document), III.1, ??, III.1, III.2
- [5] S. G. Carter, V. Ciulin, M. S. Sherwin, M. Hanson, A. Huntington, L. A. Coldren, and A. C. Gossard, Terahertz electro-optic wavelength conversion in gaas quantum wells: Improved efficiency and room-temperature operation, *Applied Physics Letters*, 84(6) : 840–842, 2004. (document), III.1, III.3
- [6] C. Zervos, M. D. Frogley, C. C. Phillips, D. O. Kundys, L. R. Wilson, J. W. Cockburn, M. Hopkinson, and M. S. Skolnick, Coherent near-infrared wavelength conversion in semiconductor quantum cascade lasers, *Applied Physics Letters*, 89, 2006. (document), III.1, III.4
- [7] S. S. Dhillon, C. Sirtori, J. Alton, S. Barbieri, A. de Rossi, H. E. Beere, and D. A. Ritchie, Terahertz transfer onto a telecom optical carrier, *Nat Photon*, 1 :411–415, 2007. (document), III.1, III.5, III.6
- [8] J. Madeo, P. Cavalie, J. R. Freeman, N. Jukam, J. Maysonnave, K. Maussang, H. E. Beere, D. A. Ritchie, C. Sirtori, J. Tignon, and S. S. Dhillon, All-optical wavelength shifting in a semiconductor laser using resonant nonlinearities, *Nature Photonics*, 6(8) : 519–524, Aug 2012. (document), III.2, IV.1, IV.4.1, IV.4.1, V.2.3

- [9] P. Cavalie, J. Freeman, K. Maussang, E. Strupiechonski, G. Xu, R. Colombelli, L. Li, A. Davies, E. Linfield, J. Tignon, and D. SS, High order sideband generation in terahertz quantum cascade lasers, *Applied Physics Letters*, 102(22) :1101–1105, June 2013. (document), III.2, V.2.3, V.4, VI.1.1
- [10] S. Houver, P. Cavalie, M. R. St-Jean, M. I. Amanti, C. Sirtori, L. H. Li, A. G. Davies, E. H. Linfield, T. A. S. Pereira, A. Lebreton, J. Tignon, and S. S. Dhillon, Optical sideband generation up to room temperature with mid-infrared quantum cascade lasers, *Opt. Express*, 23(4) :4012–4020, 2015. (document)
- [11] R. N. Hall, R. O. Carlson, T. J. Soltys, G. E. Fenner, and J. D. Kingsley, Coherent light emission from gaas junctions, *Physical Review Letter*, 9 :366–, 1962. I
- [12] J. P. van der Ziel, R. Dingle, R. C. Miller, W. Wiegmann, and W. A. Nordland, Laser oscillation from quantum states in very thin GaAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As multilayer structures, *Applied Physics Letters*, 26(8) :463–465, 1975. I
- [13] R. A. Kazarinov, R. F. Suris, Possibility of amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice, *Soviet Physics Semiconductors*, 5 :707–, 1971. I
- [14] R. Esaki, L. Tsu, Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors, *Ibm Journal of Research and Development*, 14 :61–, 1970. I, I.1.1
- [15] L. C. E. S. J. West, 1st Observation of an Extremely Large-Dipole Infrared Transition within the Conduction-Band of a Gaas Quantum Well, *Applied Physics Letter*, 46 : 1156–1158, 1985. I
- [16] M. Helm, E. Colas, P. England, F. Derosa, and S. J. Allen, Observation of grating-induced intersubband emission from gaas/algaas superlattices, *Applied Physics Letter*, 53 :1714–1716, 1988. I
- [17] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*, Les éditions de physique, 1988. I.1, I.1.3, VI.2.1
- [18] A. Y. Cho and J. R. Arthur, Molecular beam epitaxy, *Prog. Solid State Chem.*, 10 :157, 1975. I.1.1, I.4.2
- [19] B. S. Williams, Terahertz quantum-cascade lasers, *Nature Photonics*, 1 :517–525, 2007. I.2.2, I.15, I.16
- [20] H. Page, C. B. A. Robertson, G. Glastre, V. Ortiz, and C. Sirtori, 300 K operation of a GaAs-based quantum-cascade laser at $\lambda=9 \mu\text{m}$, *Applied Physics Letters*, 78(22) : 3529–3531, March 2001. I.2.2, IV.2.1, IV.2.3
- [21] J. Faist, D. Hofstetter, M. Beck, T. Aellen, M. Rochat, and S. Blaser, Bound-to-continuum and two-phonon resonance quantum-cascade lasers for high duty cycle, high-temperature operation, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 38 :533–546, 2002. I.2.2, V.1.1, V.1.3
- [22] M. I. Amanti, G. Scalari, R. Terazzi, M. Fischer, M. Beck, J. Faist, A. Rudra, P. Gallo, and E. Kapon, Bound-to-continuum terahertz quantum cascade laser with a single-quantum-well phonon extraction/injection stage, *New Journal of Physics*, 11, 2009. I.2.2, VI.1.1
- [23] P. Yeh, *Optical waves in layered media*, Wiley, 1988. I.3.1

- [24] R. P. Green, A. Krysa, J. S. Roberts, D. G. Revin, L. R. Wilson, E. A. Zibik, W. H. Ng, and J. W. Cockburn, Room-temperature operation of ingaas/alinas quantum cascade lasers grown by metalorganic vapor phase epitaxy, *Applied Physics Letters*, 83(10) : 1921–1922, 2003. I.4.2
- [25] M. Troccoli, L. Diehl, D. P. Bour, S. W. Corzine, N. Yu, C. Y. Wang, M. A. Belkin, G. Hoefler, R. Lewicki, G. Wysocki, F. K. Tittel, and F. Capasso, High-Performance Quantum Cascade Lasers Grown by Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy and Their Applications to Trace Gas Sensing, *JOURNAL OF LIGHTWAVE TECHNOLOGY*, 26 (21-24) :3534–3555, 2008. I.4.2
- [26] A. Calvar, Design, engineering and processing of QC Lasers for high frequency modulation, PhD thesis, Univeristé Paris Diderot, 2013. I.4.3
- [27] J. S. Yu, S. Slivken, A. Evans, L. Doris, and M. Razeghi, High-power continuous-wave operation of a 6 μm quantum-cascade laser at room temperature, *Applied Physics Letters*, 83 :2503–2505, 9 2003, doi : 10.1063/1.1613354. I.4.3
- [28] M. S. Vitiello, G. Scalari, B. Williams, and P. D. Natale, Quantum cascade lasers: 20 years of challenges, *Opt. Express*, (4) :5167–5182, 2015. I.5
- [29] N. Bandyopadhyay, Y. Bai, S. Slivken, and M. Razeghi, High power operation of $\lambda = 5.2\text{--}11\mu\text{m}$ strain balanced quantum cascade lasers based on the same material composition, *Applied Physical Letter*, 105, 2014. I.5
- [30] M. S. Vitiello, G. Scamarcio, V. Spagnolo, C. Worrall, H. E. Beere, D. A. Ritchie, C. Sirtori, J. Alton, and S. Barbieri, Subband electronic temperatures and electron-lattice energy relaxation in terahertz quantum cascade lasers with different conduction band offsets, *Applied Physical Letter*, 89, 2006. I.5
- [31] M. Bahriz, G. Lollia, P. Laffaille, A. N. Baranov, and R. Teissier, Inas/alsb quantum cascade lasers operating near 20 μm , *Electron. Lett.*, 49 :1238–1240, 2013. I.5
- [32] Q. Yang, C. Manz, W. Bronner, C. Mann, L. Kirste, K. Kohler, and J. Wagner, GaInAs/AlAsSb quantum cascade lasers operating up to 400 K, *Appl. Phys. Lett.*, 86, 2005. I.5
- [33] M. Beck, D. Hofstetter, T. Aellen, J. Faist, U. Oesterle, M. Illegems, E. Gini, and H. Melchior, Continuous wave operation of a mid-infrared semiconductor laser at room temperature, *Science*, 295 :301–305, 2002. I.5
- [34] Y. Bai, N. Bandyopadhyay, S. Tsao, S. Slivken, and M. Razeghi, Room temperature quantum cascade lasers with 27% wall plug efficiency, *Appl. Phys. Letter*, 98, 2011. I.5
- [35] A. Hugi, G. Villares, S. Blaser, H. C. Liu, and J. Faist, Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser, *Nature*, 492 :229–233, 2012. I.5
- [36] R. Szedlak, C. Schwarzer, T. Zederbauer, H. Detz, A. M. Andrews, W. Schrenk, and G. Strasser, On-chip focusing in the mid-infrared: Demonstrated with ring quantum cascade lasers, *Appl. Phys. Lett*, 104, 2014. I.5
- [37] L. Li, L. Chen, J. Zhu, J. Freeman, P. Dean, A. Valavanis, A. G. Davies, and E. H. Linfield, Terahertz quantum cascade lasers with >1 w output powers, *Electron. Lett.*, 509 :309–311, 2014. I.5

- [38] S. Fatholouloumi, E. Dupont, C. W. I. Chan, Z. R. Wasilewski, S. R. Laframboise, D. Ban, A. Mátyás, C. Jirauschek, Q. Hu, and H. C. Liu, Terahertz quantum cascade lasers operating up to 200 k with optimized oscillator strength and improved injection tunneling, *Optics Express*, 20 :3866–3876, 2012. I.5
- [39] M. Wienold, B. Röben, L. Schrottke, R. Sharma, A. Tahraoui, K. Biermann, and H. T. Grahn, High-temperature, continuous-wave operation of terahertz quantum-cascade lasers with metal-metal waveguides and third-order distributed feedback, *Optics Express*, 22 :3334–3348, 2014. I.5
- [40] A. W. M. Lee, Q. Qina, S. Kumar, B. S. Williams, Q. Hu, and J. L. Reno, High-power and high-temperature thz quantum-cascade lasers based on lens-coupled metal-metal waveguides, *Optics Letter*, 32 :2840–2842, 2007. I.5
- [41] G. Y. Xu, R. Colombelli, S. P. Khanna, A. Belarouci, X. Letartre, L. H. Li, E. H. Linfield, A. G. Davies, H. E. Beere, and D. A. Ritchie, Efficient power extraction in surface-emitting semiconductor lasers using graded photonic heterostructures, *Nature Communications*, 3, 2012. I.5, VI.3.2
- [42] M. Rosch, G. Scalari, M. Beck, and J. Faist, Octave-spanning semiconductor laser, *Nature Photonics*, 9 :42–47, 2014. I.5
- [43] F. Wang, K. Maussang, S. Moundji, R. Colombelli, J. R. Freeman, I. Kundu, L. Li, E. H. Linfield, A. G. Davies, J. Mangeney, J. Tignon, and S. S. Dhillon, Generating ultrafast pulses of light from quantum cascade lasers, *Optica*, 2(11) :944–949, 2015. I.5
- [44] S. Jung, A. Jiang, Y. Jiang, K. Vijayaraghavan, X. Wang, M. Troccoli, and M. A. Belkin, Broadly tunable monolithic room-temperature terahertz quantum cascade laser sources, *Nature Communication*, 5, 2014. I.5
- [45] T. Maiman, Stimulated optical radiation in ruby, *Nature*, 187(4736) :493–494, 1960. II, III
- [46] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, Generation of optical harmonics, *Phys. Rev. Lett.*, 7 :118–119, Aug 1961. II, III
- [47] J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime, *Phys. Rev. Lett.*, 68 :3535–3538, 1992. II, VI.3.2
- [48] P. B. Corkum, Plasma perspective on strong field multiphoton ionization, *Phys. Rev. Lett.*, 71 :1994–1997, 1993. II, III.1, VI.3.2
- [49] M. Joffre, *Optique non-linéaire en régimes continu et femtoseconde*, 2014. II
- [50] A. Yariv, *Optical Electronics in Modern Communications*, Oxford University Press, 1997. II.1.2
- [51] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, Elsevier, 2008. II.1.3, II.2.2
- [52] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, Interactions between light waves in a nonlinear dielectric, *Phys. Rev.*, 127 :1918–1939, 1962. II.1.3

- [53] P. Cavalie, Optique non-linéaire résonante et contrôle de la phase d'émission des lasers à cascade quantique, PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, ENS, 2013. II.4, III.3, IV, IV.3.2
- [54] R. L. Sutherland, *Handbook of nonlinear optics*, Marcel Dekker Inc., 2003. II.1.4
- [55] A. Fiore, V. Berger, E. Rosencher, P. Bravetti, and J. Nagle, Phase matching using an isotropic nonlinear optical material, *Nature*, 391 :463–466, 1998. II.2.1
- [56] M. Savanier, A. Andronico, A. Lemaitre, E. Galopin, C. Manquest, I. Favero, S. Ducci, and G. Leo, Large second-harmonic generation at 1.55 μm in oxidized AlGaAs waveguides, *Opt. Lett.*, 36(15) :2955–2957, 2011. II.2.1
- [57] E. Guillotel, M. Ravaro, F. Ghiglieno, C. Langlois, C. Ricolleau, S. Ducci, I. Favero, and G. Leo, Parametric amplification in GaAs/AlOx waveguide, *Applied Physics Letters*, 94 (17) :171110, 2009. II.2.1
- [58] M. K. Gurnick and T. A. Detemple, Synthetic non-linear semiconductors, *Ieee Journal of Quantum Electronics*, 19(5) :791–794, 1983. II.2.1, II.3.1
- [59] J. Khurgin, Second-order nonlinear effects in asymmetric quantum-well structures, *Physical Review B*, 38(6) :4056, 1988. II.2.1, II.3.1
- [60] C. Sirtori, F. Capasso, J. Faist, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Far-infrared generation by doubly resonant difference frequency mixing in a coupled quantum well two-dimensional electron gas system, *Applied Physics Letters*, 65(4) :445–447, 1994. II.2.1
- [61] E. Rosencher and P. Bois, Model system for optical nonlinearities - asymmetric quantum-wells, *Physical Review B*, 44(20) :11315–11327, 1991. II.3.1
- [62] A. Neogi, Y. Takahashi, and H. Kawaguchi, Interband difference-frequency generation by means of resonant intersubband transitions in asymmetric quantum wells, *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(3) :570–581, 1997. II.3.1
- [63] V. W. Lee and T. K. Gustafson, Three-wave mixing susceptibility of carrier injected AlGaAs asymmetric quantum wells for mid-infrared difference-frequency generation, *Applied Physics Letters*, 66(3) :271–273, 1995. II.3.1
- [64] P. Lautenschlager, M. Garriga, S. Logothetidis, and M. Cardona, Interband critical points of GaAs and their temperature dependence, *Phys. Rev. B*, 35 :9174–9189, 1987. II.3.3, II.10, IV.3.2, IV.4.2, IV.5
- [65] M. Asada, Intraband relaxation time in quantum-well lasers, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 25(9) :2019–2026, 1989. II.3.3
- [66] C. Phillips, M. Y. Su, M. S. Sherwin, J. Ko, and L. Coldren, Generation of first-order terahertz optical sidebands in asymmetric coupled quantum wells, *Applied Physics Letters*, 75(18) :2728–2730, 1999. III.1
- [67] M. Wagner, H. Schneider, S. Winnerl, M. Helm, T. Roch, A. M. Andrews, S. Scharfner, and G. Strasser, Resonant enhancement of second order sideband generation for intraexcitonic transitions in GaAs/AlGaAs multiple quantum wells, *Applied Physics Letters*, 94 (24) :241105, 2009. III.1

- [68] M. S. S. B. Zaks, R. B. Liu, Experimental observation of electron-hole recollisions, *Nature*, 483 :580–583, 2012. III.1, VI.3.2
- [69] H. Banks, B. Zaks, F. Yang, S. Mack, A. C. Gossard, R. Liu, and M. S. Sherwin, Terahertz electron-hole recollisions in GaAs/AlGaAs quantum wells: Robustness to scattering by optical phonons and thermal fluctuations, *Phys. Rev. Lett.*, 111 :267402, 2013. III.1
- [70] B. Zaks, H. Banks, and M. S. Sherwin, High-order sideband generation in bulk gaas, *Applied Physics Letters*, 102(1) :012104, 2013. III.1, VI.3.2
- [71] F. Langer, M. Hohenleutner, C. P. Schmid, C. Poellmann, P. Nagler, T. Korn, C. Schuller, M. S. Sherwin, U. Huttner, J. T. Steiner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, Lightwave-driven quasiparticle collisions on a subcycle timescale, *Nature*, 533 :225–+, 2016. III.1, VI.3.2
- [72] S. G. Carter, V. Ciulin, M. Hanson, A. S. Huntington, C. S. Wang, A. C. Gossard, L. A. Coldren, and M. S. Sherwin, Terahertz-optical mixing in undoped and doped gaas quantum wells: From excitonic to electronic intersubband transitions, *Phys. Rev. B*, 72 :155309, 2005. III.1
- [73] C. Sirtori, F. Capasso, D. Sivco, S. Chu, and A. Cho, Observation of large 2nd-order susceptibility via intersubband transitions at lambda-approximately 10 μm in asymetric coupled AlInAs/GaInAs quantum-wells , *Applied Physics Letters*, 59(18) :2302–2304, Oct 1991. III.1
- [74] N. Owschimikow, C. Gmachl, A. Belyanin, V. Kocharovskiy, D. L. Sivco, R. Colombelli, F. Capasso, and A. Y. Cho, Resonant second-order nonlinear optical processes in quantum cascade lasers, *Phys. Rev. Lett.*, 90 :043902, 2003. III.1
- [75] M. A. Belkin and F. Capasso, New frontiers in quantum cascade lasers: high performance room temperature terahertz sources, *Physica Scripta*, 90, 2015. III.1, III.7
- [76] K. Vijayraghavan, R. W. Adams, A. Vizbaras, M. Jang, C. Grasse, G. Boehm, M. C. Amann, and M. A. Belkin, Terahertz sources based on Čerenkov difference-frequency generation in quantum cascade lasers, *Applied Physics Letters*, 100(25) :251104, 2012. III.1
- [77] C. K. N. Patel, Optical harmonic generation in the infrared using a co₂ laser, *Phys. Rev. Lett.*, 16 :613–616, 1966. IV.4.1, VI.3.2
- [78] J. S. Blakemore, Semiconducting and other major properties of gallium arsenide, *Journal of Applied Physics*, 53(10) :R123–R181, 1982. IV.4.4, IV.5
- [79] T. Aellen, M. Beck, N. Hoyler, M. Giovannini, J. Faist, and E. Gini, Doping in quantum cascade lasers. i. in al-as/ingaas/inp midinfrared devices, *Journal of Applied Physics*, 100, 2006. V.1.3
- [80] A. Babinski, P. Witczak, A. Twardowski, and J. M. Baranowski, Electroluminescence from a forward-biased Schottky barrier diode on modulation Si δ -doped GaAs/InGaAs/AlGaAs heterostructure, *Applied Physics Letters*, 78(25) :3992–3994, 2001. VI.1.3
- [81] C. Flytzanis and J. Ducuing, Second-Order Optical Susceptibilities of III-V Semiconductors, *Phys. Rev.*, 178 :1218–1228, 1969. VI.3.2

- [82] I. C. N. and M. R. W., *Principles and Applications of Nonlinear Optical Materials*, Blackie academic and professional, 1993. VI.3.2
- [83] J. H. McFee, G. D. Boyd, and P. H. Schmidt, Redetermination of the nonlinear optical coefficient of Te and GaAs by comparison with Ag₃SbS₃, *Applied Physics Letters*, 17(2) : 57–59, 1970. VI.3.2
- [84] A. R. Wright, X. G. Xu, J. C. Cao, and C. Zhang, Strong nonlinear optical response of graphene in the terahertz regime, *Applied Physics Letters*, 95(7) :072101, 2009. VI.3.2
- [85] Y. S. Ang, Q. Chen, and C. Zhang, Nonlinear optical response of graphene in terahertz and near-infrared frequency regime, *Frontiers of Optoelectronics*, 8(1) :3–26, 2015. VI.3.2
- [86] E. Hendry, P. J. Hale, J. Moger, A. K. Savchenko, and S. A. Mikhailov, Coherent Nonlinear Optical Response of Graphene, *Phys. Rev. Lett.*, 105 :097401, 2010. VI.3.2
- [87] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff, *Phys. Rev. Lett.*, 70 :1599–1602, 1993. VI.3.2
- [88] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum, Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields, *Phys. Rev. A*, 49 :2117–2132, 1994. VI.3.2
- [89] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal, *Nature Physics*, 7 : 138–141, 2011. VI.3.2
- [90] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical bloch oscillations, *Nature Photonics*, 8 :119–123, 2014. VI.3.2
- [91] R. Liu and B. Zhu, High-order thz-sideband generation in semiconductors, *AIP Conference Proceedings*, 893(1) :1455–1456, 2007. VI.3.2
- [92] J. A. Crosse and R.-B. Liu, Quantum-coherence-induced second plateau in high-sideband generation, *Phys. Rev. B*, 89 :121202, 2014. VI.3.2
- [93] J. A. Crosse, X. D. Xu, M. S. Sherwin, and R. B. Liu, Theory of low-power ultra-broadband terahertz sideband generation in bi-layer graphene, *Nature Communications*, 5(4854), 2014. VI.3.2

Sujet : Optique non-linéaire résonante dans les lasers à cascade quantique

Résumé :

Les lasers à cascade quantiques (LCQ) sont des sources puissantes de rayonnement térahertz (THz) et moyen infrarouge (MIR). Elles reposent sur une transition intersousbande i.e. une transition entre des niveaux électroniques confinés dans la bande de conduction des nanostructures semiconductrices constituant le LCQ. Le développement de ces sources contribue à cette région du spectre électromagnétique difficile d'accès et ouvre la voie vers de multiples applications.

Ce travail de thèse présente une étude fondamentale de l'optique non-linéaire résonante dans les LCQ. La génération de mélange de fréquences entre un LCQ THz ou MIR et un faisceau proche infrarouge (NIR) est démontrée dans la cavité même du LCQ. Les non-linéarités des puits quantiques constituant la zone active du LCQ sont exaltées grâce à une excitation NIR résonante avec les transitions interbandes et grâce au photon du LCQ résonant avec les transitions intersousbandes de la structure. Ces excitations résonantes entraînent une forte exaltation de la susceptibilité non-linéaire, permettant une interaction efficace sans considération pour l'accord de phase. De précédentes études limitées aux températures cryogéniques, ont mis en évidence le mélange d'ondes résonant entre un LCQ THz basé sur GaAs et un faisceau NIR à 800 nm.

Le travail novateur de cette thèse montre que le mélange d'ondes résonant dans les LCQ peut être étendu à la gamme des LCQ MIR et à des excitations de pompe dans le domaine télécom, à température ambiante. De plus, les limites liées à l'absorption sous excitation résonante ont été en partie dépassées.

Ce manuscrit présente tout d'abord, les premières démonstrations de génération de mélange de fréquences dans un LCQ MIR basé sur GaAs, jusqu'à température ambiante. Ces développements permettent d'étendre le concept aux LCQ basés sur InP, qui offrent de meilleures performances dans le MIR à température ambiante et qui ont une transition interbande dans la gamme télécom. Grâce à l'optimisation de ces structures et du dispositif expérimental, la génération de mélange d'ondes dans des LCQ THz et MIR basés sur InP sous excitation résonante dans la gamme télécom a été démontrée. Bien que les interactions non-linéaires aient été clairement mises en évidence, ces résultats très prometteurs sont limités à une plage de longueurs d'onde accessible restreinte par l'absorption sous excitation résonante. Pour dépasser ces limites, une nouvelle géométrie, mettant en œuvre une excitation en réflexion par la surface du LCQ, a été proposée et réalisée. Grâce à cette géométrie, le mélange d'ondes dans les LCQ a été démontré sur une plage de longueurs d'onde bien plus large, permettant de réduire significativement les effets d'absorption.

Ces démonstrations expérimentales sont appuyées par un formalisme théorique de la susceptibilité non-linéaire. Ce dernier, en bon accord avec les résultats expérimentaux, a permis une meilleure compréhension des phénomènes résonants impliqués. Par exemple, nous avons mis en évidence un possible phénomène important d'interférences destructives de la susceptibilité non-linéaire, entre les différentes transitions impliquées dans le mélange de fréquences.

Ce travail a permis une compréhension approfondie des non-linéarités interbandes et intersousbandes résonantes dans les LCQ, ouvrant la voie vers des applications potentielles au décalage de longueurs d'ondes tout-optique pour les télécommunications et à la conversion des photons THz et MIR vers la gamme NIR, technologiquement bien plus mature.