



HAL
open science

Exaltation d'effets non linéaires dans des métasurfaces à multi-résonances accordées

Léna Soun

► **To cite this version:**

Léna Soun. Exaltation d'effets non linéaires dans des métasurfaces à multi-résonances accordées. Optique / photonique. Institut Polytechnique de Paris, 2020. Français. NNT : 2020IPPAX066 . tel-03086050

HAL Id: tel-03086050

<https://theses.hal.science/tel-03086050>

Submitted on 22 Dec 2020

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.



INSTITUT
POLYTECHNIQUE
DE PARIS

NNT : 2020IPPAX066

Thèse de doctorat



Exaltation d'effets non linéaires dans des métasurfaces à multi-résonances accordées

Thèse de doctorat de l'Institut Polytechnique de Paris
préparée à l'École Polytechnique

École doctorale n°626 Ecole Doctorale de l'Institut Polytechnique de Paris (ED IPP)
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 26/11/2020, par

LÉNA SOUN

Composition du Jury :

Jean-François Roch Professeur, ENS Paris-Saclay, Université Paris-Saclay (LuMIn)	Président
Sara Ducci Professeure, Université de Paris (MPQ)	Rapporteur
Yannick Dumeige Maître de conférences, Université de Rennes (Institut Foton)	Rapporteur
Anne-Laure Fehrembach Maître de conférence, Université Aix-Marseille (Institut Fresnel)	Examineur
Riad Haïdar Directeur de Recherche, ONERA, Université Paris-Saclay (DSG)	Directeur de thèse
Patrick Bouchon Maître de recherches, ONERA, Université Paris-Saclay (DOTA)	Co-directeur de thèse

Remerciements

Je suis arrivée à l'ONERA pour mon stage de fin d'études, dans une équipe déjà très animée et adepte des jeux du midi. J'y ai vu Mathilde et Antoine soutenir brillamment leurs thèses, ce qui a confirmé mon envie de faire la mienne dans cette équipe.

Puis ça a été au tour de Baptiste de soutenir sa thèse. Par chance, Baptiste, tu es resté dans l'équipe, et j'ai pu profiter de toute ton expertise pour les manips ("Tant qu'il y a des erreurs d'alignement, il y a de l'espoir!"). Je te remercie pour ton implication dans ma thèse qui est allée bien au-delà des problématiques expérimentales, et je suis contente que tu sois dans l'encadrement de la thèse de Tomasz, où je suis sûre que tu seras d'une aide précieuse.

En parlant d'encadrement : Patrick, je te remercie pour toutes ces heures à m'aider et faire avancer ma thèse. Les discussions avec toi sont toujours très agréables, tant pour le foisonnement de pistes à explorer que sur le plan humain. Tu es bienveillant et à l'écoute en toutes circonstances, toujours avec ton d'humour légendaire.

Je remercie également Riad pour les discussions scientifiques très intéressantes et son enthousiasme constant, et Julien et Hasnaa pour leur aide précieuse.

Je remercie mes co-bureau Eslam et Clément, qui égalaient les journées de leurs vocalises, discussions farfelues et multiples infusions. Merci également pour vos soutiens et assurances en séances d'escalade.

Pendant ma thèse j'ai pu côtoyer les personnalités uniques qui peuplent le J3 : Il y a d'abord l'infatigable Mouton (le couloir résonne encore de tes "Guingamp!"), qu'on ne peut pas dissocier du grand Mighty Micke Boher (objet de la création d'une nouvelle religion). Puis Maxence (le backup!), avec qui j'ai amélioré mon acuité visuelle dans le noir en salle laser. Je ne peux pas oublier Alice : mention spéciale à - la plupart du temps - seule autre fille de l'équipe, pour les rôles essentiels que t'as endossés, je ne citerais ici que bonnet jaune à Budapest et gérante du calendrier de l'avant. Puis l'étrange Cyprien (fais attention à la FLIR quand même :)), Denis, Arthur, Grégory, Ludivine, Claire, Loubnan, Laura, Wesley, Raoul ...

Il y a certaines traditions dans l'équipe, dont la raclette, le calendrier de l'avant, les pots, les jeux... Merci pour ces folles parties de galrapagos, de papayoo et tant d'autres. Je n'oublie pas bien sûr les soirées au Shamrock et les week-ends à la découverte des cultures hongroises et belges.

Je remercie aussi les membres de l'équipe côté D1 : d'abord les permanents qui m'ont apporté leur aide, en particulier Sophie Derelle, et les doctorants pour les afterworks des "doctorants de l'espace".

Tomasz, je t'ai légué une manip pas forcément des plus évidentes et un échantillon légèrement "accidenté", mais surtout plein de pistes très prometteuses à explorer. J'espère que tu t'amusera bien avec tout ça, en tous cas t'as l'air d'avoir bien commencé.

Pendant cette thèse j'ai eu la chance d'habiter avec de formidables colocs dans le Manoir, aka la Maison du Chèvre. Merci pour le partage de nos différentes expériences de thèse, notre complicité culinaire à base de fromage et de beaucoup de miel, et les soirées avec notre squatteuse préférée.

Merci également à mes amis PSiens, en particulier aux membres de l'ancien rituel du lundi pour ces super moments tout au long de ces trois années.

Enfin je remercie ma famille, pour votre soutien durant toute la thèse, même si vous ne compreniez pas tout ce que je faisais! Je vous remercie pour ces magnifiques vacances en famille élargie qu'on a passées cet été, salutaires entre la rédaction et la soutenance confinées. La soutenance en visio a des inconvénients évidents, mais cela a permis à certains qui n'auraient pas forcément pu se déplacer à Palaiseau un jeudi après-midi de pouvoir y assister. Merci pour votre présence et vos encouragements.

C'est dans le contexte très particulier de l'année 2020 que ma thèse s'est terminée. J'ai rédigé la quasi-totalité de ce présent manuscrit pendant le premier confinement et la soutenance s'est déroulée pendant le deuxième confinement, en comité très restreint (mais de qualité!). Les festivités se sont également faites en comité restreint, à grand renfort de fromage.

Table des matières

Remerciements	i
Introduction	1
I Démarche et outils de simulations	3
1 Enjeux de l'optique non linéaire dans les nanostructures	5
1.1 L'optique non linéaire	5
1.2 Génération de nouvelles sources	5
1.3 La nanostructuration	7
1.4 Confiner le champ électrique	8
2 Concepts pour la génération d'effets non linéaires dans des métasurfaces	11
2.1 Formalisme de l'optique non linéaire	11
2.1.1 Origine de l'optique non linéaire	11
2.1.2 Effets non linéaires d'ordre 2	13
2.1.3 Polarisation non linéaire et matériaux $\chi^{(2)}$	15
2.1.4 Effets non linéaires d'ordre 3	17
2.2 Les métasurfaces exaltant les effets non linéaires	18
2.3 Proposition d'une démarche de conception de métasurfaces exaltant les effets non linéaires	22
2.3.1 Création de la polarisation non linéaire	22
2.3.2 Extraction du champ généré	22
2.3.3 Effet de la focalisation	23
3 Outils de simulations	25
3.1 BMM linéaire	26
3.1.1 Calcul des modes dans chaque couche	26
3.1.2 Propagation dans la structure	27
3.2 BMM non linéaire	28
3.2.1 Calcul du champ généré	28
3.2.2 Évaluation du code	31

II Résonateur guide d'onde avec GaAs	35
4 Conception d'un résonateur pour la SHG et DFG	37
4.1 Présentation du résonateur guide d'onde et démarche	38
4.2 Les différents phénomènes de résonances	40
4.2.1 Résonance Fabry Perot verticale	40
4.2.2 Résonance Fabry Perot horizontale	41
4.2.3 Résonance de modes guidés	43
4.2.4 Résonateur multirésonant	44
4.3 Génération de DFG	45
4.3.1 Comportement linéaire	45
4.3.2 Génération de la polarisation non linéaire	47
4.3.3 Extraction du champ généré	48
4.3.4 Efficacité non linéaire	50
4.3.5 Tolérances de dimensionnement	51
4.4 Résonateur guide d'onde multibarreaux	52
4.4.1 La résonance de nano-Fabry Perot couplés	53
4.4.2 Génération de DFG	54
4.4.3 Génération de SHG	55
4.5 Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre	56
5 Démonstration expérimentale	59
5.1 Conception de l'échantillon	59
5.2 Fabrication de l'échantillon	60
5.2.1 Procédé de fabrication	61
5.2.2 Caractérisation de la couche reportée seule	61
5.3 Caractérisation	63
5.3.1 Caractérisation linéaire de l'échantillon	63
5.3.2 Caractérisation de la SHG	68
5.3.3 Caractérisation de la DFG	73
III Nouvelles structures et matériaux	77
6 Le résonateur de Helmholtz	79
6.1 La résonance de Helmholtz	79
6.1.1 Exaltation du champ électrique	80
6.1.2 Modèle LC du résonateur	80
6.2 Résonateur double cavité pour la SHG	82
6.2.1 Possibilités d'architecture double cavité	82
6.2.2 Double cavité latérale	83
6.2.3 Génération de SHG	84
7 Résonateur guide d'onde avec d'autres matériaux	87
7.1 Résonateur guide d'onde avec GaN	87
7.1.1 Configuration zzz	88
7.1.2 Configuration xxz	88
7.1.3 Configuration yyz	89
7.2 Génération de THz	90
7.2.1 Résonateur guide d'onde classique	90
7.2.2 Résonateur guide d'onde tout semiconducteur	91
7.3 Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre	93

7.4	Guide d'onde 2D	95
7.5	Génération de troisième harmonique	97
	Conclusion	99
	Annexes	101
A	Synthèse des propriétés des structures présentées dans le manuscrit	103
B	Guide d'onde ENZ	105
	Bibliographie	107

Introduction

La thèse s'est déroulée à l'ONERA, dans l'équipe CIO (Composants et Instruments Optroniques) du département DOTA (Optique et Techniques Associées). Depuis plusieurs années, l'équipe innove dans la conception et la caractérisation de composants optroniques, notamment en développant des composants nanostructurés. Ces dispositifs, appelés métasurfaces, sont généralement composés de métal et de diélectrique, structurés à l'échelle sub-longueur d'onde. Cela donne des propriétés intéressantes, comme le filtrage spectral,¹ la création de nouvelles fonctions optiques,² ou le confinement optique³ ou thermique.⁴

Objectifs et enjeux de mon travail de thèse

L'objectif de la thèse est d'utiliser le savoir-faire de l'équipe dans le domaine des nanoantennes, que l'on est capable de dimensionner pour exalter le champ électrique à la longueur d'onde désirée, pour l'appliquer à l'optique non linéaire. En effet, les effets d'optique non linéaire sont des phénomènes apparaissant à des puissances élevées, et qui dépendent des puissances du champ électrique incident. De fait, si l'on introduit un cristal non linéaire dans une nanoantenne, on peut d'autant plus générer des effets non linéaires que le champ incident est exalté. De plus, les effets non linéaires d'ordre 2 permettent différents processus de conversion de fréquence. Cela permettrait de créer de nouvelles sources pour la spectroscopie en bande 2 et 3, voire en THz.

Cette approche a été initiée par Sébastien Héron dans sa thèse,⁵ dont j'ai pris la suite. Ce dernier a développé un module non linéaire d'ordre 2 pour la méthode de simulations modale B-spline, créée dans l'équipe. Pendant ma thèse, j'y ai ajouté le calcul de la polarisation non linéaire orthogonale à la structure. Cela m'a permis de simuler des structures exaltant cette polarisation, promettant de très bonnes efficacités.

¹Emilie SAKAT, Grégory VINCENT, Petru GHENUCHE, Nathalie BARDOU, Stéphane COLLIN, Fabrice PARDO, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAIDAR. « Guided mode resonance in subwavelength metallodielectric free-standing grating for bandpass filtering ». *Optics Letters* 36.16 (2011), p. 3054-3056.

²Charlie KOEHLIN, Patrick BOUCHON, Fabrice PARDO, Julien JAECK, Xavier LAFOSSE, Jean-Luc. PELOUARD et Riad HAIDAR. « Photon sorting in plasmonic multiresonators ». *Applied Physics Letters* 99 (2011), p. 241104; Quentin LÉVESQUE, Mathilde MAKHSIYAN, Patrick BOUCHON, Fabrice PARDO, Julien JAECK, Nathalie BARDOU, Christophe DUPUIS, Riad HAIDAR et Jean-Luc PELOUARD. « Plasmonic planar antenna for wideband and efficient linear polarization conversion ». *Applied Physics Letters* 104.11 (2014), p. 111105.

³Paul CHEVALIER, Patrick BOUCHON, Riad HAIDAR et Fabrice PARDO. « Optical helmholtz resonators ». *Applied Physics Letters* 105.7 (2014), p. 071110.

⁴Mathilde MAKHSIYAN, Patrick BOUCHON, Julien JAECK, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAIDAR. « Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit ». *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251103.

⁵Sébastien HÉRON. « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ». Thèse de doct. Université Paris-Saclay, 2016.

Le travail de thèse comporte toutes les étapes dans la création de tels dispositifs. Cela commence par la simulation de la réponse optique de la nanoantenne. Cette étape est cruciale car elle permet de concevoir un dispositif ayant plusieurs résonances dans le spectre de réflectivité. En effet, il est nécessaire d'exalter le champ électrique à toutes les longueurs d'onde en jeu dans le processus non linéaire.

Une fois la nanoantenne conçue, on dimensionne un échantillon qui sera fabriqué dans la salle blanche du C2N à Marcoussis.

Une fois l'échantillon réalisé, la caractérisation se déroule à l'ONERA. Cela consiste d'abord à vérifier les propriétés résonantes de l'échantillon, puis de réaliser un montage optique pour la caractérisation non linéaire.

Toutes ces étapes ont été réalisées pour un résonateur de type guide d'onde. Ce résonateur est composé d'un miroir d'or, d'une couche d'arséniure de gallium (GaAs), et d'un réseau de barreaux d'or. C'est sur ce résonateur que j'ai étudié les phénomènes physiques en jeu dans le processus non linéaire, et établi des règles de conception. Notamment, la génération non linéaire dans les métasurfaces se fait en deux étapes. D'abord, la polarisation non linéaire est créée à partir des champs pompes exaltés dans la structure, puis le champ généré doit être extrait de la structure. Ces deux étapes peuvent être optimisées en jouant sur les paramètres de la structure. L'efficacité du résonateur guide d'onde obtenue en simulations en différence de fréquence est de $0.1W/W^2$. Un échantillon a été conçu et fabriqué pour démontrer la génération de second harmonique (SHG) et de différence de fréquence (DFG). La caractérisation a permis de valider les propriétés résonantes de l'échantillon et de démontrer la génération de SHG.

En parallèle, j'ai réalisé des simulations sur d'autres structures, comme le résonateur de Helmholtz, qui permet d'exalter le champ électrique d'un facteur surpassant toutes les autres structures étudiées ici. Je me suis également intéressée à d'autres matériaux comme le GaN, dont les propriétés du cristal sont avantageuses pour le non linéaire. J'ai également conçu des structures générant dans le THz, l'une d'elle utilisant un semi-conducteur dopé à la place d'un miroir métallique, simplifiant le process de fabrication.

Plan du manuscrit

La première partie du manuscrit décrit la démarche de mon travail de thèse. Tout d'abord, le chapitre 1 décrit l'apport des nanostructures pour la génération d'effets non linéaires et les enjeux pour la création de nouvelles sources. Ensuite, nous nous intéresserons dans le chapitre 2 à l'optique non linéaire, et plus particulièrement aux effets d'ordre 2 ainsi qu'aux matériaux associés. J'y présenterai ensuite un état de l'art des nanoantennes non linéaires, puis ma démarche pour obtenir un dispositif résonant efficace. Enfin, le chapitre 3 est consacré à la méthode de simulations numériques que j'ai utilisée, nommée BMM, et à laquelle j'ai ajouté le calcul d'une polarisation non linéaire orthogonale à la structure.

La deuxième partie est consacrée à la nanoantenne nommée résonateur guide d'onde. Le chapitre 4 décrit les propriétés résonantes du résonateur, les étapes du processus de génération y ayant lieu, et les simulations réalisées. Nous verrons également une variante multibarreaux, qui permet d'améliorer un type de résonance, par couplage des cavités créées par deux barreaux de tailles différentes. Le chapitre 5 est consacré à la démonstration expérimentale des propriétés de ce résonateur. Il est composé de la description et la fabrication de l'échantillon, puis de la caractérisation. Celle-ci se divise en deux parties : d'abord la validation des propriétés résonantes par une caractérisation linéaire, puis le montage optique réalisé pour la SHG et la DFG.

La troisième partie est consacrée à l'étude de nouvelles structures et matériaux, dans le but d'améliorer la génération non linéaire. La structure présentée dans le chapitre 6 est le résonateur de Helmholtz optique. Nous verrons ensuite dans le chapitre 7 des variantes du résonateur guide d'onde, d'abord avec un matériau différent (le nitrure de gallium), puis adapté à la génération de THz, et enfin étendu à la structuration 2D.

Première partie

Démarche et outils de simulations

L'objectif de cette première partie est de décrire les enjeux de l'optique non linéaire dans les nanostructures, et la démarche de mon travail de thèse. Ainsi nous allons voir les concepts fondamentaux à l'oeuvre dans ce travail, à savoir les nanoantennes et l'optique non linéaire. Puis je décrirai les règles de conception que j'ai établies pour réaliser une nanoantenne générant efficacement des effets non linéaires. Enfin, nous verrons la méthode de simulations numériques que j'ai utilisée pendant ma thèse, ainsi que les ajouts que j'y ai apportés.

Chapitre

1

Enjeux de l'optique non linéaire dans les nanostructures

Sommaire

1.1 L'optique non linéaire	5
1.2 Génération de nouvelles sources	5
1.3 La nanostructuration	7
1.4 Confiner le champ électrique	8

Ce premier chapitre a pour objectif de détailler la démarche de mon travail de thèse. Je vais commencer par évoquer les enjeux de l'optique non linéaire pour la création de nouvelles sources, puis je vais présenter l'apport des nanostructures dans ce domaine.

1.1 L'optique non linéaire

La première observation d'effets non linéaires a été réalisée en 1941 par G.N. Lewis *et al.*¹ qui a mis en évidence des effets de saturation de la luminescence dans des molécules de colorants. Par la suite, la création du premier laser par Maiman en 1960 a facilité la découverte de la plupart des effets non linéaires, qui nécessitent des fortes puissances pour être observés. La première démonstration de génération de second harmonique a été réalisée par Franken *et al* en 1961.² Dans cette expérience, l'équipe a focalisé un laser rubis à 694 nm sur du quartz, et analysé le signal avec un spectromètre. Ils ont observé un faible signal dans l'ultra violet, à 347 nm, tellement faible qu'il n'apparait même pas dans l'article publié sur l'expérience. D'autres effets non linéaires ont été observés par la suite, et la description théorique a été réalisée par Bloembergen.³

L'optique non linéaire peut être illustrée par l'équation suivante, qui exprime la réponse du milieu à une onde incidente :

$$P(t) = \epsilon_0[\chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E(t)^2 + \chi^{(3)}E(t)^3 + \dots] \quad (1.1)$$

avec P la polarisation, ϵ_0 la permittivité du vide, χ la susceptibilité, et E le champ électrique.

Contrairement à l'optique linéaire (représentée par le premier terme de l'équation), l'optique non linéaire se caractérise par une polarisation qui dépend non linéairement du champ électrique (termes en $E(t)^n$). De plus, elle regroupe tous les effets qui permettent la conversion de fréquence, qui est impossible en optique linéaire. Par exemple, les effets d'ordre 2 autorisent la somme et la différence de fréquences.

1.2 Génération de nouvelles sources

Ces effets ouvrent donc le champ des possibilités pour créer des sources à la longueur d'onde voulue, ce qui est moins évident avec un laser. En effet, la longueur d'onde d'émission d'un laser dépend du matériau du milieu de gain et de la cavité. Les effets non linéaires ont ainsi permis la réalisation de sources accordables, comme les OPO (Oscillateur Paramétrique Optique), qui réalisent de la différence de fréquence.

¹Gilbert N LEWIS, David LIPKIN et Theodore T MAGEL. « Reversible photochemical processes in rigid media. A study of the phosphorescent state ». *Journal of the American Chemical Society* 63.11 (1941), p. 3005-3018.

²Peter FRANKEN, Alan E HILL, CW PETERS et Gabriel WEINREICH. « Generation of optical harmonics ». *Physical Review Letters* 7.4 (1961), p. 118.

³J. A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING et Peter S. PERSHAN. « Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric ». *Physical Review* 127 (6 sept. 1962), p. 1918-1939. DOI : [10.1103/PhysRev.127.1918](https://doi.org/10.1103/PhysRev.127.1918).

Créer des sources à de nouvelles longueurs d'onde a un intérêt pour la spectroscopie. La figure 1.1(a) présente le spectre de transmission atmosphérique. On distingue deux bandes de transmission : la bande 2 (ou MWIR, mid-wave Infrared) entre 3 et 5 μm , et la bande 3 (ou LWIR, long-wave infrared) entre 8 et 14 μm . La figure 1.1(b) montre les longueurs d'onde de détection de molécules dans l'infrarouge. Il est important d'avoir des sources dans les bandes de transmission de l'atmosphère pour pouvoir détecter ces molécules.

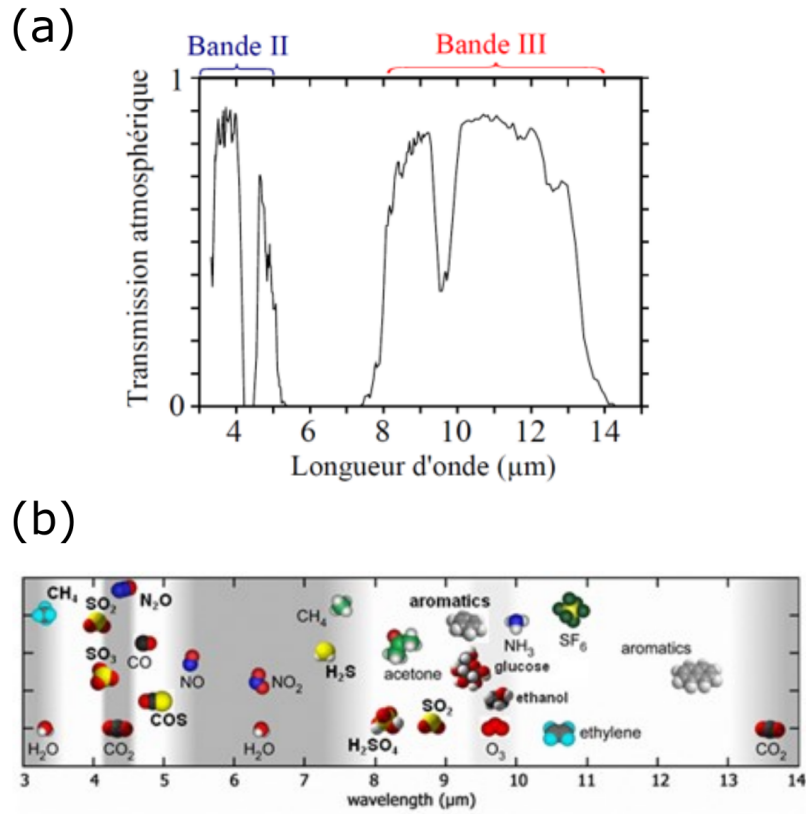


FIGURE 1.1 – (a) Spectre de transmission de l'atmosphère, (b) Spectre rovibrationnel de quelques molécules

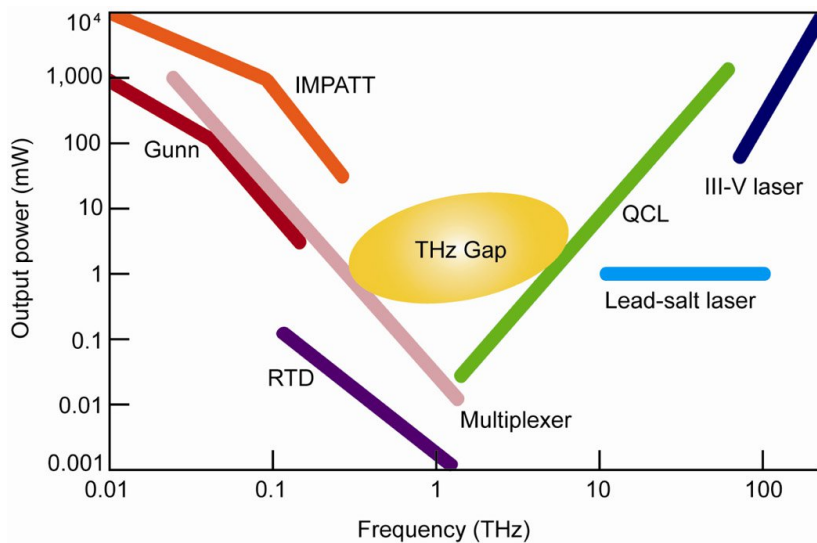


FIGURE 1.2 – Puissance des sources THz en fonction de leur fréquence d'émission

La figure 1.2 présente les puissances émises par les différentes sources THz sur le marché, en fonction

de leur fréquence d'émission.⁴ On voit que la puissance s'effondre (jusqu'à 5 ordres de grandeur) lorsque l'on s'approche de 1 THz (300 μm). C'est un vrai problème pour l'étude de cette gamme de fréquences, et les effets non linéaires sont une piste pour y remédier.

1.3 La nanostructuration

Ces dernières décennies, de nombreuses avancées ont été faites dans le domaine de la nanostructuration. En effet, structurer la matière à l'échelle sub-longueur d'onde amène à de toutes nouvelles propriétés de la matière. En 1968, Victor Veselago a démontré théoriquement la possibilité d'avoir une permittivité et une perméabilité négatives dans des métamatériaux.⁵ En 1990, John Pendry a proposé un arrangement de fils métalliques et résonateurs de type "split ring" donnant cette propriété.⁶ Les matériaux à permittivité et perméabilité négatives permettent d'envisager des applications stupéfiantes comme la super lentille (qui dépasse la limite de diffraction) ou la cape d'invisibilité⁷ (voir la figure 1.3(a)).

La nanostructuration permet également de contrôler la phase, à la manière de la lentille de Fresnel : des fonctions optiques nécessitant un matériau volumique (comme une lentille) peuvent être réalisées grâce à un arrangement plan de nanostructures qui recrée la fonction de phase, comme sur la figure 1.3(b) où l'on voit une lentille axicon "plan".⁸ On peut également les utiliser pour contrôler la polarisation.⁹ De plus, elles permettent une émission dans une bande étroite, ce qui est un avantage pour les capteurs, qui généralement font appel à un corps noir dont ils n'utilisent qu'une très faible portion du spectre.

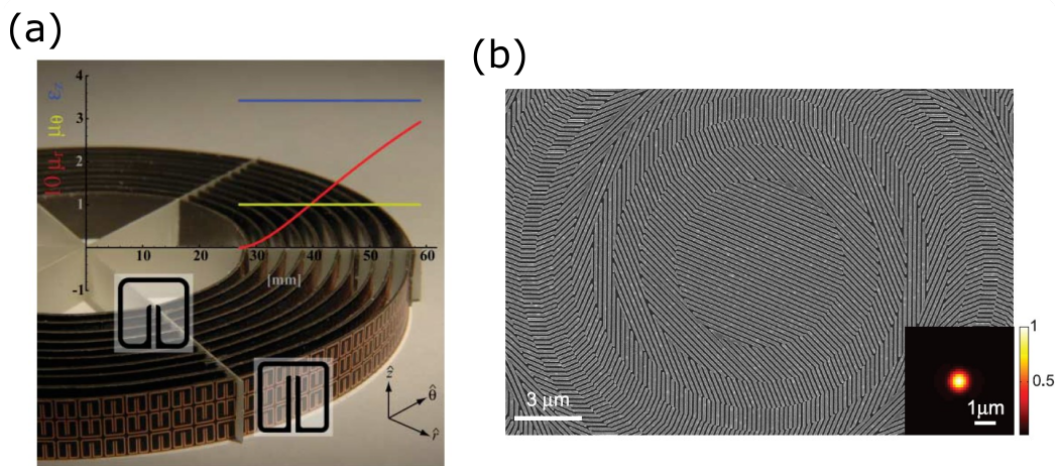


FIGURE 1.3 – (a) Dispositif de "cape d'invisibilité" composé de résonateurs split-ring pour les micro-ondes, la perméabilité μ_r tracée en rouge atteint zéro, (b) Image MEB d'un ensemble de bâtonnets en silicium polycristallin, recréant la fonction de phase d'un axicon.

La nanostructuration permet également de créer des nanoantennes, qui ont les mêmes propriétés que les antennes classiques pour les ondes radio, notamment concernant le confinement du champ électromagnétique. Réaliser une antenne pour l'infrarouge représente cependant un défi technologique, car la longueur d'onde de travail est beaucoup plus petite (au moins 4 ordres de grandeur). Cela implique de réaliser des composants structurés de l'ordre du micromètre. La fabrication de tels dispositifs est donc réalisée

⁴Jerome V MOLONEY, Joe M YARBOROUGH, Mahmoud FALLAHI, Maik SCHELLER, Stephan W KOCH et Martin KOCH. « Compact, high-power, room-temperature, narrow-line terahertz source ». *SPIE Newsroom* (2011), p. 2-4.

⁵Victor GEORGIEVICH VESELAGO. « The Electrodynamics of Substances with Simultaneously Negative Values of ϵ and μ ». *Physics-Uspekhi* 10.4 (1968), p. 509-514.

⁶John B PENDRY, AJ HOLDEN, WJ STEWART et I YOUNGS. « Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures ». *Physical review letters* 76.25 (1996), p. 4773.

⁷David SCHURIG, Jack J MOCK, BJ JUSTICE, Steven A CUMMER, John B PENDRY, Anthony F STARR et David R SMITH. « Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies ». *Science* 314.5801 (2006), p. 977-980.

⁸Dianmin LIN, Pengyu FAN, Erez HASMAN et Mark L BRONGERSMA. « Dielectric gradient metasurface optical elements ». *Science* 345.6194 (2014), p. 298-302.

⁹Ze'ev BOMZON, Vladimir KLEINER et Erez HASMAN. « Pancharatnam-Berry phase in space-variant polarization-state manipulations with subwavelength gratings ». *Optics letters* 26.18 (2001), p. 1424-1426.

en salle blanche, et utilise des procédés technologiques comme l'épitaxie, la lithographie optique et électronique, la gravure chimique ... La visualisation des échantillons réalisés est également complexe, car un microscope optique classique, limité par la diffraction, ne permet généralement pas d'observer les motifs micrométriques réalisés. Il est donc nécessaire d'utiliser des technologies comme le microscope électronique à balayage (MEB) ou le microscope à force atomique (AFM). Malgré toutes ces contraintes, l'étude des nanoantennes est prometteuse, car elles ont des propriétés intéressantes dans beaucoup de domaines, comme la spectroscopie, l'émission thermique, ou l'exaltation des effets non linéaires.

1.4 Confiner le champ électrique

Une propriété particulièrement intéressante des nanoantennes est le confinement extrême de champ électrique qui peut être réalisé avec de tels dispositifs, comme on peut le voir sur la figure 1.4, où plusieurs manières d'exalter le champ électrique sont présentées.

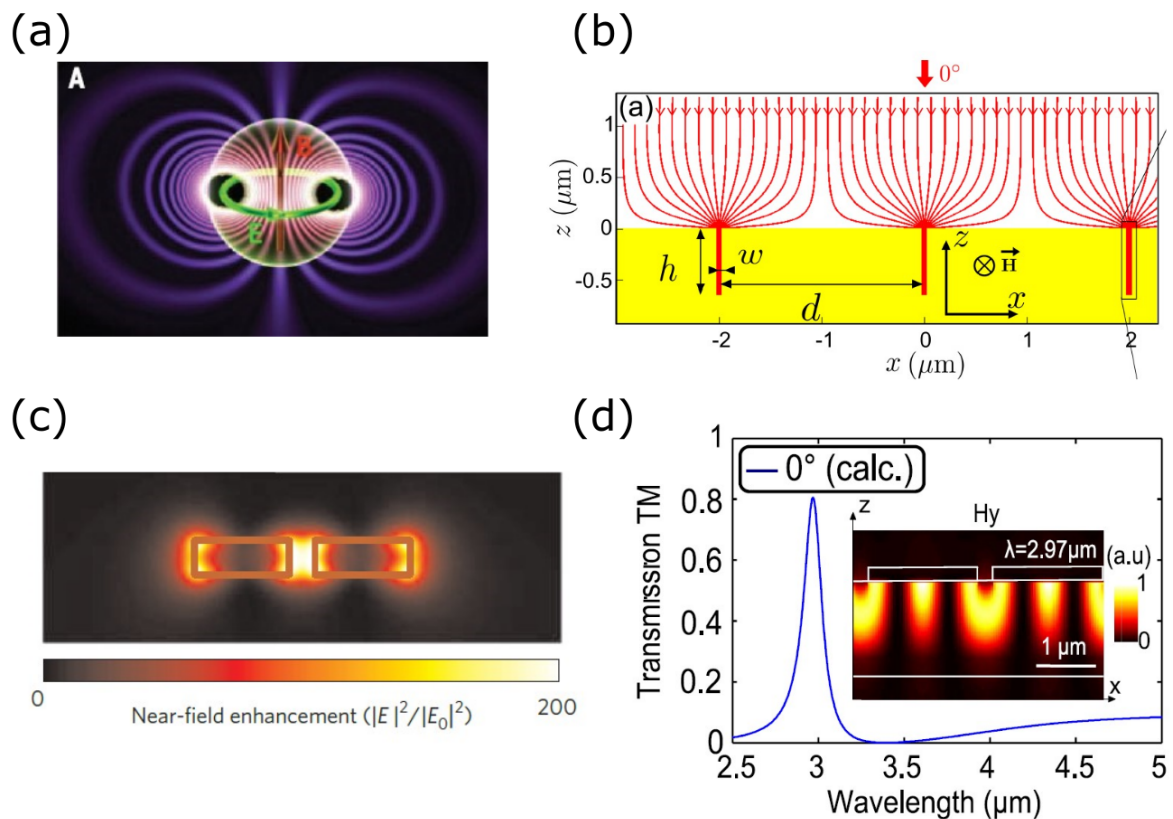


FIGURE 1.4 – Exemples de dispositifs exaltant le champ électrique : (a) Nanoparticule diélectrique à résonances de Mie, (b) Effet entonnoir représenté par les flux de Poynting dans une fente très fine creusée dans de l'or ($w = 56 \text{ nm}$ et $h = 2 \mu\text{m}$), (c) Carte du champ électrique exalté par une nanoantenne plasmonique, (d) Résonateur à modes guidés en transmission : spectre de transmission TM et carte du champ magnétique.

Tout d'abord, on peut exalter le champ électrique et magnétique grâce à des nanoparticules. La figure 1.4(a) présente une nanoparticule diélectrique, qui exalte le champ grâce à des résonances de Mie.¹⁰

On peut également utiliser des dispositifs métalliques nanostructurés, comme exposé sur la figure 1.4(b). Des fentes très fines ont été gravées dans le métal, ce qui a pour effet de confiner le champ électrique à l'intérieur de la fente.¹¹ La figure montre les flux de Poynting se concentrant dans les fentes.

¹⁰Arseniy I KUZNETSOV, Andrey E MIROSHNICHENKO, Mark L BRONGERSMA, Yuri S KIVSHAR et Boris LUK'YANCHUK. « Optically resonant dielectric nanostructures ». *Science* 354.6314 (2016).

¹¹Fabrice PARDO, Patrick BOUCHON, Riad HAIDAR et Jean-Luc PELOUARD. « Light funneling mechanism explained by magnetoelectric interference ». *Physical review letters* 107.9 (2011), p. 093902.

Une autre manière d'exalter le champ électrique est d'exploiter les plasmons de surface. En effet, une onde incidente sur une couche métallique sub-longueur d'onde peut générer une onde stationnaire d'électrons libres à la surface du métal. Ces électrons excités optiquement sont appelés plasmons polaritons de surface (SPP). Cela a pour effet de modifier localement l'indice optique. La figure 1.4(c) présente une nanoantenne plasmonique qui concentre le champ sur les côtés des barreaux.¹²

Enfin, on peut associer métal et diélectrique pour réaliser un dispositif guide d'onde, composé d'un réseau métallique servant à injecter une onde incidente ayant le bon angle pour se propager par réflexions totales dans la couche diélectrique.¹³

Un confinement extrême est accompagné de résonances dans le spectre de réflectivité de la nanoantenne. Cette dernière présente ainsi une absorption à une ou plusieurs longueurs d'onde précises. Cela peut être dû à des résonances de type Fabry Perot, qui se forment dans la nanoantenne qui agit comme une cavité, délimitée par un diélectrique ou un métal. D'autres phénomènes de résonances sont possibles dans les nanoantennes, comme les résonances de modes guidés, où la nanoantenne se comporte comme un guide d'onde. De plus, ces résonances peuvent être ajustées en longueurs d'onde et en intensité en jouant sur les paramètres géométriques de la structure. En effet, la figure 1.5(a) présente une structure métal-isolant-métal qui présente une résonance plasmonique dépendant de la largeur des barreaux d'or.

On peut donc associer des nanoantennes de tailles différentes, soit pour former un continuum sur une gamme donnée, soit pour créer des résonances distinctes, qui peuvent être différenciées par la polarisation.

On peut également réaliser des pixels répondant chacun à une longueur d'onde différente (voir Fig. 1.5(b)).¹⁴

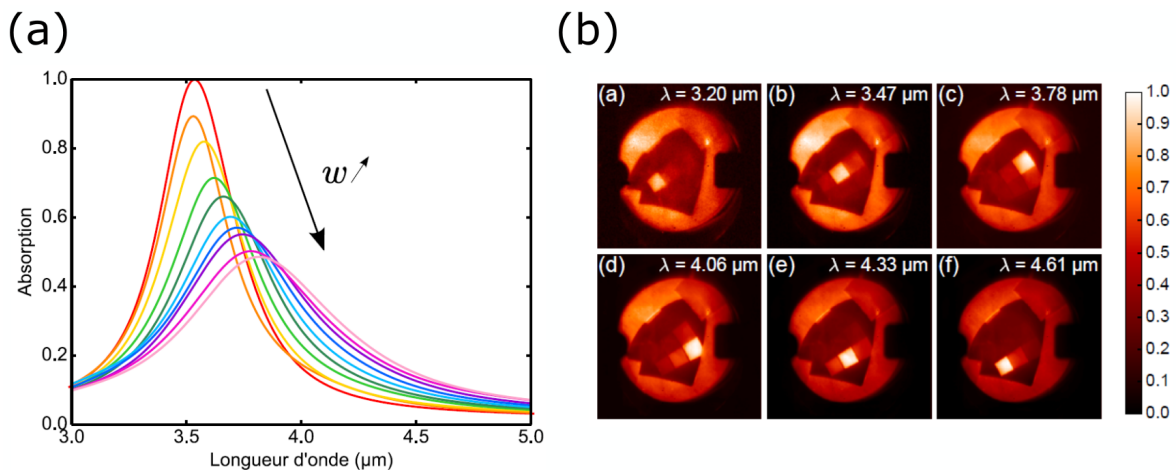


FIGURE 1.5 – Métasurface comportant un réseau de barreaux d'or sur une couche de SiO_2 , sur un miroir d'or : (a) Spectre d'absorption avec plusieurs largeurs de barreaux. (b) Images infrarouge d'un échantillon comportant des pixels avec des barreaux d'or de largeurs différentes (thèse de Mathilde Makhsiyani).

Les nanoantennes permettent donc de réaliser un confinement du champ électrique pour la ou les longueurs d'onde et polarisation souhaitées. Si l'on reprend l'équation 1.1, l'avantage pour le non linéaire est évident : une forte exaltation du champ électrique implique une forte polarisation non linéaire, dépendant du carré du champ électrique dans le cas des effets non linéaires d'ordre 2. Toutefois, il faut pour cela inclure un cristal non linéaire dans une nanoantenne (généralement métallique). Cela complique d'autant plus les procédés de fabrication, qui peuvent impliquer la gravure du cristal ou un report d'une couche de matériau non linéaire épitaxiée sur un miroir métallique. Par ailleurs, il faut veiller pendant tout le processus à garder la bonne orientation du cristal. De plus, la conception de ces nanoantennes doit respecter les contraintes de l'optique non linéaire.

¹²Peter MUEHLSCHLEGEL, H-J EISLER, Olivier JF MARTIN, Bert HECHT et DW POHL. « Resonant optical antennas ». *Science* 308.5728 (2005), p. 1607-1609.

¹³SAKAT, VINCENT, GHENUCHE, BARDOU, COLLIN, PARDO, PELOUARD et HAIDAR, « Guided mode resonance in subwavelength metal-dielectric free-standing grating for bandpass filtering ».

¹⁴Mathilde MAKHSIYAN. « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux ». Thèse de doct. Paris Saclay, 2017.

Cela constitue le principal enjeu de cette thèse : concevoir des nanoantennes exaltant fortement les effets non linéaires, dans le but de créer de nouvelles sources dans l'infrarouge et le THz.

Les nanoantennes étudiées dans cette thèse sont des métasurfaces, composées de métal (généralement de l'or) et diélectriques structurés en dimensions sub-longueur d'onde.

Conclusion

Les métasurfaces présentent donc un fort potentiel pour l'exaltation des effets non linéaires. En effet, leur forte exaltation du champ électrique et leur accordabilité permettent de respecter les contraintes de l'optique non linéaire, autorisant la génération à la longueur d'onde souhaitée. Dans le chapitre suivant nous allons voir comment adapter ces métasurfaces à la génération efficace d'effets non linéaires.

Chapitre

2

Concepts pour la génération d'effets non linéaires dans des métasurfaces

Sommaire

2.1 Formalisme de l'optique non linéaire	11
2.1.1 Origine de l'optique non linéaire	11
2.1.2 Effets non linéaires d'ordre 2	13
2.1.3 Polarisation non linéaire et matériaux $\chi^{(2)}$	15
2.1.4 Effets non linéaires d'ordre 3	17
2.2 Les métasurfaces exaltant les effets non linéaires	18
2.3 Proposition d'une démarche de conception de métasurfaces exaltant les effets non linéaires	22
2.3.1 Création de la polarisation non linéaire	22
2.3.2 Extraction du champ généré	22
2.3.3 Effet de la focalisation	23

Ce chapitre a pour objectif d'exposer les concepts physiques à l'œuvre dans mes travaux. Nous verrons tout d'abord le formalisme de l'optique non linéaire et les effets d'ordre 2 et 3. Puis nous décrirons les principes fondamentaux pour l'exaltation efficace de ces effets dans des métasurfaces incluant un matériau non linéaire.

2.1 Formalisme de l'optique non linéaire

Dans cette section nous allons voir l'origine de la réponse non linéaire des matériaux, puis les effets particuliers qui peuvent y avoir lieu. Nous nous intéresserons particulièrement aux effets non linéaires d'ordre 2 et 3. Les développements qui suivent peuvent être trouvés dans le livre de R.W. Boyd.¹

2.1.1 Origine de l'optique non linéaire

Considérons une onde électromagnétique se propageant dans le vide. Son champ électromagnétique peut s'écrire :

$$\mathbf{E}(z, t) = \mathcal{E} \cos(\mathbf{k} \cdot \mathbf{z} - \omega t) \quad (2.1)$$

avec z la direction de propagation, \mathcal{E} l'amplitude du champ électrique, \mathbf{k} le vecteur d'onde.

Cette onde est soumise aux équations de Maxwell, qui sans charges et sans courant dans le milieu reviennent à :

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\partial_t \mathbf{B} \quad (2.2)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \partial_t \mathbf{D} \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \quad (2.4)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = 0 \quad (2.5)$$

¹Robert W BOYD. *Nonlinear Optics*. 2008.

Par ailleurs si l'onde traverse un milieu on peut écrire :

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.6)$$

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} - \mathbf{M} \quad (2.7)$$

avec $\epsilon_0 = \frac{1}{\mu_0 c^2}$, \mathbf{M} la magnétisation, et \mathbf{P} la polarisation, qui décrit le moment dipolaire par unité de volume : $\mathbf{P} = N e \mathbf{r}$ où N est la densité électronique, e la charge élémentaire, r la position du nuage électronique.

On peut en déduire l'équation d'onde dans le milieu :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \mathbf{E} = \mu_0 \partial_t^2 \mathbf{P} \quad (2.8)$$

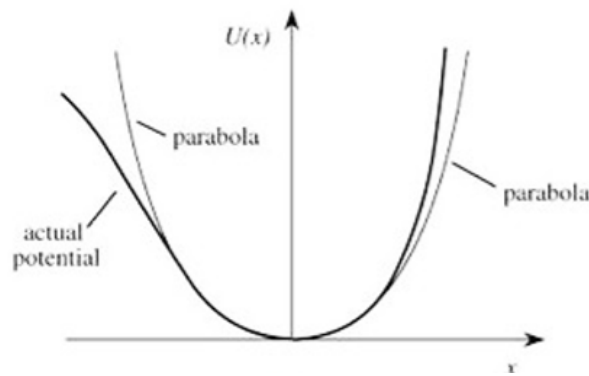


FIGURE 2.1 – Energie potentielle d'un électron en fonction de sa distance au noyau pour un milieu non centrosymétrique, comparé à une parabole

Sous l'action de cette onde, un électron du milieu subit plusieurs forces, décrites avec le modèle de l'oscillateur harmonique :

$$\ddot{r} + 2\gamma \dot{r} + \omega_0^2 r = -e \frac{E(t)}{m} \quad (2.9)$$

Les différentes forces qui s'appliquent sur l'électron sont la force électrique $-eE$, la perte par rayonnement dipolaire $-2m\gamma\dot{r}$ et la force de rappel électrostatique $-m\omega_0^2 r$.

Cette dernière force constitue l'énergie potentielle de l'électron :

$$U(r) = - \int F_{rappel} dr = \frac{1}{2} m \omega_0^2 r^2 \quad (2.10)$$

La résolution de l'équation 2.9 amène à une expression de la polarisation, qui est proportionnelle au champ électrique :

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} \quad (2.11)$$

où $\chi^{(1)}$ correspond à la susceptibilité linéaire du milieu, qui influe sur l'indice de réfraction du milieu : $n = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$.

L'énergie potentielle décrite par l'équation 2.10 dépend quadratiquement de la distance au noyau. Elle est tracée sur la figure 2.1. On y voit la parabole décrite par l'équation 2.10. Sur la figure est aussi tracé le véritable potentiel dans un milieu non centrosymétrique. Celui-ci suit bien la parabole à basse énergie, mais s'en détache au delà. A hautes énergies, le potentiel n'est plus harmonique, il faut donc rajouter des termes à l'équation 2.10 :

$$U(r) = - \int F_{rappel} dr = \frac{1}{2} m \omega_0^2 r^2 + \frac{1}{3} m (a_1 r^3 + a_2 r^4 + \dots) \quad (2.12)$$

où a est un paramètre qui décrit la force de la susceptibilité.

Si l'on prend en compte cette nouvelle énergie potentielle dans l'équation 2.9, on arrive à la description d'un modèle d'oscillateur anharmonique :

$$\ddot{r} + 2\gamma\dot{r} + \omega_0^2 r + a_1 r^2 + a_2 r^3 + \dots = -e \frac{E(t)}{m} \quad (2.13)$$

Où l'on a une force de rappel électrostatique qui n'est plus linéaire :

$$F_{rappel} = -m\omega_0^2 r - m(a_1 r^2 + a_2 r^3 + \dots) \quad (2.14)$$

L'équation 2.13 amène à une description plus complète de la polarisation, qui contient des termes non linéaires qui dépendent des puissances du champ électrique :

$$P = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots] \quad (2.15)$$

où $\chi^{(1)}$ est la susceptibilité linéaire du milieu, et les $\chi^{(n)}$ les susceptibilités non linéaires d'ordre n . Ces susceptibilités sont d'autant plus faibles que l'ordre est élevé. En effet, $\chi^{(2)}$ est de l'ordre de $\chi^{(1)}/E_{at}$, avec $E_{at} = e/(4\pi\epsilon_0 a_0^2)$, avec a_0 le rayon de Bohr. Ainsi, $\chi^{(n)}$ est de l'ordre de $\chi^{(1)}/E_{at}^{n-1}$. Ce qui nous donne :

$$\chi^{(2)} \simeq 10^{-12} \text{ m/V} \quad (2.16)$$

$$\chi^{(3)} \simeq 10^{-24} \text{ m}^2/\text{V}^2 \quad (2.17)$$

Les effets non linéaires apparaissent donc à haute énergie, où la force de rappel électrostatique ne dépend plus linéairement de la distance de l'électron au noyau. Cela crée une polarisation non linéaire dépendant des puissances du champ électrique.

2.1.2 Effets non linéaires d'ordre 2

Concentrons nous à présent sur les effets non linéaires d'ordre 2. Ils sont décrits par l'équation suivante :

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E(t)^2 \quad (2.18)$$

Effets de la symétrie

Ces effets ne sont possibles que dans les matériaux non centrosymétriques. En effet, les cristaux centrosymétriques présentent un centre d'inversion et donc ont les propriétés de symétries suivantes :

$$P^{(2)}(-r) = -P^{(2)}(r) \quad (2.19)$$

$$E(-r) = -E(r) \quad (2.20)$$

Si l'on introduit les équations 2.19 et 2.20 dans l'équation 2.18, on obtient un tenseur $\chi^{(2)} = 0$. Les matériaux centrosymétriques ont donc un $\chi^{(2)}$ nul. On ne va donc considérer par la suite que des matériaux non-centrosymétriques.

Les différents effets

Considérons à présent que l'onde incidente contient deux fréquences ω_1 et ω_2 . le champ électrique s'écrit sous la forme :

$$E(t) = \mathcal{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathcal{E}_2 e^{-i\omega_2 t} \quad (2.21)$$

On trouve donc une polarisation non linéaire d'ordre 2 de la forme :

$$P^{(2)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} [\mathcal{E}_1^2 e^{-2i\omega_1 t} + \mathcal{E}_2^2 e^{-2i\omega_2 t} + 2\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t}] + 2\epsilon_0 \chi^{(2)} [\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1^* + \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_2^*] \quad (2.22)$$

Les différents termes de cette équation correspondent aux différents effets de conversion de fréquence :

Génération de Second Harmonique (SHG) : $P(2\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1^2$ et $P(2\omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_2^2$

Génération de Somme de Fréquences (SFG) : $P(\omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2$

Génération de Différence de Fréquences (DFG) : $P(\omega_1 - \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^*$

Rectification Optique (OR) : $P(\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)} (\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1^* + \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_2^*)$

Ces effets (hormis la rectification optique que l'on ne va pas étudier ici) sont illustrés sur la figure 2.2.

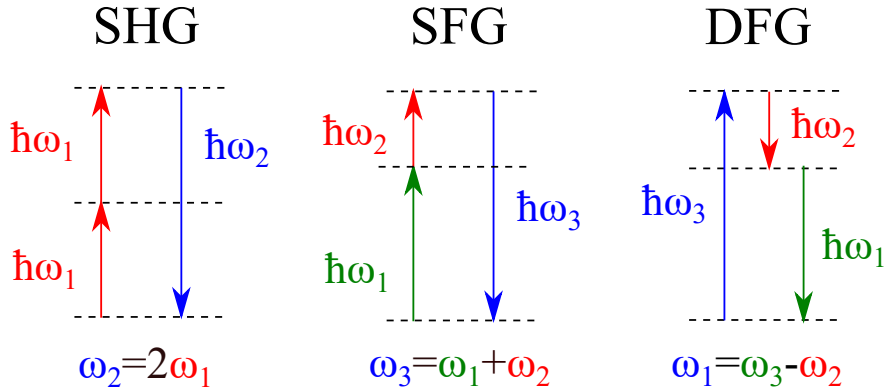


FIGURE 2.2 – Diagrammes d'énergie des effets non linéaires d'ordre 2

Equation d'onde pour la Génération de Second harmonique

Intéressons nous à présent plus précisément à la SHG. Considérons que la pompe est une onde plane se propageant selon z : $E_1 = A_1(z) e^{ik_1 z - \omega_1 t}$. Nous supposons que l'onde générée est également plane, et de la forme : $E_2 = \mathcal{A}_2(z) e^{ik_2 z - \omega_2 t}$ (avec $\omega_2 = 2\omega_1$). Sous l'hypothèse de non déplétion de la pompe (on considère que la pompe ne varie pas lors du processus), l'équation d'onde s'écrit :

$$\left[\frac{d^2 \mathcal{A}_2}{dz^2} + 2ik_2 \frac{d\mathcal{A}_2}{dz} - k_3^2 + \frac{\epsilon(\omega_2)\omega_2^2 \mathcal{A}_2}{c^2} \right] e^{i(k_2 - \omega_2)t} = \frac{-2\chi^{(2)}}{c^2} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2 e^{i(2k_1)z - \omega_2 t} \quad (2.23)$$

Que l'on peut écrire sous la forme :

$$\frac{d^2 \mathcal{A}_2}{dz^2} + 2ik_2 \frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{-2\chi^{(2)}}{c^2} \mathcal{A}_1 \mathcal{A}_2 e^{i(2k_1 - k_2)z} \quad (2.24)$$

On définit l'accord de phase $\Delta k = 2k_1 - k_2$, et on fait l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable sur \mathcal{A}_2 : $|\frac{d^2 \mathcal{A}_2}{dz^2}| \ll |k_2 \frac{d\mathcal{A}_2}{dz}|$.

On obtient ainsi :

$$\mathcal{A}_2 = \frac{i\omega_1 e^{i\Delta k z/2}}{cn_{\omega_2} \Delta k} \mathcal{A}_1^2 \sin \frac{\Delta k}{2} \quad (2.25)$$

L'intensité produite est égale à :

$$I_2 = \frac{2\chi^{(2)} \omega_2^2 I_1^2}{n_{\omega}^2 n_{2\omega} \epsilon_0 c^2} \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right) \quad (2.26)$$

avec L la longueur du matériau non linéaire traversé.

L'intensité générée décroît rapidement avec Δk pour une longueur L donnée.

C'est pour cette raison que les technologies de conversion paramétrique, comme les OPO, font appel à une technique de quasi-accord de phase. Cela consiste à utiliser un cristal ayant une inversion périodique de la polarisation non linéaire. Cela permet de compenser le déphasage de π à chaque longueur de cohérence et d'obtenir un accord de phase.²

A l'inverse, les métasurfaces étudiées dans la suite du manuscrit ont des épaisseurs de matériau non linéaire bien inférieures à $1/\Delta k$ (pour le GaAs cela correspond à quelques dizaines de microns dans l'infrarouge). On est donc naturellement dans la situation où ΔkL est très faible, et donc proche du maximum de conversion. Nous allons cependant parler par la suite d'accord de modes dans les nanostructures.

2.1.3 Polarisation non linéaire et matériaux $\chi^{(2)}$

Les matériaux non linéaires ayant un $\chi^{(2)}$ non nul sont très variés, tant en valeur de susceptibilité qu'en structure cristalline. La valeur de la susceptibilité détermine la quantité de polarisation non linéaire atteignable. Cependant, la structure du cristal non linéaire détermine l'orientation de la polarisation non linéaire créée et les effets réalisables.

Dans le cas général de la somme de fréquence (qui peut être étendu aux cas particuliers de la SHG et la DFG), la polarisation non linéaire s'écrit comme suit :

$$P_i(\omega_n + \omega_m) = \epsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(nm)} d_{ijk} E_j(\omega_n) E_k(\omega_m) \quad (2.27)$$

avec $d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi^{(2)}$.

Le tenseur de susceptibilité d'ordre 2 est symétrique sur au moins deux indices et peut donc être représenté de façon contractée dans une matrice 3×6 avec les composantes d_{il} :

jk	11	22	33	23,32	31,13	12,21
l	1	2	3	4	5	6

Cette matrice peut être simplifiée en supposant que les indices ijk peuvent être permutés. Cette condition, appelée symétrie de Kleinman, implique que certaines composantes de la matrice sont égales.³ La matrice obtenue peut être introduite dans l'équation 2.27 :

$$\begin{bmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{bmatrix} = 4\epsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \times \begin{bmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_y(\omega_1)E_x(\omega_2) \end{bmatrix} \quad (2.28)$$

On voit dans cette équation comment le tenseur de susceptibilité influe sur la polarisation non linéaire créée, et les composantes des champs pompes mises en jeu. Ce tenseur est propre au matériau non linéaire utilisé, notamment ses symétries dépendent de la classe du cristal.

La figure 2.3 présente deux structures cristallines. La première est la structure du GaAs, qui est de type cubique, alors que la deuxième est du GaN, de type tétragonal. Ces deux matériaux ont des tenseurs de susceptibilités très différents, les configurations d'effets non linéaires d'ordre 2 possibles sont donc différentes.

²Martin M FEJER, GA MAGEL, Dieter H JUNDT et Robert L BYER. « Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances ». *IEEE Journal of Quantum Electronics* 28.11 (1992), p. 2631-2654.

³BOYD, *Nonlinear Optics*.

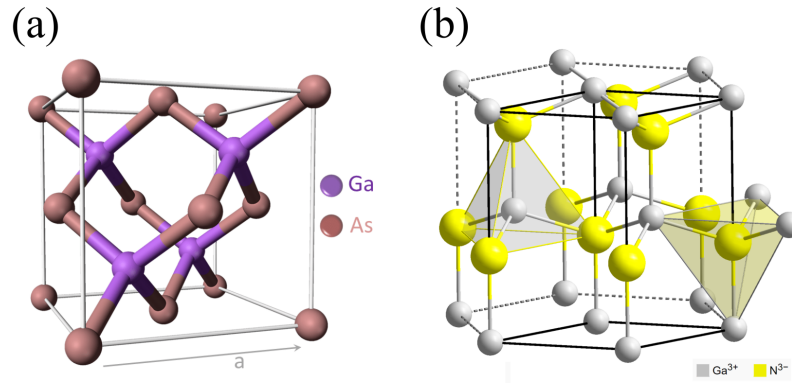


FIGURE 2.3 – Structures cristallines : (a) GaAs (cubique), (b) GaN (tétragonal)

Arséniure de gallium

Prenons à présent le cas de l'arséniure de gallium (GaAs), qui est le matériau que j'ai préférentiellement utilisé pendant ma thèse. Son cristal est de type cubique zinc blende, de classe $\bar{4}3m$ (voir Fig. 2.3(a)). Les cristaux de cette classe ont comme éléments non nuls du tenseur : $xyz = -xyz = yzx = -yxz = zxy = -zyx$. Cela se traduit par une matrice d_{il} de la sorte :

$$\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_{14} \end{bmatrix} \quad (2.29)$$

Cela conduit à une polarisation non linéaire de ce type :

$$\begin{bmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{bmatrix} = 4\epsilon_0 d_{14} \begin{bmatrix} E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_y(\omega_1)E_x(\omega_2) \end{bmatrix} \quad (2.30)$$

On remarque que pour générer une polarisation selon une direction donnée, il faut multiplier les composantes des champs pompes selon les deux autres directions. Par exemple, une polarisation P_x fait appel aux champs E_y et E_z aux longueurs d'onde pompes. Cela vaut aussi pour le cas particulier de la SHG, où ce sont deux composantes différentes du même champ pompe qui sont multipliées entre elles. Cela n'est pas le cas idéal pour la génération de SHG. En effet, pour optimiser la colocalisation des champs, le cas idéal est de multiplier la même composante du champ pompe, donnant une colocalisation automatique.

Il est à noter que tout cela vaut pour un cristal orienté (100), ce qui veut dire que les axes cristallins sont confondus avec les axes optiques. Si on oriente différemment les axes cristallins on obtient des configurations différentes.⁴ Dans la suite je vais travailler avec du GaAs orienté (100). Les différentes configurations possibles pour la génération d'effets non linéaires d'ordre 2 sont décrites dans le chapitre 4.

Comme on l'a vu dans l'expression 2.29, le $\chi^{(2)}$ du GaAs n'a qu'une seule valeur non nulle d_{14} , égale à 150pm/V dans l'infrarouge (1 – 12 μm).⁵ C'est une valeur assez élevée parmi les matériaux ayant un $\chi^{(2)}$.

Autres matériaux

Dans les autres matériaux ayant un $\chi^{(2)}$, on peut citer l'AlGaAs, qui a une structure cristalline proche du GaAs. Il ne permet donc pas de nouvelles configurations de génération. L'antimoniure de gallium (GaSb) fait également partie de la même classe cristalline, mais sa susceptibilité est plus élevée ($\chi^{(2)} = 300 \text{ pm/V}$).

⁴HÉRON, « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ».

⁵T. SKAULI et al. « Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned GaAs and demonstration of highly efficient second-harmonic generation ». *Opt. Lett.* 27.8 (avr. 2012), p. 628-630. DOI : 10.1364/OL.27.000628.

En revanche, le GaN est un cristal de type wurzite (classe $4mm$, tétragonal, voir Fig. 2.3(b)). Les composantes non nulles de son $\chi^{(2)}$ sont selon $:zzz, zxx = zyy, xxz = yyz, xzx = yzy$. Ce tenseur permet de réaliser de la SHG avec colocalisation automatique (on peut multiplier les mêmes composantes du champ pompe pour créer la polarisation non linéaire). Néanmoins la valeur du $\chi^{(2)}$ est plus faible (5 à 10 pm/V).⁶

2.1.4 Effets non linéaires d'ordre 3

Les effets non linéaires d'ordre 3 font appel à la susceptibilité non linéaire $\chi^{(3)}$, qui est bien plus faible que le $\chi^{(2)}$, comme on l'a vu dans les équations 2.16 et 2.17. Contrairement aux effets d'ordres 2, ils ne nécessitent pas de condition sur la centrosymétrie. Ils sont décrits par l'équation suivante :

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3 \quad (2.31)$$

Considérons dans un premier temps une pompe monochromatique :

$$E(t) = \mathcal{E} \cos(\omega t) \quad (2.32)$$

En utilisant l'identité $\cos^3(\omega t) = \frac{1}{4} \cos(3\omega t) + \frac{3}{4} \cos(\omega t)$, on peut écrire la polarisation non linéaire comme suit :

$$P^{(3)}(t) = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}^3 \cos(3\omega t) + \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}^3 \cos(\omega t) \quad (2.33)$$

Le premier terme oscille à une fréquence 3ω et correspond donc à la **génération de troisième harmonique (THG)**. Le deuxième terme ne correspond pas à une conversion de fréquence, mais décrit des phénomènes auto-induits. Ces phénomènes sont :⁷

L'effet Kerr optique (pour $\chi^{(3)}$ réel) : Cet effet influence l'indice de réfraction du milieu :

$$n = n_0 + n_2 I \quad (2.34)$$

avec $n_2 = \frac{3}{2n_0^2 \epsilon_0 c} \chi^{(3)}$. Cet effet peut induire de l'auto-focalisation, de l'autoconfinement ou de la filamentation dans le milieu (voir Fig. 2.4(a)). Si $n_2 > 0$, le milieu agit comme une lentille.

L'absorption à deux photons (pour $\chi^{(3)}$ complexe) : Cet effet autorise la transition d'un atome d'un état fondamental à un état excité, grâce à l'absorption simultanée de deux photons (voir Fig. 2.4(b)). Le taux d'atténuation de l'intensité est proportionnel au carré de l'intensité :

$$\frac{dI(z)}{dz} = -\alpha_2 I(z)^2 \quad (2.35)$$

La saturation d'absorption (pour $\chi^{(3)}$ et $\chi^{(1)}$ complexes) : Dans cet effet l'absorption dépend de l'intensité :

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s} \quad (2.36)$$

où α_0 est le coefficient d'absorption à faible intensité et I_s est l'intensité de saturation. Cet effet est utilisé dans les dispositifs de bistabilité optique : si l'absorbant saturable est placé dans une cavité Fabry Perot, l'augmentation de l'intensité va diminuer l'absorption, ce qui va d'autant plus augmenter l'intensité. Même si l'intensité est abaissée par la suite, le matériau aura encore une faible absorption (voir Fig. 2.4(c)).

⁶Norman A SANFORD, Aalbert V DAVYDOV, Denis V TSVETKOV, AV DMITRIEV, Stacia KELLER, UK MISHRA, Steven P DENBAARS, SS PARK, JY HAN et RJ MOLNAR. « Measurement of second order susceptibilities of GaN and AlGaIn ». *Journal of Applied Physics* 97.5 (2005), p. 053512.

⁷BOYD, *Nonlinear Optics*.

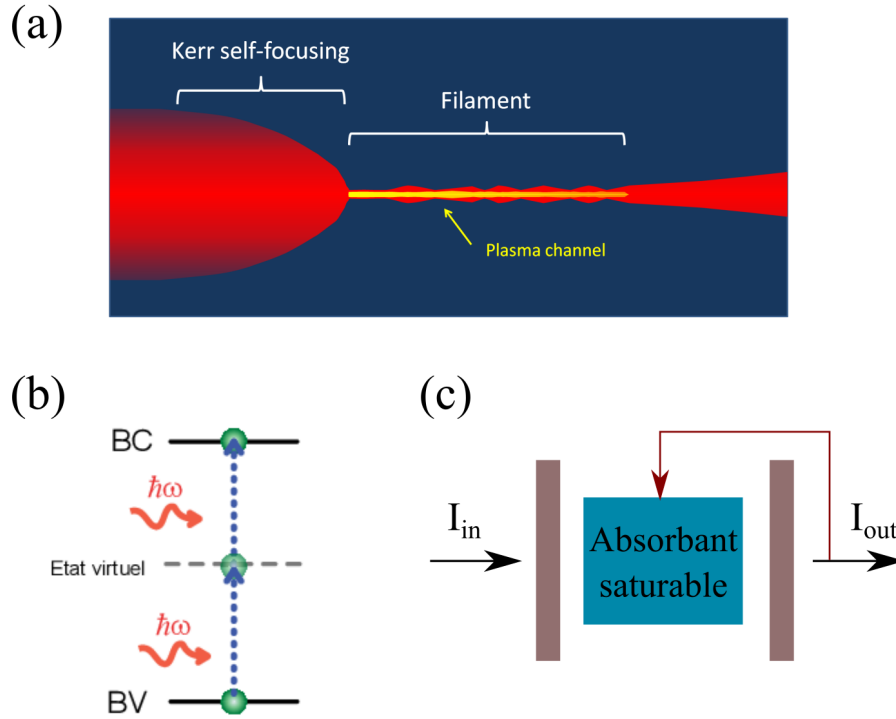


FIGURE 2.4 – Effets non linéaires auto-induits d'ordre 3 : (a) Effet Kerr (auto-focalisation et filamentation), (b) Absorption à deux photons, (c) Saturation d'absorption (bistabilité optique).

Mélange à quatre ondes

On considère à présent le cas général, c'est-à-dire où la pompe peut contenir jusqu'à trois fréquences différentes :

$$E(t) = \mathcal{E}_1 e^{-i\omega_1 t} + \mathcal{E}_2 e^{-i\omega_2 t} + \mathcal{E}_3 e^{-i\omega_3 t} \quad (2.37)$$

Si l'on introduit l'équation 2.37 dans l'équation 2.31, on obtient une polarisation non linéaire contenant 44 termes différents, correspondant aux différents processus de conversion de fréquence possibles. Les fréquences générées sont :

$$\begin{aligned} &\omega_1, \omega_2, \omega_3, 3\omega_1, 3\omega_2, 3\omega_3, \\ &(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), (\omega_1 + \omega_2 - \omega_3), (\omega_1 - \omega_2 + \omega_3), (-\omega_1 + \omega_2 + \omega_3), \\ &(2\omega_1 \pm \omega_2), (2\omega_1 \pm \omega_3), (2\omega_2 \pm \omega_2), (2\omega_2 \pm \omega_3), (2\omega_3 \pm \omega_1), (2\omega_3 \pm \omega_2) \end{aligned}$$

Ces processus de conversion décrivent les différents mélanges à quatre ondes possibles. On y retrouve aussi l'absorption à deux photons et la saturation de l'absorption, ainsi que l'effet Raman.

2.2 Les métasurfaces exaltant les effets non linéaires

L'objectif de la thèse est d'exploiter la dépendance des effets non linéaires en E^2 ou E^3 en exaltant le champ électrique dans des métasurfaces pour générer efficacement des effets non linéaires. Cette approche a été menée par de nombreuses équipes ces dernières années pour la génération de SHG ou de DFG^{8,9,10,11}.

⁸Martti KAURANEN et Anatoly V ZAYATS. « Nonlinear plasmonics ». *Nature Photonics* 6.11 (2012), p. 737.

⁹Shay KEREN-ZUR, Lior MICHAELI, Haim SUCHOWSKI et Tal ELLENBOGEN. « Shaping light with nonlinear metasurfaces ». *Advances in Optics and Photonics* 10.1 (2018), p. 309-353.

¹⁰Nicolae C PANOIU, Wei E.I. SHA, Danyuan Y LEI et Guang-Can LI. « Nonlinear optics in plasmonic nanostructures ». *Journal of Optics* 20.8 (2018), p. 083001.

¹¹Alexander KRASNOK, Mykhailo TYMCHENKO et Andrea ALU. « Nonlinear metasurfaces: a paradigm shift in nonlinear optics ». *Materials Today* 21.1 (2018), p. 8-21.

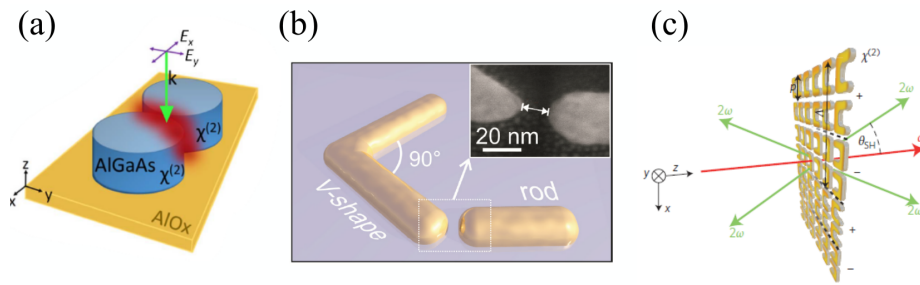


FIGURE 2.5 – Exemples de métasurfaces générant des effets non linéaires d'ordre 2 : (a) Nanocylindres en AlGaAs de Rocco *et al.*, (b) Nanostructures en or de Celebrano *et al.*, (c) Cristaux photoniques de Segal *et al.*.

Tout métal

Certaines équipes ont réalisé des métasurfaces métalliques, et exalté les non-linéarités du métal. On peut citer les nanostructures chirales en G de Valev *et al.*¹² ou les structures en L de Husu *et al.*¹³ Des nanostructures plasmoniques ont été réalisées pour exalter les effets non linéaires, comme dans le dispositif de Celebrano *et al.*¹⁴ (voir Fig. 2.5(b)), ou les résonateurs split-ring formant un cristal photonique de Segal *et al.*¹⁵ (voir Fig. 2.5(c)). Néanmoins, nous n'avons pas choisi cette approche, car les propriétés non linéaires des métaux, comme l'or, sont très faibles par rapport aux diélectriques.¹⁶

Tout diélectrique

Par ailleurs, des métasurfaces tout-diélectrique ont vu le jour. Dans ce cas, le diélectrique utilisé possède un $\chi^{(2)}$ significatif, contrairement aux métaux. C'est le cas des nanocylindres en GaAs et AlGaAs de Liu *et al.*¹⁷ ou de Rocco *et al.*¹⁸ (voir Fig. 2.5(a)). On peut également citer les réseaux en GaAs de De Ceglia *et al.*,¹⁹ et les guides d'onde en GaN de Gromovyi *et al.*²⁰ D'autre part, du GaAs nanostructuré supportant des résonances de Mie a permis d'améliorer l'efficacité SHG.²¹ Enfin, l'utilisation de réseaux couplés à des réseaux de Bragg dans un guide d'onde (CRIGFs, cavity resonator integrated grating filters) permet d'améliorer l'efficacité par rapport à un réseau seul.²² L'efficacité obtenue par ces équipes est généralement de l'ordre de 10^{-5} W/W².

¹²Ventsislav K VALEV, Nick SMISDOM, Alejandro V SILHANEK, Ben DE CLERCQ, W GILLIJNS, Marcel AMELOOT, VV MOSHCHALOV et Thierry VERBIEST. « Plasmonic ratchet wheels: switching circular dichroism by arranging chiral nanostructures ». *Nano Letters* 9.11 (2009), p. 3945-3948.

¹³Hannu HUSU, Roope SIKKANEN, Jouni MAKITALO, Joonas LEHTOLAHTI, Janne LAUKKANEN, Markku KUITTINEN et Martti KAURANEN. « Metamaterials with tailored nonlinear optical response ». *Nano Letters* 12.2 (2012), p. 673-677.

¹⁴Michele CELEBRANO et al. « Mode matching in multiresonant plasmonic nanoantennas for enhanced second harmonic generation ». *Nature Nanotechnology* 10.5 (mai 2015), p. 412-417. DOI : 10.1038/nnano.2015.69.

¹⁵Nadav SEGAL, Shay KEREN-ZUR, Netta HENDLER et Tal ELLENBOGEN. « Controlling light with metamaterial-based nonlinear photonic crystals ». *Nature Photonics* 9.3 (2015), p. 180.

¹⁶Fu Xiang WANG, Francisco J RODRIGUEZ, Willem M ALBERS, Risto AHORINTA, JE SIPE et Martti KAURANEN. « Surface and bulk contributions to the second-order nonlinear optical response of a gold film ». *Physical Review B* 80.23 (2009), p. 233402.

¹⁷Sheng LIU et al. « Resonantly Enhanced Second-Harmonic Generation Using III-V Semiconductor All-Dielectric Metasurfaces ». *Nano Letters* 16.9 (2016), p. 5426-5432. DOI : 10.1021/acs.nanolett.6b01816. eprint : <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.6b01816>.

¹⁸Davide ROCCO et al. « Tuning the second-harmonic generation in AlGaAs nanodimers via non-radiative state optimization ». *Photonics Research* 6.5 (mai 2018), B6-B12. DOI : 10.1364/PRJ.6.0000B6.

¹⁹Domenico DE CEGLIA, Giuseppe D'AGUANO, Nadia MATTIUCCI, Maria Antonietta VINCENTI et Michael SCALORA. « Enhanced second-harmonic generation from resonant GaAs gratings ». *Optics Letters* 36.5 (2011), p. 704-706.

²⁰Maksym GROMOVYI, Julien BRAULT, Aimeric COURVILLE, Stéphanie RENNESSON, Fabrice SEMOND, Guy FEUILLET, Pascal BALDI, Philippe BOUCAUD, Jean-Yves DUBOZ et Marc P DE MICHELI. « Efficient second harmonic generation in low-loss planar GaN waveguides ». *Optics Express* 25.19 (2017), p. 23035-23044.

²¹Polina P VABISHCHEVICH, Sheng LIU, Michael B SINCLAIR, Gordon A KEELER, Gregory M PEAKE et Igal BRENER. « Enhanced second-harmonic generation using broken symmetry III-V semiconductor fano metasurfaces ». *ACS Photonics* 5.5 (2018), p. 1685-1690.

²²François RENAUD, Antoine MONMAYRANT, Stéphane CALVEZ, Olivier GAUTHIER-LAFAYE, Anne-Laure FEHREMBACH et Evgeny POPOV. « Second-harmonic-generation enhancement in cavity resonator integrated grating filters ». *Optics letters* 44.21 (2019), p. 5198-5201.

Métal / diélectrique

L'association d'un métal et d'un diélectrique est une piste intéressante, car l'on peut utiliser les propriétés des métaux (haute réflectivité, plasmonique), et les associer à un diélectrique ayant un $\chi^{(2)}$.²³ C'est cette approche que j'ai adoptée pendant ma thèse.

Plusieurs équipes ont réalisé des effets non linéaires d'ordre 2 dans des métasurfaces métalliques contenant du GaAs, qui a une susceptibilité non linéaire élevée, comme on l'a vu dans la section 2.1.3. On peut citer comme exemple les équipes qui ont généré de la SHG dans du GaAs introduit dans une structure métallique sub-longueur d'onde comme un trou²⁴ ou une fente^{25,26}. Le GaAs a également été associé avec des résonateurs "split-ring" pour générer de la SHG²⁷ et de la DFG.²⁸

Métasurfaces ENZ

Des études récentes ont été menées sur des métasurfaces couplées à des couches d'oxyde d'indium étain (ITO) dites "Epsilon-Near-Zero" (ENZ). Une telle couche, épaisse d'une dizaine de nanomètres, présente une permittivité proche de zéro pour une longueur d'onde précise (voir Fig. 2.6(a) de Alam *et al.*²⁹). Cette propriété permet d'exalter les effets non linéaires significativement (exaltation du champ Fig. 2.6(b) de Dass *et al.*³⁰).

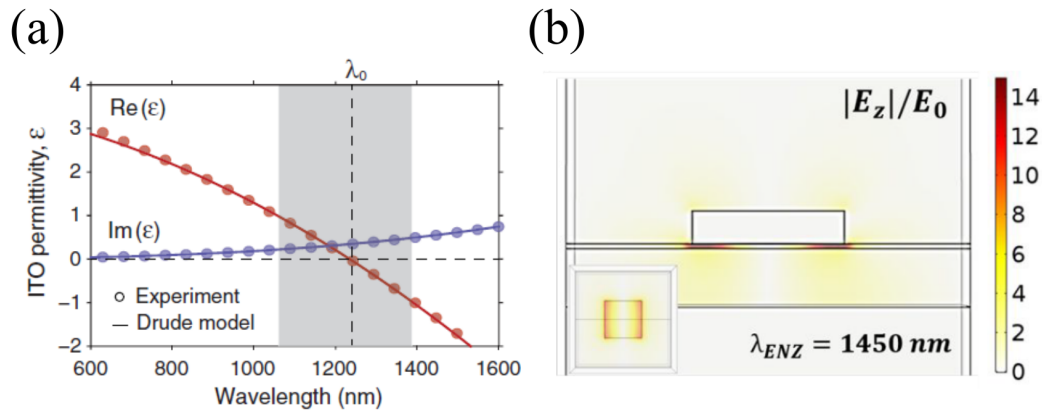


FIGURE 2.6 – Couche ENZ d'ITO : (a) Tracé de la permittivité d'une couche d'ITO de 310 nm sur du verre de Alam *et al.*, (b) Exaltation du champ E_z dans le dispositif de Dass *et al.* : réseau de plots d'or de section carrée 345 nm, épais de 80 nm, avec une période 900 nm, sur une couche d'ITO de 12 nm, sur une couche de SiO₂ de 140 nm, sur un substrat de TiN.

Multipuits quantiques

Une dernière piste a récemment permis de démontrer de fortes efficacités SHG et DFG. Il s'agit de coupler des multi-puits quantiques à des métasurfaces. Si l'on excite les transitions inter-sous-bandes de l'hé-

²³Pai-Yen CHEN, Christos ARGYROPOULOS et Andrea ALÙ. « Enhanced nonlinearities using plasmonic nanoantennas ». *Nanophotonics* 1.3-4 (2012), p. 221-233.

²⁴Wenjun FAN, Shuang ZHANG, Kevin J MALLOY, SRJ BRUECK, Nicolae C PANIOU et Richard M OSGOOD. « Second harmonic generation from patterned GaAs inside a subwavelength metallic hole array ». *Optics Express* 14.21 (2006), p. 9570-9575.

²⁵Michael SCALORA, Maria Antonietta VINCENTI, Domenico DE CEGLIA, Vito ROPPO, Marco CENTINI, Neset AKOZBEK et Mark J BLOEMER. « Second-and third-harmonic generation in metal-based structures ». *Physical Review A* 82.4 (2010), p. 043828.

²⁶Sébastien HÉRON, Patrick BOUCHON et Riad HAIDAR. « Mode matching in second-order-susceptibility metal-dielectric structures ». *Physical Review A* 94.3 (2016), p. 033831.

²⁷FBP NIESLER, N FETH, Stefan LINDEN, Jens NIEGEMANN, J GIESELER, K BUSCH et M WEGENER. « Second-harmonic generation from split-ring resonators on a GaAs substrate ». *Optics Letters* 34.13 (2009), p. 1997-1999.

²⁸Aosong FENG, Zejie YU et Xiankai SUN. « Giant Enhancement of Nonlinear Optical Processes With Split-Ring Resonators for THz Applications ». *IEEE Photonics Technology Letters* 31.21 (2019), p. 1681-1684.

²⁹M Zahirul ALAM, Israel DE LEON et Robert W BOYD. « Large optical nonlinearity of indium tin oxide in its epsilon-near-zero region ». *Science* 352.6287 (2016), p. 795-797.

³⁰Chandriker Kavir DASS, Hoyeong KWON, Shivashankar VANGALA, Evan SMITH, Justin W CLEARY, Junpeng GUO, Andrea ALÙ et Joshua R HENDRICKSON. « Gap Plasmon Enhanced Second Harmonic Generation in Epsilon-Near-Zero Nanolayers ». *ACS Photonics* (2019).

térostructure, on peut obtenir un $\chi^{(2)}$ effectif très élevé.³¹ On peut ainsi générer efficacement de la SHG^{32,33}, et de la DFG (structure de Liu *et al.*³⁴ représentée Fig. 2.7). Les efficacités obtenues sont de 10^{-2} W^{-1} pour la SHG et de 10^{-3} W^{-1} pour la DFG, ce qui est plusieurs ordres supérieur aux efficacités obtenues dans les travaux cités précédemment. La particularité de ces structures est que le $\chi^{(2)}$ effectif créé dans les multipuits quantiques est un $\chi_{zzz}^{(2)}$, qui est couplé efficacement avec la métasurface métallique qui exalte le champ E_z . La polarisation non linéaire générée est donc selon z , qui est l'axe vertical d'incidence. Cette polarisation a été assez peu étudiée dans la littérature, mais promet de fortes exaltations de l'efficacité non linéaire. Je vais donc apporter un intérêt particulier à cette polarisation, qui peut se révéler beaucoup plus élevée que les polarisations selon x et y , comme on le verra dans le chapitre 4.

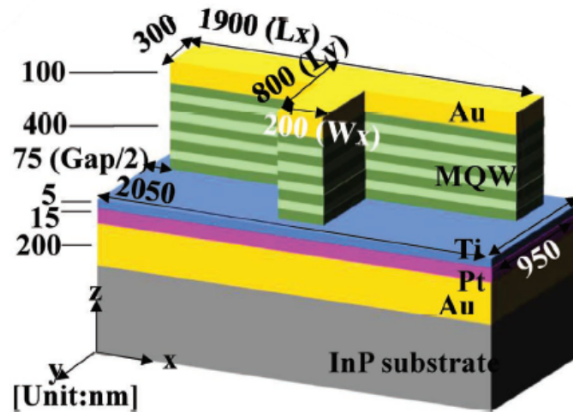


FIGURE 2.7 – Structure MQW pour la DFG de Liu *et al.* : MQW composé de 26 répétitions de $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}/\text{Al}_{0.52}\text{In}_{0.48}\text{As}$.

Effets $\chi^{(3)}$

La génération d'effets non linéaires d'ordre 3 a également intéressé plusieurs équipes ces dernières années. Certaines ont étudié l'exaltation des non-linéarités de l'or pour générer de la THG³⁵ ou du mélange à quatre ondes.³⁶ L'arséniure de gallium, qui possède également un $\chi^{(3)}$, a été utilisé pour générer de la THG.³⁷ Des équipes ont utilisé des matériaux plus atypiques comme le polystyrène qui présente un coefficient non linéaire n_2 qui permet de générer de l'effet Kerr.³⁸ En effet, les effets d'ordre 3 peuvent apparaître dans un plus grand nombre de matériaux que les effets d'ordre 2, puisqu'ils autorisent les matériaux centrosymétriques. Ces effets peuvent également avoir lieu dans des matériaux amorphes ou des liquides.

³¹Emmanuel ROSENCHER, Andrea FIORE, Borge VINTER, V BERGER, Ph BOIS et J NAGLE. « Quantum engineering of optical nonlinearities ». *Science* 271.5246 (1996), p. 168-173.

³²Jongwon LEE, Mykhailo TYMCHENKO, Christos ARGYROPOULOS, Pai-Yen CHEN, Feng LU, Frederic DEMMERLE, Gerhard BOEHM, Markus-Christian AMANN, Andrea ALU et Mikhail A BELKIN. « Giant nonlinear response from plasmonic metasurfaces coupled to intersubband transitions ». *Nature* 511.7507 (2014), p. 65.

³³Salvatore CAMPIONE, Alexander BENZ, Michael B SINCLAIR, Filippo CAPOLINO et Igal BRENER. « Second harmonic generation from metamaterials strongly coupled to intersubband transitions in quantum wells ». *Applied Physics Letters* 104.13 (2014), p. 131104.

³⁴Yingnan LIU, Jongwon LEE, Stephen MARCH, Nishant NOOKALA, Daniele PALAFERRI, John F KLEM, Seth R BANK, Igal BRENER et Mikhail A BELKIN. « Difference-Frequency Generation in Polaritonic Intersubband Nonlinear Metasurfaces ». *Advanced Optical Materials* 6.20 (2018), p. 1800681.

³⁵Mario HENTSCHEL, Tobias UTIKAL, Harald GIESSEN et Markus LIPPITZ. « Quantitative modeling of the third harmonic emission spectrum of plasmonic nanoantennas ». *Nano letters* 12.7 (2012), p. 3778-3782.

³⁶Patrice GENEVET, Jean-Philippe TETIENNE, Evangelos GATZOGIANNIS, Romain BLANCHARD, Mikhail A KATS, Marlan O SCULLY et Federico CAPASSO. « Large enhancement of nonlinear optical phenomena by plasmonic nanocavity gratings ». *Nano letters* 10.12 (2010), p. 4880-4883.

³⁷Vito ROPPO, Crina COJOCARU, Fabrice RAINERI, Guiseppe D'AGUANO, Jose TRULL, Yacine HALIOUA, R RAJ, Isabelle SAGNES, R VILASECA et Michael SCALORA. « Field localization and enhancement of phase-locked second- and third-order harmonic generation in absorbing semiconductor cavities ». *Physical Review A* 80.4 (2009), p. 043834.

³⁸Jérémy BUTET et Olivier JF MARTIN. « Manipulating the optical bistability in a nonlinear plasmonic nanoantenna array with a reflecting surface ». *Plasmonics* 10.1 (2015), p. 203-209.

2.3 Proposition d'une démarche de conception de métasurfaces exaltant les effets non linéaires

La plupart des équipes citées précédemment utilisent des métasurfaces pour exalter le champ pompe. L'approche que je vais développer ici est d'exalter le champ à toutes les longueurs d'onde mises en jeu, y compris la longueur d'onde signal. Cette approche n'est pas intuitive, car l'on pourrait penser qu'il suffit d'exalter le ou les champs pompes pour obtenir une forte polarisation non linéaire.

La génération du champ non linéaire se divise en deux parties, que l'on cherchera à optimiser dans la conception :

- Création de la polarisation non linéaire dans la structure
- Extraction du champ généré hors de la structure

2.3.1 Création de la polarisation non linéaire

Prenons comme exemple la génération de la polarisation P_x dans le GaAs. Nous considérons donc la première ligne de l'équation 2.30. Pour que tous les termes de cette équation soient non nuls, il faudrait que les champs E_y et E_z soient non nuls aux deux longueurs d'onde pompe. En pratique, les champs sont exaltés dans une polarisation donnée et donc une composante du champ est très faible. Considérons que le champ pompe à ω_1 est exalté selon la direction y (donc TE) et que le champ pompe à ω_2 est exalté selon la direction z (donc TM). Cela donne comme polarisation non linéaire :

$$P_x(\omega_3) = 4\epsilon_0 d_{14} E_y(\omega_1) E_z(\omega_2) \quad (2.38)$$

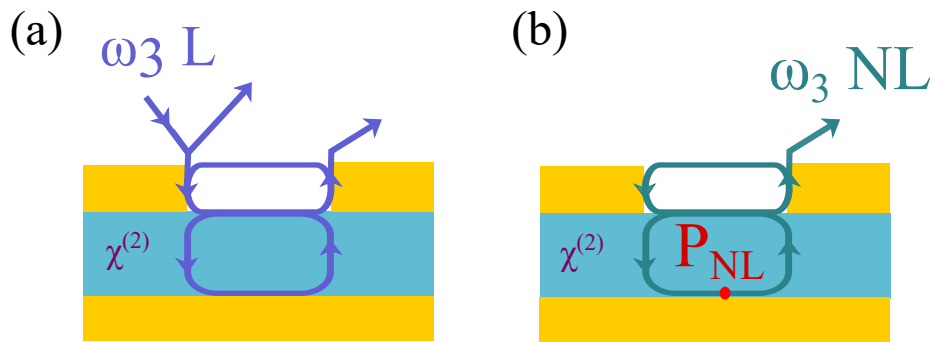
Cette équation nous montre l'importance d'exalter les champs pompes pour obtenir une forte polarisation non linéaire. Cela passe par une forte absorption du champ par la structure, et donc la présence de résonances dans le spectre de réflectivité. Cette exaltation doit se faire dans la bonne polarisation : dans notre exemple TE pour ω_1 et TM pour ω_2 . Il faut non seulement exalter les champs pompes dans la bonne polarisation et aux bonnes longueurs d'onde, mais également s'assurer de leur bonne colocalisation. En effet, dans l'équation 2.38, les champs pompes sont multipliés entre eux. Il faut donc s'assurer que ces champs se recouvrent spatialement dans la couche de matériau de non linéaire.

2.3.2 Extraction du champ généré

Malgré tout, une fois la polarisation non linéaire créée au sein de la structure, il faut pouvoir extraire le champ généré pour pouvoir le détecter en champ lointain. Or, une structure qui absorbe bien une longueur d'onde est également capable de bien l'extraire. Ce concept est illustré sur la figure 2.8. On y voit une métasurface incluant un matériau non linéaire, qui dans un cas réfléchit une onde incidente à ω_3 (Fig. 2.8(a)), et dans l'autre cas extrait un champ non linéaire à ω_3 créé dans la structure (Fig. 2.8(b)). La réflectivité linéaire est composée de deux termes : la réflectivité immédiate sur la métasurface métallique, et la réflectivité après passage dans la structure. En cas de chute de réflectivité, on peut faire l'hypothèse que ces deux termes sont en interférence destructive. La métasurface piège donc efficacement l'onde à ω_3 . Dans le cas non linéaire, l'onde à ω_3 est directement produite au sein de la structure. L'onde se comporte de la même manière que dans le second terme de la réflectivité linéaire. Le premier terme n'existant pas, il n'y a plus d'interférence destructive. L'onde non linéaire peut donc être extraite. En conclusion, il faut chercher une structure présentant une chute de réflectivité à ω_3 , car elle extraira efficacement le champ non linéaire produit dans la structure.

Pour résumer, on cherche à concevoir une structure respectant les conditions suivantes :

- Présence de résonances dans le spectre non linéaire à toutes les longueurs d'onde en jeu
- qui respectent l'accord de modes de l'effet non linéaire voulu, et ont la bonne polarisation.

FIGURE 2.8 – (a) Réflectivité linéaire de ω_3 , (b) Extraction de ω_3 non linéaire

- Bonne colocalisation spatiale des champs pompes.

Ces conditions sont plus ou moins faciles à respecter, en fonction du nombre de longueurs d'onde en jeu. En effet, pour la SHG il y a seulement deux longueurs d'onde à accorder, alors que pour la SFG ou DFG il y en a trois.

2.3.3 Effet de la focalisation

L'objectif étant de démontrer expérimentalement la génération d'effets non linéaires, nous devons prendre en compte les aspects pratiques. Un aspect important est la focalisation. En effet, pour des raisons de puissance et de taille de faisceau, il est indispensable de focaliser le faisceau incident sur la métasurface à tester. Comme il a été dit dans la section 2.1.2, la faible épaisseur des métasurfaces considérées ici nous dispense de respecter la contrainte de l'accord de phase. Nous considérons donc que le signal sera généré dans le même cône que l'onde incidente. Cependant, si l'onde incidente arrive sur la métasurface avec un angle, cela peut ne pas être favorable pour l'exaltation des champs pompes. En effet, certaines résonances ont une faible tolérance angulaire. Les propriétés des différentes résonances sont détaillées en section 4.2.

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons exposé le potentiel des métasurfaces pour exalter les effets non linéaires, permettant de générer de nouvelles longueurs d'onde. Nous avons décrit les concepts fondamentaux de l'optique non linéaire, et comment ils sont appliqués aux métasurfaces. Des règles pour la génération efficace d'effets non linéaires ont été décrites, et seront appliquées dans différentes nanostructures proposées dans les parties II et III.

Chapitre

3

Outils de simulations

Sommaire

3.1 BMM linéaire	26
3.1.1 Calcul des modes dans chaque couche	26
3.1.2 Propagation dans la structure	27
3.2 BMM non linéaire	28
3.2.1 Calcul du champ généré	28
3.2.2 Évaluation du code	31

Plusieurs familles d'outils de simulations numériques existent pour l'électromagnétisme. La méthode la plus utilisée est la méthode des éléments finis, utilisée par exemple par le logiciel commercial Comsol. La FDTD (Finite Difference Time Domain),¹ qui résout les équations de Maxwell sur un maillage dans le temps et l'espace, est également très utilisée, notamment dans les logiciels commerciaux comme Lumerical. Une autre catégorie de méthode utilisée est dite "modale", comme la RCWA (Rigorous Coupled-Wave Analysis),² qui est basée sur la décomposition en série de Fourier. D'autres méthodes ont été développées, comme la méthode des éléments finis de frontière³ (basée sur les conditions aux limites dans la forme intégrale des équations de Maxwell) ou la méthode intégrale surfacique.⁴ Ces méthodes peuvent utiliser la fonction de Green.⁵

La méthode que j'utilise a été développée dans l'équipe. C'est une méthode modale basée sur l'interpolation du champ électromagnétique par des B-splines sur un maillage non uniforme. Ce maillage permet une meilleure représentation des sauts de permittivité⁶ et l'utilisation de matrices creuses⁷ limitent le temps de calcul. La méthode modale permet de calculer rapidement les modes dans chacune des couches de la structure simulée, sans recourir aux éléments finis.

Un module de calcul non linéaire, qui permet de calculer la génération d'effets non linéaires d'ordre 2, y a été implémenté.⁸ Au début de ma thèse, ce module permettait de calculer la SHG et la DFG avec une polarisation non linéaire uniquement dans le plan de la structure, donc selon x ou y . J'y ai ajouté le calcul de la polarisation non linéaire selon z , qui diffère des autres polarisations. Cet ajout permet simuler la réponse de nouvelles structures exaltant cette polarisation particulière, promettant une très forte efficacité, comme on l'a vu dans la section 2.2.

¹Thierry LAROCHE, Fadi Issam BAIDA et Daniel VAN LABEKE. « Three-dimensional finite-difference time-domain study of enhanced second-harmonic generation at the end of an apertureless scanning near-field optical microscope metal tip ». *Journal of the Optical Society of America B* 22.5 (2005), p. 1045-1051.

²Philippe LALANNE et G Michael MORRIS. « Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polarization ». *Journal of Optical Society A* 13.4 (1996), p. 779-784; Lifeng LI. « Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures ». *Journal of Optical Society A* 13.9 (1996), p. 1870-1876.

³Jouni MÄKITALO, Saku SUURINIEMI et Martti KAURANEN. « Boundary element method for surface nonlinear optics of nanoparticles ». *Optics Express* 19.23 (2011), p. 23386-23399.

⁴Jérémy BUTET, Benjamin GALLINET, Krishnan THYAGARAJAN et Olivier JF MARTIN. « Second-harmonic generation from periodic arrays of arbitrary shape plasmonic nanostructures: a surface integral approach ». *Journal of the Optical Society of America B* 30.11 (2013), p. 2970-2979.

⁵Dana-Codruta MARINICA, AG BORISOV et SV SHABANOV. « Second harmonic generation from arrays of subwavelength cylinders ». *Physical Review B* 76.8 (2007), p. 085311.

⁶Patrick BOUCHON, Fabrice PARDO, Riad HAIDAR et Jean-Luc PELOUARD. « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation ». *Journal of the Optical Society of America A* 27.4 (2010), p. 696-702.

⁷Patrick BOUCHON, Fabrice PARDO, Riad HAIDAR, Grégory VINCENT et Jean-Luc PELOUARD. « Reduced scattering-matrix algorithm for high-density plasmonic structures ». *Optics Letters* 35.19 (2010), p. 3222-3224.

⁸Sébastien HÉRON, Fabrice PARDO, Patrick BOUCHON, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAIDAR. « Modal method for second harmonic generation in nanostructures ». *Journal of the Optical Society of America B* 32.2 (2015), p. 275-280.

3.1 BMM linéaire

BMM (B-spline Modal Method) est un outil numérique de simulation d'empilements nanostructurés selon une dimension. C'est un algorithme modal qui décompose les champs sur des modes interpolés à partir de B-splines. Les structures que l'on peut simuler sont périodiques selon x et homogènes selon y (voir Fig. 3.1). On considère une onde incidente monochromatique à la fréquence ω , arrivant avec un angle θ par rapport à la verticale dans le plan d'incidence. Les développements qui suivent sont valables pour une polarisation TM (champs E_x, E_z, H_y non nuls), mais on peut les transposer en polarisation TE en inversant E et H .

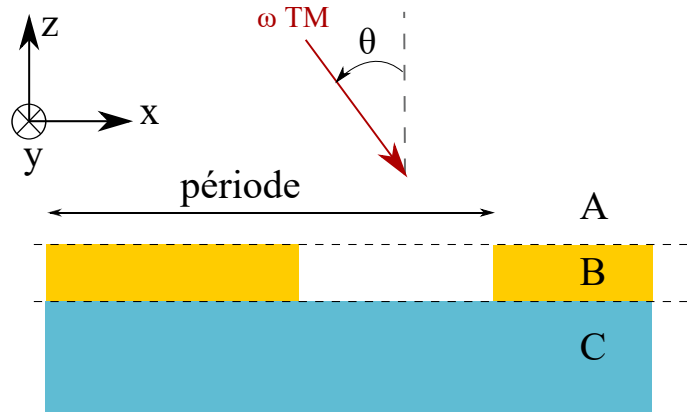


FIGURE 3.1 – Structure en trois couches calculable avec BMM, chaque couleur représente un matériau différent, éventuellement structuré selon x et infini selon y . On considère une onde incidente monochromatique de pulsation ω et de polarisation TM. Cette onde arrive dans le plan d'incidence x, z avec un angle θ par rapport à l'axe z .

3.1.1 Calcul des modes dans chaque couche

Les B-splines sont des fonctions définies par des polynômes continus par morceaux. La B-spline N_i^p de degré p commence au noeud t_i , est définie par des polynômes de même degré p et s'étale sur $p + 1$ segments. Elle est définie récursivement par ces équations :⁹

$$N_i^0(t) = \begin{cases} 1 & \text{si } t \in [t_j, t_{j+1}] \\ 0 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (3.1)$$

$$N_i^p(t) = \frac{t - t_j}{t_{j+n} - t_j} N_i^{p-1} + \frac{t_{j+n+1} - t}{t_{j+n+1} - t_{j+1}} N_{i+1}^{p-1}(t) \quad (3.2)$$

La figure 3.2(a) représente des B-splines de différents degrés et la figure 3.2(b) représente des B-splines de degré 2 avec un noeud dégénéré. Un noeud dégénéré introduit une discontinuité sur la dérivée permettant de décrire un saut de permittivité.

Les noeuds sont répartis uniformément entre chaque saut de permittivité. L'interpolation se fera sur ces noeuds, et sur des points rajoutés autour des sauts de permittivité, pour décrire plus finement le saut. L'interpolation d'un mode propre sur cette base s'écrit pour le champ magnétique :

$$H(x) = \sum_i N_i^p(x) P_i \quad (3.3)$$

où les N_i^p sont les B-splines de degré p et les P_i sont des coefficients calculés de sorte à ce que les modes soient des solutions des équations de Maxwell. Le maillage d'interpolation est resserré autour des sauts de

⁹Maurice G COX. « The numerical evaluation of B-splines ». *IMA Journal of Applied Mathematics* 10.2 (1972), p. 134-149; Carl DE BOOR. « On calculating with B-splines ». *Journal of Approximation theory* 6.1 (1972), p. 50-62.

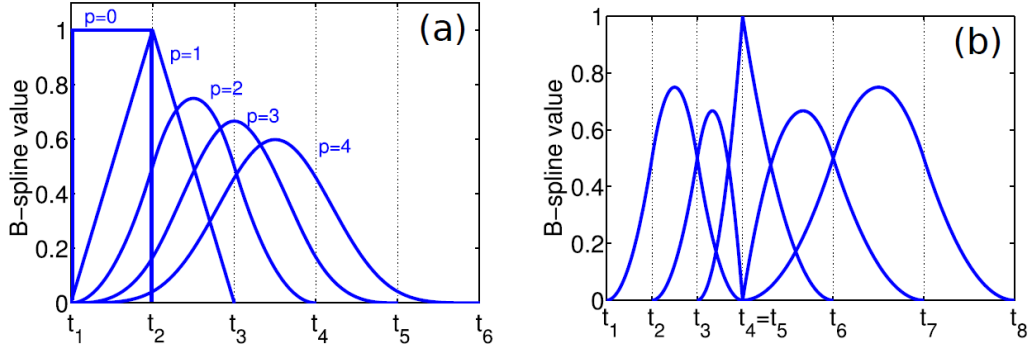


FIGURE 3.2 – (a) B-splines de degrés 0 à 4. (b) B-splines de degré 2 incluant un noeud 2 fois dégénéré.

permittivités, et un noeud dégénéré est placé sur le saut.

A partir de cela, les champs sont calculés dans chaque couche avec les équations de Maxwell :

$$D_x = \frac{k_z}{\omega} H_y \quad (3.4)$$

$$D_z = \frac{i}{\omega} \frac{\partial H_y}{\partial x} \quad (3.5)$$

k_z étant le vecteur propagation selon l'axe d'incidence z , et ω la fréquence de l'onde incidente. Et la résolution de l'équation aux valeurs propres suivante permet de trouver le vecteur d'onde :

$$\mu_y H_y + \frac{1}{k_0^2} \partial_x \left(\frac{1}{\epsilon_z} \partial_x H_y \right) = k_{zN}^2 \frac{H_y}{\epsilon_x} \quad (3.6)$$

avec k_{zN} le vecteur d'onde normalisé : $k_{zN} = \frac{k_z}{k_0}$.

3.1.2 Propagation dans la structure

Une fois que les champs de toutes les couches ont été calculés indépendamment, les matrices de diffusion sont calculées à partir des équations de continuité des champs tangentiels.¹⁰ Ces matrices, décrites Fig. 3.3, décrivent la transmission d'une couche à une autre ou la réflexion à une interface. Par exemple, S_{BA}^α est la matrice de transmission de la couche A à la couche B (en rouge), et S_{BB}^α est la matrice de réflexion sur l'interface α dans la couche B (en bleu). Les matrices de propagation sont illustrées en vert. Celle de l'interface β à l'interface α s'écrit : $Q_\alpha^\beta = \text{diag}(e^{\pm i k_m (z_\alpha - z_\beta)})$. Celle d'une hauteur z dans la couche B à l'interface α s'écrit : $Q_z^\alpha = \text{diag}(e^{\pm i k_m (z - z_\alpha)})$.

On peut définir les matrices :

$$M_a = S_{BB}^\alpha Q_\alpha^\beta S_{BB}^\beta Q_\beta^\alpha \quad (3.7)$$

$$M_b = Q_z^\beta S_{BB}^\beta Q_\beta^\alpha \quad (3.8)$$

Les composantes xyz du champ électrique \mathcal{E} , aux coordonnées échantillonnées x et hauteur fixe z , peuvent être représentées comme la superposition de deux ondes, une montante, et une descendante dans la structure :

$$\mathcal{E}(z) = \mathcal{E}^+(z) + \mathcal{E}^-(z). \quad (3.9)$$

¹⁰Lifeng LI et Charles W. HAGGANS. « Convergence of the coupled-wave method for metallic lamellar diffraction gratings ». *Journal of the Optical Society of America A* 10.6 (1993), p. 1184-1189.

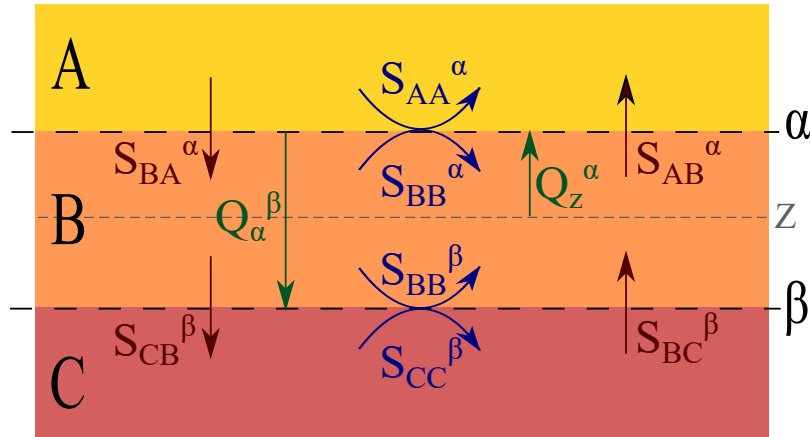


FIGURE 3.3 – Matrices de diffusion pour un système à 3 couches : matrices de transmission d’une couche à une autre (en rouge), matrices de réflexion sur une interface (en bleu), matrices de propagation dans une couche entière ou à partir d’une hauteur z (en vert)

Les champs sont écrits à la fréquence ω grâce à leurs projections sur la base des modes propres E_B^ω :

$$\mathcal{E}^\pm(z) = E_B^\omega \text{diag}(e^{\pm ik_m(z-z_0)}) U^\pm(z_0), \quad (3.10)$$

avec U^\pm les vecteurs des modes d’amplitude, qui sont donnés relativement à une hauteur z_0 .

Prenons un champ incident dans la couche A : $\mathcal{E}(z_\alpha) = E_A^\omega U_A^-(z_\alpha)$. Ce champ rentre dans la couche B ($S_{BA}^\alpha U_A^-(z_\alpha)$) et est propagé et réfléchi dans cette couche ($[Q_z^\alpha + M_b]$). Le champ électrique dans la couche B à l’altitude z , est ainsi créé et lui même propagé et réfléchi dans la couche ($\mathcal{E}_B(z) M_a$). On a donc :

$$\mathcal{E}_B(z) = E_B^\omega [Q_z^\alpha + M_b] S_{BA}^\alpha U_A^-(z_\alpha) + \mathcal{E}_B(z) M_a \quad (3.11)$$

soit

$$\mathcal{E}_B(z) = E_B^\omega [\mathbb{I} - M_a]^{-1} S_{BA}^\alpha U_A^-(z_\alpha) \quad (3.12)$$

Q_i^z est le vecteur propagation de la hauteur z jusqu’à l’interface i .

Ce module linéaire permet de calculer le champ électromagnétique dans toute la structure, ainsi que le spectre de réflectivité.

3.2 BMM non linéaire

A présent introduisons un matériau présentant une susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}$ dans une des couches. Un module non linéaire a été ajouté à BMM pour calculer la génération d’effets non linéaires d’ordre 2.

3.2.1 Calcul du champ généré

Pour calculer la génération d’effets non linéaires, plusieurs opérations sont à réaliser. Elles sont décrites sur la figure 3.4.

Calcul de la polarisation non linéaire

Il faut d’abord calculer la polarisation non linéaire. Dans le cas d’effets non linéaires d’ordre 2, la polarisation complexe est donnée par cette équation :

$$\mathcal{P}^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 \pm \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_1(\omega_1) \mathcal{E}_2(\omega_2), \quad (3.13)$$

avec $\mathcal{E}_1(\omega_1)$ et $\mathcal{E}_2(\omega_2)$ les champs pompes complexes.

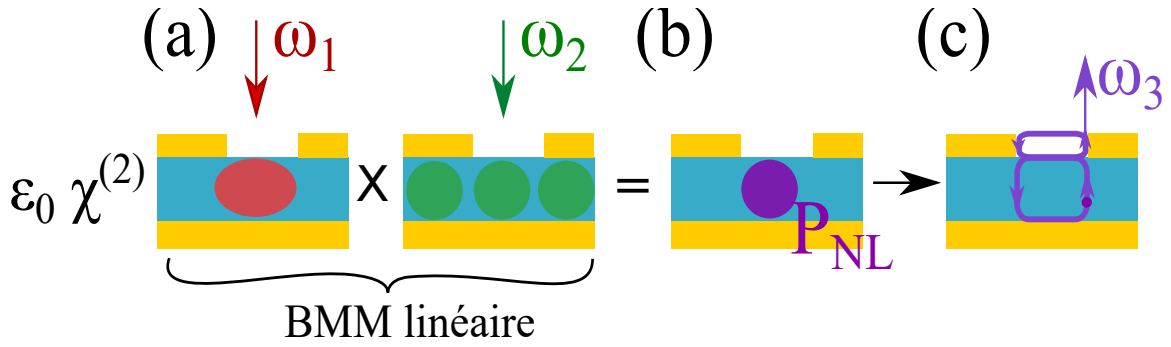


FIGURE 3.4 – Etapes du code BMM non linéaire : (a) Calcul des champs incidents à ω_1 et ω_2 , (b) Calcul de la polarisation non linéaire à partir de ces champs, (c) Calcul du champ généré dans la couche, puis de l'extraction hors de la structure.

Dans la suite du chapitre nous allons voir les étapes du code et sa validation pour les effets d'ordre 2. Néanmoins, l'extension à la génération de troisième harmonique a été réalisée par Tomasz Matthia, que j'ai encadré en stage M2. La polarisation complexe en THG est donnée par cette équation :

$$\mathcal{P}^{(3)}(\omega_3 = 3\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_1(\omega_1)^3, \quad (3.14)$$

avec $\mathcal{E}_1(\omega_1)$ le champs pompe complexe.

Ces champs pompes doivent au préalable être calculés par le module BMM linéaire dans la couche contenant le matériau non linéaire (Fig. 3.4(a)).

Les étapes qui suivent sont identiques pour l'ordre 2 et la troisième harmonique. Il en serait de même pour le cas général qui est le mélange à 4 ondes, qui comprend tous les processus de conversion de fréquence entre trois champs pompes, et dont l'ajout pourrait se faire de la même façon. Seuls les effets auto-induits (effet Kerr, absorption à deux photons ...) ne peuvent pas être ajoutés au code de façon aussi directe.

Calcul du champ non linéaire dans la couche

Une fois la polarisation non linéaire calculée, la couche contenant le matériau non linéaire est divisée en sous couches selon l'axe z qui génèrent chacune un terme source qui contribue au champ généré. Le champ généré total est la somme de toutes ces sources élémentaires. Le terme source $d\Pi(z)$ généré dans la sous-couche située à la hauteur z et d'épaisseur dz et les matrices de propagation appliquées aux champs générés dU^\pm sont décrites Fig. 3.5.

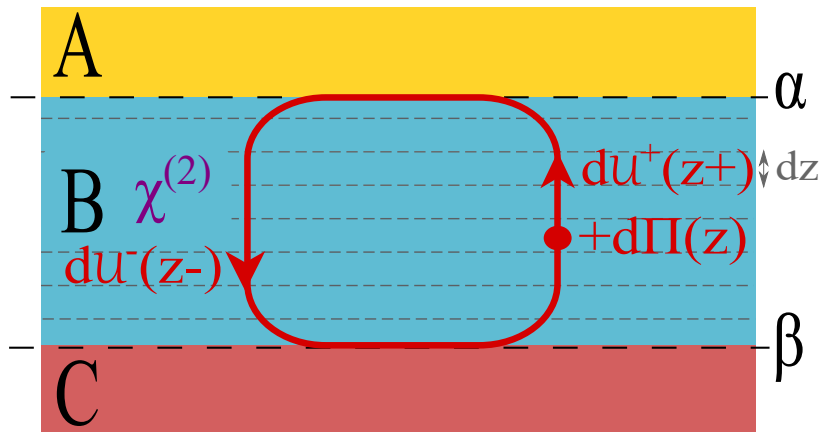


FIGURE 3.5 – La couche B, contenant le matériau non linéaire, est divisée en sous-couches. Une source non linéaire $d\Pi(z)$ est générée dans une sous-couche d'épaisseur dz . Puis l'on calcule la propagation dans la couche de GaAs (dU).Après une intégration de tous les $d\Pi(z)$ dans la couche de GaAs, le champ non linéaire est propagé dans les autres couches pour être extrait de la structure.

Le calcul des champs dU^\pm diffère selon l'orientation de la polarisation linéaire. En effet, pour les polarisations dans le plan de la structure (selon x et y), on intègre l'équation de Maxwell Ampère sur un contour de hauteur L_z (voir figure 3.6) :¹¹

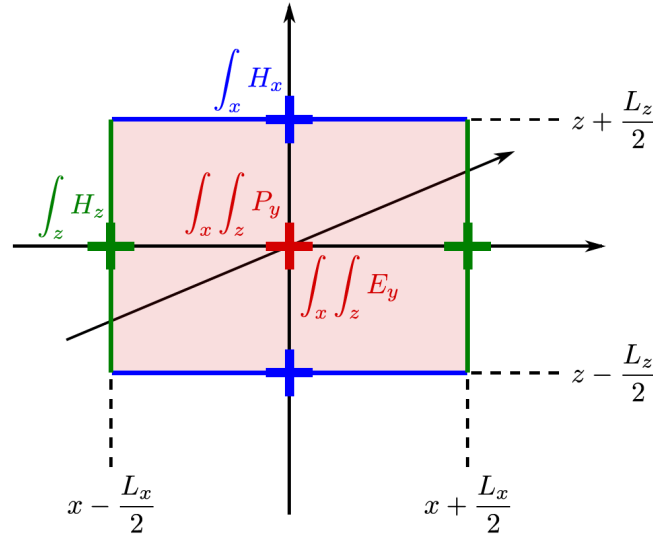


FIGURE 3.6 – Contour d'intégration pour le P_y .

En supposant L_z assez petit ($\int_z \sim L_z$) et en ne retenant que l'ordre 0 en L_z , on aboutit au système suivant pour une polarisation non linéaire suivant y :

$$\begin{cases} \mathcal{H}_x(z_+)dU^+ + \mathcal{H}_x(z_-)dU^- = -i\omega P_y dz \\ \mathcal{E}_y(z_+)dU^+ + \mathcal{E}_y(z_-)dU^- = 0 \end{cases} \quad (3.15)$$

où l'on définit la source non linéaire d'une sous-couche à l'altitude z : $d\Pi(z) = -i\omega P_y$.

Pour une polarisation selon x :

$$\begin{cases} \mathcal{H}_y(z_+)dU^+ + \mathcal{H}_y(z_-)dU^- = i\omega P_x dz = d\Pi(z) dz \\ \mathcal{E}_x(z_+)dU^+ + \mathcal{E}_x(z_-)dU^- = 0 \end{cases} \quad (3.16)$$

Avec ici $d\Pi(z) = i\omega P_x$.

Pour la polarisation selon z (donc selon l'axe de propagation), les conditions aux limites sont différentes. En effet, si l'on applique les mêmes opérations, on arriverait à une équation qui contredirait l'hypothèse de non continuité de E_x selon z en $z = 0$. Pour la polarisation selon z on combine les équations de Maxwell Ampère et Maxwell Faraday. On arrive à cette équation, qui dépend de la dérivée du champ \mathcal{E}_x selon x et comprend un terme en \mathcal{E}_z :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_x(z_+)}{\partial x} dU^+ - \frac{\partial \mathcal{E}_x(z_-)}{\partial x} dU^- = \mu_0 \omega^2 (\mathcal{P}_z + \epsilon_0 \mathcal{E}_z) dz = d\Pi(z) dz \\ \mathcal{H}_y(z_+)dU^+ + \mathcal{H}_y(z_-)dU^- = 0 \end{cases} \quad (3.17)$$

avec $z_\pm = z \pm \frac{dz}{2}$ et $d\Pi(z) = \mu_0 \omega^2 (\mathcal{P}_z + \epsilon_0 \mathcal{E}_z)$.

Les équations suivantes décrivent la continuité du champ à travers une sous-couche :

$$dU^+(z_+) + dU^-(z_+) = dU^+(z_-) + dU^-(z_-), \quad (3.18)$$

Le champ montant à l'interface inférieure de la sous-couche correspond au champ descendant qui s'est

¹¹HÉRON, PARDO, BOUCHON, PELOUARD et HAIDAR, « Modal method for second harmonic generation in nanostructures ».

propagé dans la couche de GaAs et a été réfléchi par l'interface inférieure en or γ :

$$dU^+(z_-) = M^\gamma dU^-(z_-), \quad (3.19)$$

Le champ descendant à l'interface supérieure de la sous-couche correspond au champ ascendant qui s'est propagé dans la couche de GaAs et a été réfléchi par l'interface supérieure en or β .

$$dU^-(z_+) = M^\beta dU^+(z_+), \quad (3.20)$$

avec $M^i = Q_z^i S_{CC}^i Q_i^z$, et Q_i^z les vecteurs propagation de la hauteur z jusqu'à l'interface i .

Les équations 3.18-3.20 peuvent s'écrire :

$$M^\gamma dU^-(z_-) + d\Pi(z) = dU^+(z_+), \quad (3.21)$$

et

$$M^\beta dU^+(z_+) + d\Pi(z) = dU^-(z_-). \quad (3.22)$$

La contribution de chaque sous-couche est ainsi calculée avec ces équations :

$$dU^+(z_+) = [\mathbb{I} - M^\gamma M^\beta]^{-1} [M^\gamma + \mathbb{I}] d\Pi(z), \quad (3.23)$$

$$dU^-(z_-) = [\mathbb{I} - M^\beta M^\gamma]^{-1} [M^\beta + \mathbb{I}] d\Pi(z); \quad (3.24)$$

avec \mathbb{I} la matrice unité.

Calcul de la propagation du champ généré dans toute la structure

Enfin, les champs générés totaux sont calculés à partir de $E_C^{\omega_3}$ le champ linéaire exalté ω_3 et par intégration de dU^+ et dU^- sur toutes les sous-couches :

$$\mathcal{E}^+(z) = E_C^{\omega_3} \int_z Q_z^{z'} dU^+(z') dz', \quad (3.25)$$

$$\mathcal{E}^-(z) = E_C^{\omega_3} \int_z Q_z^{z'} dU^-(z') dz'. \quad (3.26)$$

Ce champ généré, une fois calculé dans la couche non linéaire, peut être propagé dans les autres couches avec les matrices de propagation. On obtient donc un champ non linéaire propagé et extrait de la structure. C'est ce champ extrait qui nous intéresse, et qui sera utilisé pour calculer l'efficacité de la structure.

3.2.2 Évaluation du code

Le calcul d'effets non linéaires avec une polarisation selon z n'a pas été beaucoup étudié dans la communauté. J'ai donc peu d'éléments de comparaison.

Vérification de l'équation de Maxwell Faraday

Pour valider le code, j'ai d'abord vérifié qu'une fois le champ non linéaire calculé et propagé dans la structure, il vérifiait encore les équations de Maxwell. J'ai donc testé l'équation de Maxwell Faraday pour tous les points de la structure (carte x, z). On voit sur la figure 3.7 que le nombre de points ne respectant pas cette équation (erreur normalisée supérieure à 0.1) est de seulement 4 sur un million de points. Ces artefacts sont suffisamment marginaux pour ne pas altérer les résultats. On peut donc considérer que l'équation de Maxwell Faraday est vérifiée.

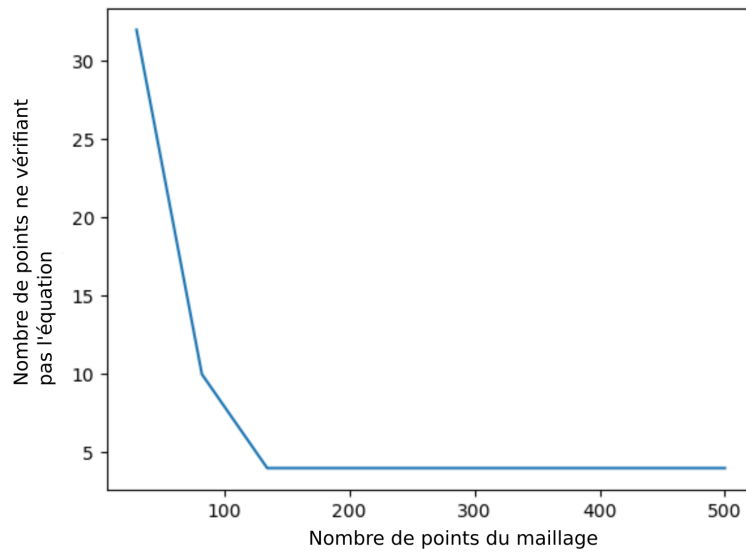


FIGURE 3.7 – Test de l'équation de Maxwell Faraday : Nombre de points de la carte en x et z ayant une erreur supérieure à 0.1, en fonction du nombre de points du maillage en x .

Test de convergence

Un deuxième point de vérification est le test de la convergence du code. La convergence de BMM a été testée plusieurs fois, à chaque ajout de fonctionnalités.¹² Comme j'y ai ajouté le calcul du champ généré par la polarisation non linéaire selon z , il faut une nouvelle fois tester la convergence.

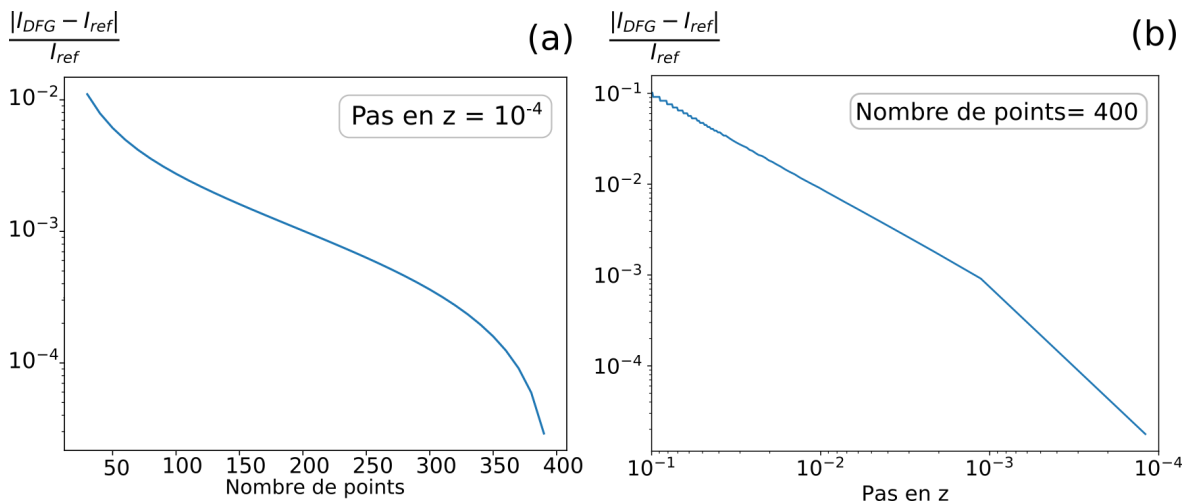


FIGURE 3.8 – Test de convergence du code pour le P_z : Erreur relative sur l'intensité émise par rapport à une valeur de référence calculée avec 400 points et un pas en z de 10^{-4} , pour un réseau de barreaux de GaAs de période $d = 4.9 \mu\text{m}$ et de section $0.5d$. (a) En fonction du nombre de points, avec un pas en z de 10^{-4} , (b) En fonction du pas en z avec un nombre de points de 400.

On teste la convergence du code en faisant varier les deux paramètres de maillage, à savoir selon x (nombre de points) et selon z (pas en z dans la couche non linéaire). Ici le nombre de points correspond aux nombre de nœuds du maillage entre chaque saut de permittivité. Le pas en z correspond au maillage réalisé dans la couche de matériau non linéaire. Le test est réalisé pour le calcul de la polarisation non linéaire selon z avec des B-splines de degré 5, pour un réseau de GaAs dans l'air. Les courbes de convergence pour les deux

¹²BOUCHON, PARDO, HAIDAR et PELOUARD, « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation »; HÉRON, PARDO, BOUCHON, PELOUARD et HAIDAR, « Modal method for second harmonic generation in nanostructures ».

types de maillage ont été tracées sur la figure 3.8. On y voit que l'erreur par rapport à une référence (400 points en x et pas en z de 10^{-4}) diminue lorsque l'on resserre le maillage, passant en dessous de 10^{-4} .

Le calcul du champ généré par le P_z fait appel à la dérivée selon x du champ E_x (eq. 3.17). Cette dérivée présente des problèmes de conditionnement, ce qui peut altérer la convergence. Une manière de remédier à cela serait d'implémenter la méthode de Galerkin,¹³ qui consiste à réaliser une intégration sur les B-splines, au lieu d'une interpolation.

Comparaison avec la littérature

Il y a peu d'études de la polarisation selon z dans la littérature. Cependant, la publication de De Ceglia *et al.*¹⁴ présente une structure générant de la SHG avec une onde incidente TE à $1.064 \mu\text{m}$ dans un cristal de GaAs structuré en réseau. Cela implique que le cristal est orienté (111) et que la polarisation non linéaire créée est selon z . J'ai donc pu simuler la réponse de cette structure et calculer son efficacité SHG à 532 nm . L'efficacité en fonction de l'épaisseur de la structure est tracée sur la figure 3.9. Elle est très similaire à celle présentée dans la publication. Le code non linéaire avec la polarisation selon z est donc vérifié.

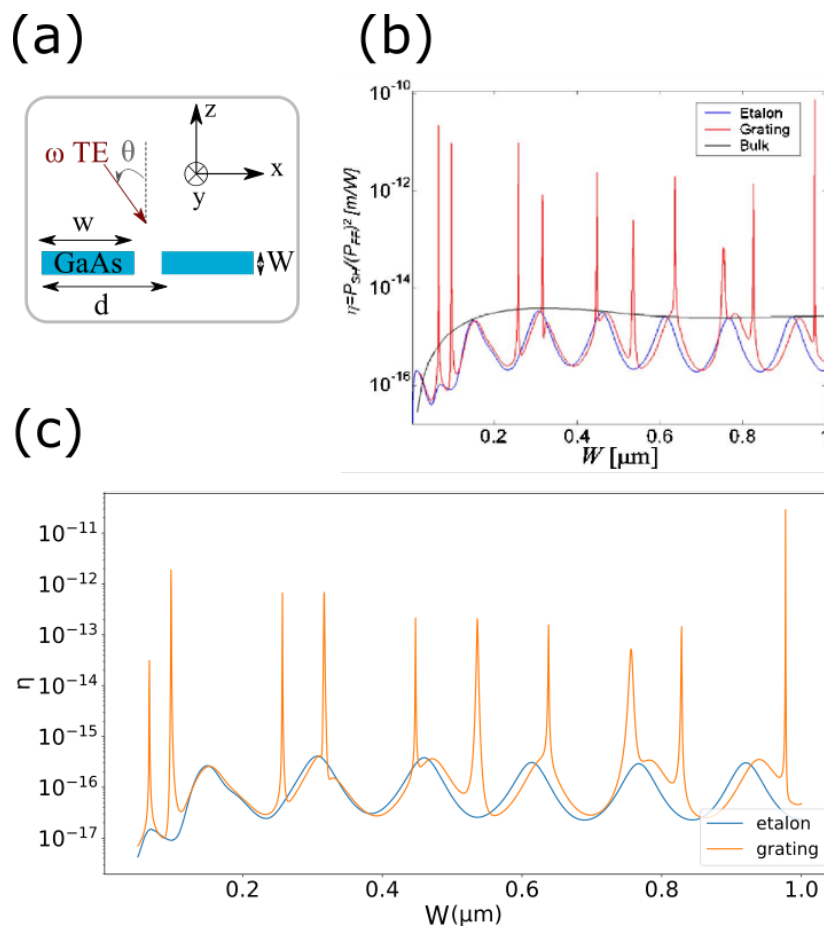


FIGURE 3.9 – Calcul de l'efficacité transmise un réseau de GaAs entouré d'air : (a) Structure : La période du réseau est de 500 nm et la largeur des barreaux est de 468 nm . L'onde TE à $1.064 \mu\text{m}$ arrive avec une incidence de 10° . (b) Efficacité présentée par De Ceglia *et al.*¹⁵ L'efficacité est calculée en fonction de l'épaisseur W des barreaux. L'efficacité du réseau (grating) est comparée à l'efficacité d'un étalon (couche de GaAs non structurée de la même épaisseur). (c) Efficacité calculée avec BMM.

¹³Gérard GRANET. « Efficient implementation of B-spline modal method for lamellar gratings ». *Journal of the Optical Society of America A* 31.2 (2014), p. 332-337.

¹⁴DE CEGLIA, D'AGUANNO, MATTIUCCI, VINCENTI et SCALORA, « Enhanced second-harmonic generation from resonant GaAs gratings ».

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté un module permettant de calculer la génération d'effets non linéaires d'ordre 2 dans des métasurfaces, et l'ajout du calcul du P_z que j'ai réalisé. Ce nouveau calcul me permet d'étudier de nouvelles structures particulièrement efficaces avec le P_z . Toutes les simulations présentées dans la suite manuscrit ont donc été réalisées avec BMM, hormis celles en deux dimensions présentées en section 7.4.

Comme je l'ai dit plus haut, l'implémentation de la méthode de Galerkin serait une piste d'amélioration de la convergence intéressante. Pour aller plus loin, on peut également envisager d'implémenter BMM en 2D.¹⁶ Pour l'instant, les simulations en 2D sont faites avec le programme Reticolo,¹⁷ seulement en linéaire. BMM 2D est en train d'être implémenté par Denis Langevin, doctorant à l'ONERA. Il restera à adapter le module non linéaire.

Une autre piste d'amélioration est l'implémentation du calcul du troisième ordre, initiée par Tomasz Matthia pendant son stage. Il a ainsi implémenté la THG, et commencé l'ajout du calcul de l'effet Kerr. Ce processus n'est pas un effet de conversion de fréquence, mais influe sur l'indice optique du matériau en fonction de l'intensité incidente. Le calcul de cet effet nécessite donc une boucle comprenant le calcul de la différence d'indice et du champ modifié en conséquence.

¹⁶Michael WALZ, Thomas ZEBROWSKI, Jens KÜCHENMEISTER et Kurt BUSCH. « AB-Spline Modal Method in Comparison to the Fourier Modal Method ». *AIP Conference Proceedings*. T. 1398. 1. American Institute of Physics. 2011, p. 177-179.

¹⁷Jean-Paul HUGONIN et Philippe LALANNE. « Reticolo software for grating analysis ». *Institut d'Optique, Orsay, France* (2005).

Deuxième partie

Résonateur guide d'onde avec GaAs

Cette partie est consacrée à la nanoantenne que j'ai majoritairement étudiée pendant ma thèse, et sur laquelle j'ai étudié les différents phénomènes physiques à l'oeuvre dans la génération efficace d'effets non linéaires. Il s'agit d'un résonateur de type guide d'onde, avec du GaAs comme matériau non linéaire. Dans un premier temps je décrirai le résonateur et les phénomènes y ayant lieu, et je présenterai l'efficacité théorique obtenue en simulations. Les résultats que j'ai obtenus m'ont permis de concevoir un échantillon, qui a été fabriqué et que j'ai caractérisé. Nous verrons donc dans un second temps la caractérisation expérimentale de ce résonateur.

Chapitre

4

Conception d'un résonateur pour la SHG et DFG

Sommaire

4.1 Présentation du résonateur guide d'onde et démarche	38
4.2 Les différents phénomènes de résonances	40
4.2.1 Résonance Fabry Perot verticale	40
4.2.2 Résonance Fabry Perot horizontale	41
4.2.3 Résonance de modes guidés	43
4.2.4 Résonateur multirésonant	44
4.3 Génération de DFG	45
4.3.1 Comportement linéaire	45
4.3.2 Génération de la polarisation non linéaire	47
4.3.3 Extraction du champ généré	48
4.3.4 Efficacité non linéaire	50
4.3.5 Tolérances de dimensionnement	51
4.4 Résonateur guide d'onde multibarreaux	52
4.4.1 La résonance de nano-Fabry Perot couplés	53
4.4.2 Génération de DFG	54
4.4.3 Génération de SHG	55
4.5 Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre	56

Dans ce chapitre, je vais présenter l'étude théorique du résonateur guide d'onde, que j'ai principalement étudié pendant ma thèse, et que j'ai mené jusqu'à la démonstration expérimentale. Le concept de résonateur guide d'onde a d'abord été étudié dans l'équipe en transmission, en tant que filtres à résonances de modes guidés,¹ puis en réflexion pour l'absorption à deux photons.² Enfin, Sébastien Héron a présenté dans sa thèse un dimensionnement pour le mélange à trois ondes, sans modélisation non linéaire.³

En effet, l'intérêt de ce résonateur est qu'il permet d'exalter la polarisation non linéaire selon z . Comme on l'a vu dans le chapitre 2, quelques équipes ont démontré des efficacités très élevées avec cette polarisation P_z . La simulation non linéaire de cette configuration a pu être réalisée suite à l'implémentation du calcul du P_z dans BMM (voir le chapitre 3).

Dans ce chapitre je présente donc une structure permettant la génération efficace de P_z , par différence de fréquence. Nous verrons que le processus de génération se fait en deux étapes : d'abord la génération d'une polarisation non linéaire, reposant sur une bonne colocalisation des champs pompes, puis l'extraction du champ généré en dehors de la structure.

Dans un premier temps, je présenterai la structure et les différentes résonances y ayant lieu, puis je détaillerai les différents phénomènes qui amènent à la génération efficace du P_z .

Enfin, je présenterai une variante à ce résonateur, apportant des améliorations.

¹SAKAT, VINCENT, GHENUCHE, BARDOU, COLLIN, PARDO, PELOUARD et HAIDAR, « Guided mode resonance in subwavelength metallo-dielectric free-standing grating for bandpass filtering ».

²Benjamin PORTIER, Benjamin VEST, Fabrice PARDO, Nicolas PÉRÉ-LAPERNE, Emilie STEVELER, Julien JAECK, Christophe DUPUIS, Nathalie BARDOU, Aristide LEMAITRE, Emmanuel ROSENCHER et al. « Resonant metallic nanostructure for enhanced two-photon absorption in a thin GaAs pin diode ». *Applied Physics Letters* 105.1 (2014), p. 011108.

³HÉRON, « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ».

4.1 Présentation du résonateur guide d'onde et démarche

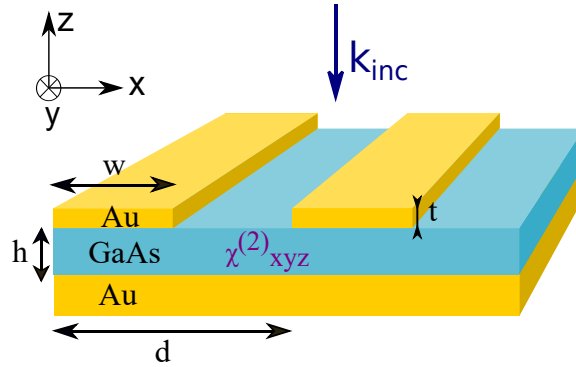


FIGURE 4.1 – Structure du résonateur guide d'onde, composé d'une couche d'or, d'une couche de GaAs (épaisseur h , susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}$) et d'un réseau de barreaux d'or (période d , épaisseur t et largeur w).

La nanoantenne étudiée dans ce chapitre est composée d'une couche de GaAs avec une susceptibilité non linéaire $\chi^{(2)}$ (épaisseur h), encapsulée entre une couche d'or, qui est assez épaisse pour être opaque optiquement et est considérée comme une couche semi-infinie pour les simulations, et un réseau de barreaux d'or (période d , épaisseur t et largeur w). Elle est décrite en Fig. 4.1. Son spectre de réflectivité est présenté en figure 4.2. On y voit plusieurs résonances, qui sont dues à différents phénomènes physiques en jeu dans la structure. Ces différents types de résonances sont décrits en section 4.2.

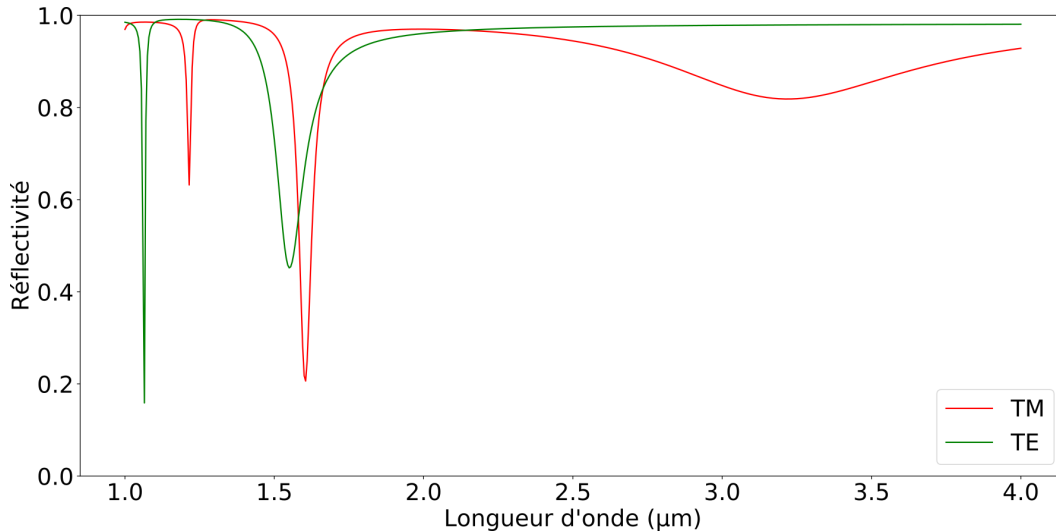


FIGURE 4.2 – Spectre de réflectivité du résonateur guide d'onde en polarisation TM (courbe rouge) et en polarisation TE (courbe verte). Les paramètres de la structure sont : $d = 456$ nm, $w = 220$ nm, $t = 40$ nm, $h = 145$ nm.

La couche d'arséniure de gallium présente une susceptibilité d'ordre 2 $\chi_{xyz}^{(2)} = 150$ pm/V,⁴ seuls ses coefficients xyz sont non nuls, en raison des symétries du cristal (type zinc blende, classe $\bar{4}3m$). Le GaAs est orienté (100), ce qui veut dire que les axes optiques et cristallins sont confondus. Les propriétés non linéaires de l'or ne sont pas considérées par la suite, car la susceptibilité non linéaire de l'or est beaucoup plus faible que celle du GaAs.⁵ Comme on l'a vu dans le chapitre 2, le type de cristal détermine les effets non linéaires réalisables. Ils sont décrits pour le GaAs (100) sur la Fig. 4.3. Il est d'abord possible de générer de la

⁴SKAULI et al., « Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned GaAs and demonstration of highly efficient second-harmonic generation ».

⁵WANG, RODRIGUEZ, ALBERS, AHORINTA, SIPE et KAURANEN, « Surface and bulk contributions to the second-order nonlinear optical response of a gold film ».

SHG, avec une pompe TM, donnant un signal TE. En effet, la susceptibilité du GaAs impose une polarisation non linéaire selon y , obtenue en multipliant les composantes x et z de la pompe TM. Il est également possible d'effectuer du mélange à trois ondes, en somme ou différence de fréquences. Ces deux effets ont bien entendu des processus de conversion de fréquence opposés, mais les différentes configurations de polarisations incidentes et sortantes sont identiques. En respectant les spécificités du cristal, on obtient trois configurations. La première fait appel à deux pompes TM (composante E_x de l'une et E_z de l'autre), pour donner un signal TE. Les deux autres configurations donnent un signal TM en faisant appel à une pompe TE et une pompe TM. Dans le premier cas, on génère du P_x avec des composantes pompes E_y et E_z , et dans l'autre on génère du P_z avec des composantes pompes E_y et E_x .

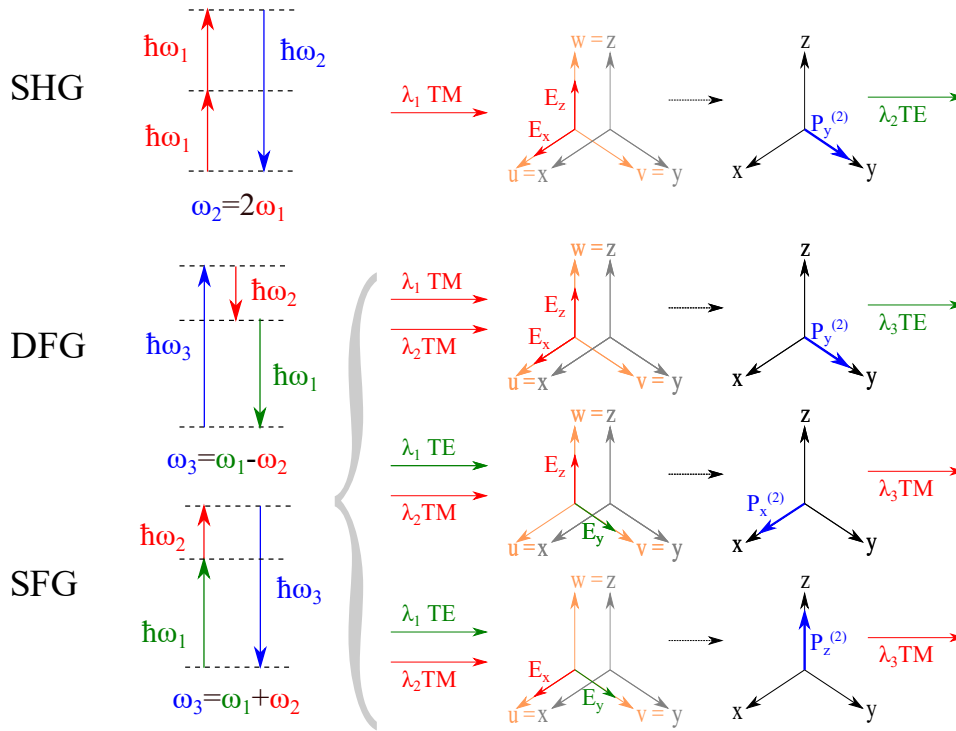


FIGURE 4.3 – Différents effets non linéaires d'ordre 2 dans le GaAs orienté (100). x, y, z sont les axes optiques, et u, v, w sont les axes cristallins. Les différentes possibilités de polarisations d'entrée et sortie sont décrites pour la SHG et pour le mélange à trois ondes qui regroupe la DFG et la SFG.

On remarque que l'on peut générer du P_z par DFG et SFG. Nous allons principalement étudier par la suite la DFG, qui permet d'accéder à des longueurs d'onde plus élevées.

Toutes les simulations de ce chapitre ont été effectuées avec comme modèles pour la permittivité :

- Pour l'or : un modèle de Drude en accord avec les données expérimentales de Palik dans l'infrarouge⁶ :

$$\epsilon_{Au}(\lambda) = 1 - 1/(\lambda_p/\lambda(\lambda_p/\lambda + i\gamma)) \quad (4.1)$$

avec λ en mètres, $\lambda_p = 159$ nm et $\gamma = 0.0075$.

- Pour le GaAs : le modèle empirique de Skauli *et al.*⁷

$$\epsilon_{GaAs}(\lambda) = 1 + 4.372514 + \frac{5.466742\lambda^2}{\lambda^2 - 0.4431307^2} + \frac{0.02429960\lambda^2}{\lambda^2 - 0.8746453^2} + \frac{1.957522\lambda^2}{\lambda^2 - 36.9166^2} \quad (4.2)$$

avec λ en microns.

⁶Edward D PALIK. *Handbook of optical constants of solids*. T. 3. Academic, 1998.

⁷T SKAULI, Paulina S KUO, Konstantin L VODOPYANOV, TJ PINGUET, Ofer LEVI, LA EYRES, James S HARRIS, MM FEJER, B GERARD, L BECOUARN *et al.* « Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics ». *Journal of Applied Physics* 94.10 (2003), p. 6447-6455.

4.2 Les différents phénomènes de résonances

Le résonateur guide d'onde présente différents types de résonances (voir Fig 4.15). Elles sont signes d'une exaltation du champ à la longueur d'onde de résonance, que l'on va exploiter pour générer des effets non linéaires. L'intérêt d'avoir des résonances issues de phénomènes physiques différents est qu'elles ne dépendront pas des mêmes paramètres géométriques de la structure, ce qui rend l'accord plus aisé. En effet, pour exalter des effets non linéaires d'ordre 2, il faut accorder 2 à 3 longueurs d'onde différentes.

Dans cette section nous allons donc voir en détail les caractéristiques des différentes résonances, à savoir leur origine physique ainsi que leur dépendance en fonction des paramètres structuraux.

D'autre part, nous allons voir d'autres caractéristiques qui jouent sur l'efficacité de la génération non linéaire. D'abord, le comportement angulaire est important, car on sait que l'angle d'émission dépend du ou des angles d'incidence (voir la section 2.3.3). Pour plus de simplicité, j'effectue les simulations en incidence normale, ce qui donne un signal au même angle. Cependant, il ne faut pas oublier qu'expérimentalement on travaillera avec un faisceau incident focalisé, ce qui induit un cône de plusieurs angles incidents. Un dernier aspect est important pour la génération non linéaire : il s'agit de l'allure du champ dans la couche de matériau non linéaire. En effet, il est important que le champ soit exalté dans cette couche. La colocalisation des champs pompes est également cruciale, nous y reviendrons en section 4.3.2.

4.2.1 Résonance Fabry Perot verticale

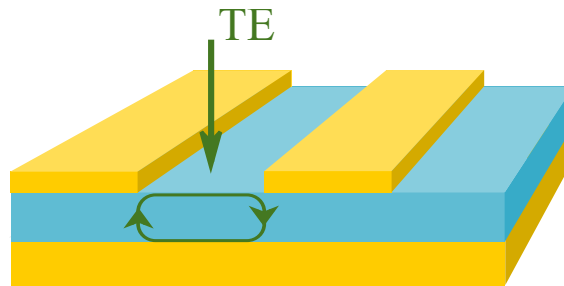


FIGURE 4.4 – Résonance Fabry-Perot dans le guide d'onde.

Notre structure est composée d'un miroir d'or et d'un réseau de barreaux d'or qui agit comme un miroir. Une fois la lumière entrée dans la structure par le réseau, elle subit des réflexions successives entre les deux miroirs qui forment une cavité verticale (voir Fig. 4.4). La résonance apparaît en polarisation TE, avec le champ électrique suivant la direction des barreaux d'or. La figure 4.5(a) présente un spectre de cette résonance. La réflectivité de la résonance tombe presque à 0 et elle a une largeur à mi-hauteur de 166 nm, ce qui donne un facteur de qualité $Q = \frac{\lambda_r}{\Delta\lambda} = 25$. La figure 4.5(b) présente une carte de champ à la longueur d'onde de résonance. On remarque que le champ est concentré dans la couche, et plus particulièrement sous la fente. Cette résonance est donc adaptée aux effets non linéaires.

La longueur d'onde de résonance dépend de la hauteur de la cavité, soit l'épaisseur de GaAs h , ainsi que de l'indice n et des conditions de réflexion de la cavité λ_ϕ :⁸

$$\lambda_r = 2nh + \lambda_\phi \quad (4.3)$$

La figure 4.6(a) montre la dépendance de la résonance en fonction de l'épaisseur de GaAs h . On observe bien la relation linéaire. La figure 4.6(b) montre la dépendance angulaire : cette résonance est stable angulairement jusqu'à une vingtaine de degrés, ce qui est suffisant pour les contraintes expérimentales.

⁸MAKHSIYAN, « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux ».

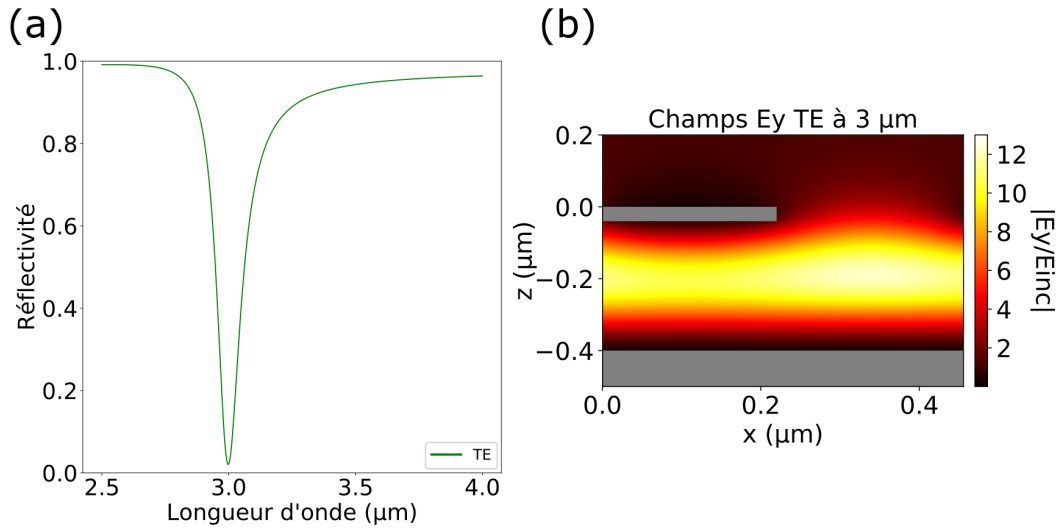


FIGURE 4.5 – (a) Spectre de réflectivité TE de la résonance Fabry Perot verticale. (b) Carte de champ à la longueur d'onde de résonance, pour une période. L'or est représenté en gris. Les paramètres de la structure utilisés pour la simulation sont : $d = 456$ nm, $w = 220$ nm, $t = 40$ nm, $h = 360$ nm.

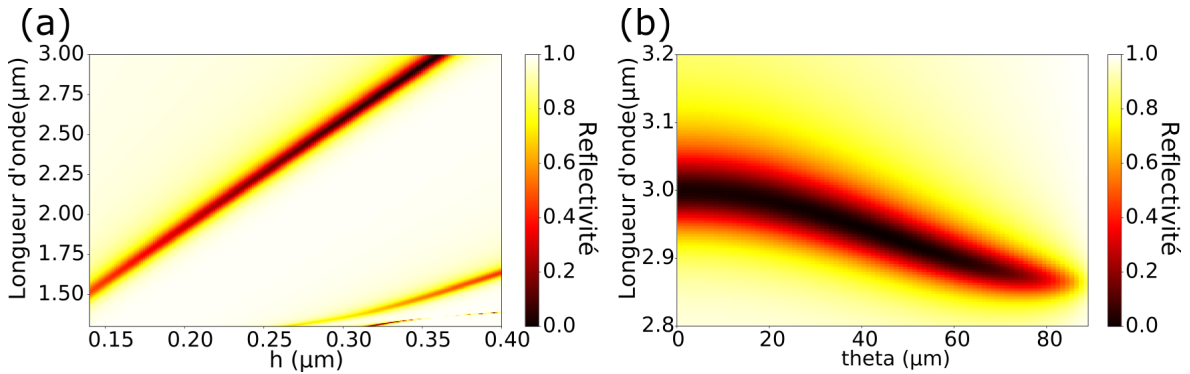


FIGURE 4.6 – (a) Spectre de réflectivité TE de la résonance Fabry Perot verticale en fonction de l'épaisseur de GaAs. (b) Spectre de réflectivité TE en fonction de l'angle d'incidence. Les paramètres de la structure utilisés pour la simulation sont : $d = 456$ nm, $w = 220$ nm, $t = 40$ nm.

4.2.2 Résonance Fabry Perot horizontale

La résonance Fabry Perot horizontale, ou MIM (Métal-Isolant-Métal), résulte du couplage entre les plasmons de surface se propageant aux deux interfaces diélectrique/métal de part et d'autre de la couche de diélectrique, qui doit être d'assez faible épaisseur pour permettre le couplage. Le couplage va modifier l'indice sous le barreau, ce qui va créer une cavité Fabry Perot horizontale (voir Fig. 4.7).⁹ La résonance dépend donc

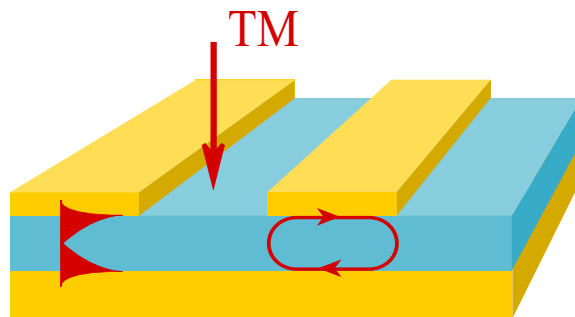


FIGURE 4.7 – Résonance Fabry Perot horizontale dans le guide d'onde.

⁹KOECHLIN, BOUCHON, PARDO, JAECK, LAFOSSE, PELOUARD et HAÏDAR, « Photon sorting in plasmonic multiresonators ».

fortement de la largeur du barreau, tant spectralement qu'en intensité. La figure 4.8 représente le spectre de réflectivité en fonction de la largeur du barreau. On remarque que plus le barreau est large, plus la longueur d'onde de résonance est grande, ainsi que son facteur de qualité. La longueur d'onde de résonance est donnée par cette relation :

$$\lambda_r(m) \simeq \frac{2n_{eff}(w+2\delta)}{m-1/2} \quad (4.4)$$

où δ est l'épaisseur de peau du métal ($\delta = 25$ nm), m est l'harmonique considérée, et n_{eff} est l'indice effectif : $n_{eff} = \sqrt{1 + \frac{2\delta}{h} - \frac{\epsilon_d}{\epsilon_m}}$, avec ϵ_d la permittivité du diélectrique (ici le GaAs) et ϵ_m la permittivité du métal (ici l'or).

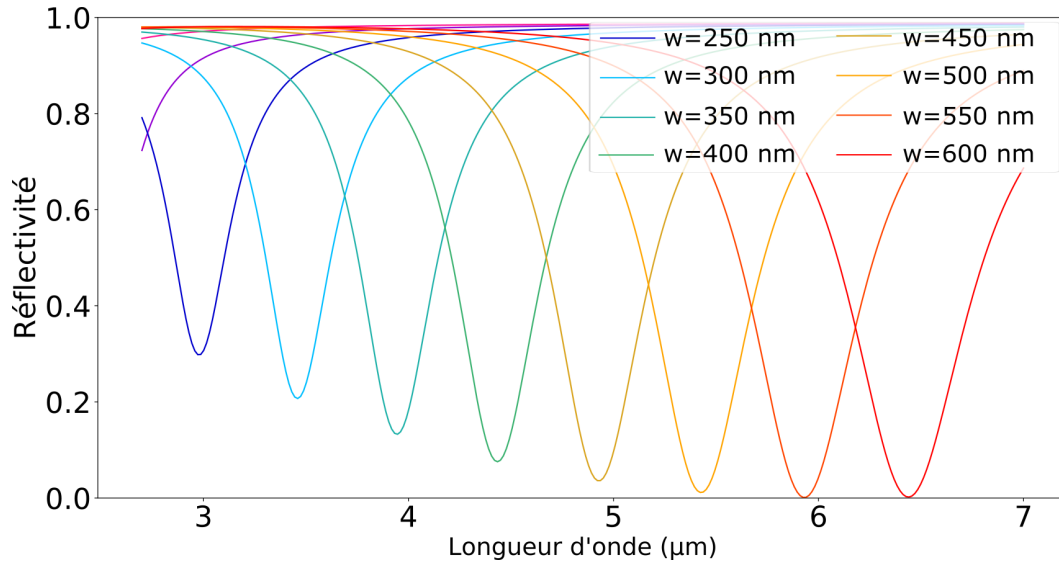


FIGURE 4.8 – Spectres de la résonance MIM en fonction de la largeur des barreaux. Les autres paramètres de la structure sont : $f = d - w = 236$ nm, $t = 40$ nm, $h = 50$ nm.

La figure 4.9(a) présente la carte de champ de la résonance Fabry Perot horizontale pour un barreau large de 600 nm. On remarque que le champ est fortement exalté, mais sur les côtés du barreau. Il y a donc peu d'exaltation dans la couche de GaAs. Ce n'est donc pas optimal pour la génération d'effets non linéaires. Toutefois, l'exaltation est bien supérieure aux autres résonances (facteur d'exaltation 10 fois plus élevé). Sur la figure de tolérance angulaire 4.9(b), on voit que la résonance est très stable angulairement.

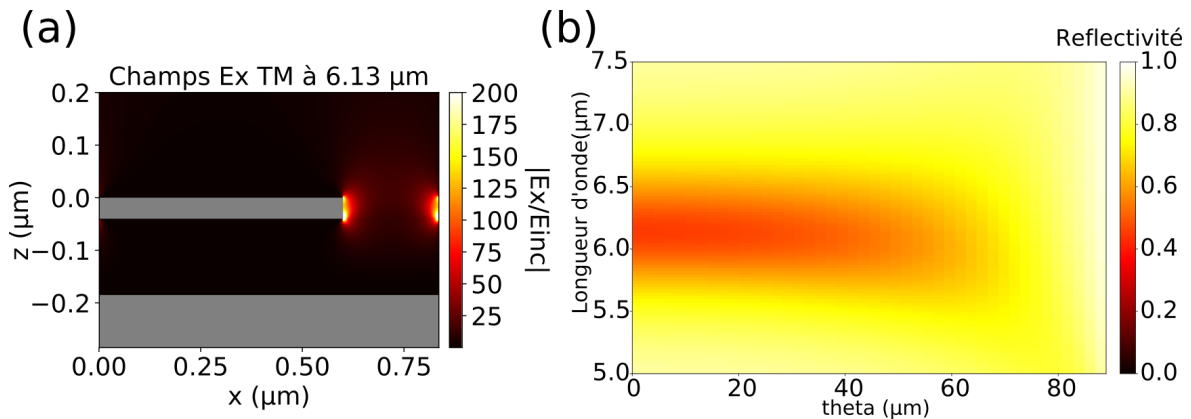


FIGURE 4.9 – (a) Carte de champ de la résonance MIM E_x à 6.13 μm avec les paramètres : $w = 600$ nm, $d = 836$ nm, $t = 40$ nm, $h = 145$ nm, (b) Spectre de réflectivité TM en fonction de l'angle d'incidence.

4.2.3 Résonance de modes guidés

La résonance de modes guidés se propage horizontalement dans le guide d'onde, par réflexions totales successives.¹⁰ Dans une guide d'onde classique, la lumière est injectée par le côté du guide, avec un angle supérieur à celui de la réflexion totale, ce qui permet la propagation. Dans notre cas, la lumière vient du dessus de la structure. Dans cette configuration, quel que soit l'angle d'incidence, il est totalement impossible de permettre une réflexion totale dans le guide par réfraction entre l'air et le GaAs. Le réseau de barreaux d'or va lever ce verrou, en permettant la création d'ordres diffractés dans le guide (voir Fig. 4.10). En effet, les ordres $-1, 0$ et $+1$ vont pouvoir créer ces modes. Cependant, on cherche à optimiser l'injection de la lumière dans la structure, on veut donc interdire la diffraction par réflexion sur le réseau.¹¹ Cela amène à une contrainte sur la période du réseau¹¹ :

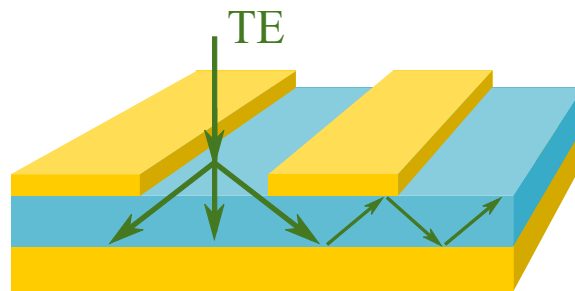


FIGURE 4.10 – Résonance de modes guidés dans le guide d'onde.

$$\sin \theta = \sin \theta_i - \frac{m\lambda}{d} > 1 \quad (4.5)$$

avec n l'indice du GaAs.

Ce qui en incidence normale revient à :

$$d < \lambda < nd \quad (4.6)$$

Nous avons donc un encadrement de la période. Il faut également s'assurer que les modes guidés puissent se propager sans phénomène de coupure, c'est à dire que l'épaisseur de GaAs soit suffisamment grande pour respecter la condition de phase :

$$2k_z(h + 2\delta) = 2\pi \quad (4.7)$$

Ce qui correspond à une épaisseur de coupure de :

$$h > \frac{\lambda}{2n} - 2\delta. \quad (4.8)$$

La figure 4.11(a) présente la carte de champ d'un mode guidé TE. Le champ est exalté dans la couche, sous le barreau et sous la fente. C'est un avantage car cela maximise les chances de colocalisation avec une autre résonance. Le spectre de réflectivité est présenté Fig. 4.11(b). La résonance tombe presque à 0 et elle est très fine : sa largeur à mi-hauteur est de seulement 8 nm, ce qui donne un facteur de qualité de 133.

La figure 4.12(a) présente le spectre de réflectivité du mode guidé TE en fonction de la période du réseau. On voit que la longueur d'onde de résonance est très dépendante de la période. La figure 4.12(b) présente la tolérance angulaire de la résonance. On voit que la résonance se sépare en deux au bout de quelques degrés. Cette instabilité peut être problématique pour la génération d'effets non linéaires.

¹⁰Chaoyang WEI, Shijie LIU, Degang DENG, Jian SHEN, Jianda SHAO et Zhengxiu FAN. « Electric field enhancement in guided-mode resonance filters ». *Optics Letters* 31.9 (2006), p. 1223-1225.

¹¹HÉRON, « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ».

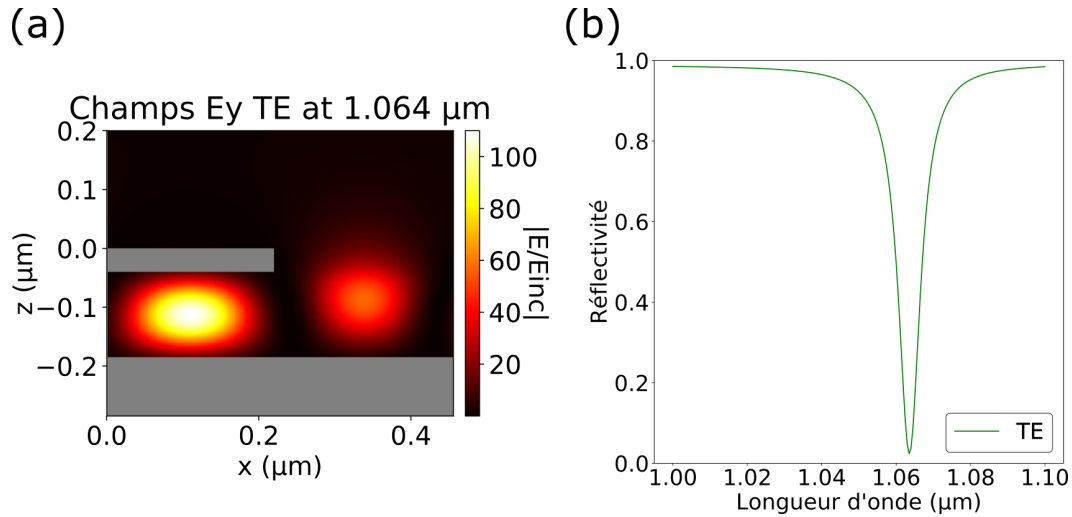


FIGURE 4.11 – (a) Carte de champ du mode guidé TE à 1.064 μm , pour une période. L'or est représenté en gris. (b) Spectre de réflectivité TE avec la résonance de modes guidés. Les paramètres de la structure utilisés pour la simulation sont : $d = 456 \text{ nm}$, $w = 220 \text{ nm}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 145 \text{ nm}$

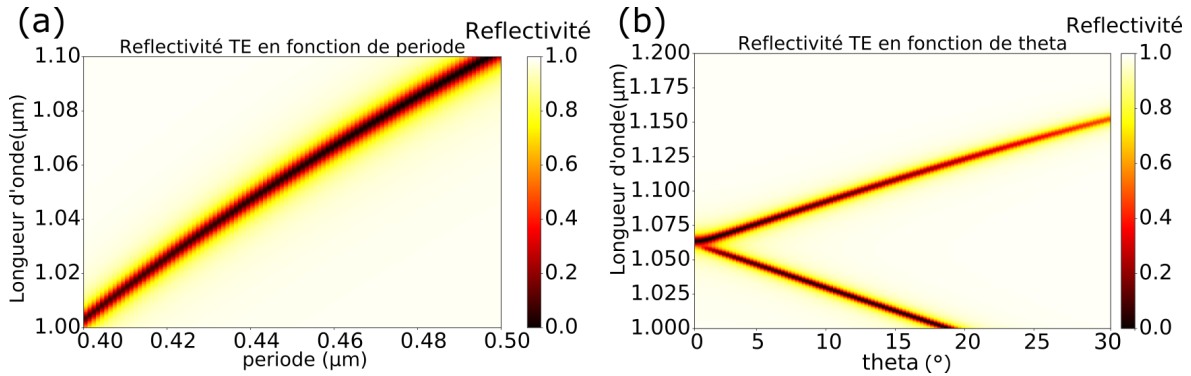


FIGURE 4.12 – Spectre de réflectivité du mode guidé TE en fonction de (a) la période du réseau métallique (b) de l'angle d'incidence. Les paramètres de la structure utilisés pour la simulation sont : $w = 220 \text{ nm}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 145 \text{ nm}$.

4.2.4 Résonateur multirésonant

Le tableau 4.1 présente un résumé des caractéristiques des différentes résonances. On peut voir ainsi que l'on peut accorder les résonances presque indépendamment des autres en optimisant le bon paramètre. Par exemple, la largeur des barreaux w a une grande influence sur la longueur d'onde de résonance Fabry Perot horizontale, alors que la résonance de modes guidés n'est pas impactée. On peut également se servir du fait que les paramètres h et d font évoluer les longueurs d'onde des résonances dans des sens différents.

Résonance	Dépendance en w	Dépendance en h	Dépendance en d	Tolérance angulaire	Allure du champ
Fabry Perot horizontale	Augmente fortement	Augmente fortement	Baisse légèrement	Stable	
Fabry Perot verticale	Baisse légèrement	Augmente fortement	Augmente légèrement	Stable jusqu'à 20°	
Modes guidés	Stable	Augmente légèrement	Augmente fortement	Instable	

TABLEAU 4.1 – Résumé des caractéristiques des résonances.

A présent on peut regarder les résonances présentes dans le résonateur décrit Fig. 4.1. La figure 4.13 présente les cartes de tolérances angulaires de la structure, où la réflectivité est tracée en fonction de l'angle d'incidence, pour les deux polarisations. On y repère plusieurs résonances : d'abord en TE (Fig. 4.13 (a)), on voit une résonance de modes guidés qui commence autour de 1 μm et se sépare en deux branches lorsque l'angle augmente. On voit également une résonance de Fabry-Perot verticale qui est très stable angulairement. En TM (Fig. 4.13 (b)), on voit autour de 1.5 μm une résonance qui a le comportement des modes guidés, avec une meilleure tolérance angulaire. Enfin, vers 3 μm , on aperçoit une faible résonance (MIM).

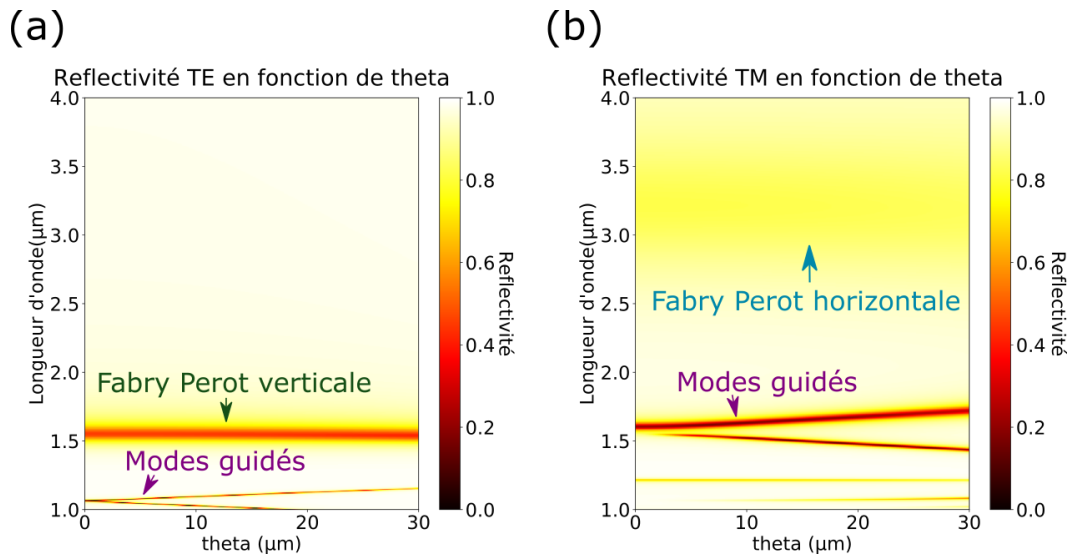


FIGURE 4.13 – Spectres de réflectivité en fonction de l'angle d'incidence, en TE (a) et TM (b). Les paramètres de la structure sont : $d = 456 \text{ nm}$, $w = 220 \text{ nm}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 145 \text{ nm}$.

4.3 Génération de DFG

Dans cette section nous allons voir les règles de conception d'un résonateur guide d'onde permettant de générer de la DFG.

4.3.1 Comportement linéaire

Comme expliqué en figure 4.3, la DFG permet de générer toutes les polarisations possibles. Ici nous allons nous concentrer sur le schéma $\text{TM} + \text{TE} \rightarrow \text{TM}$, qui permet de générer soit du P_x soit du P_z . L'objectif étant de fabriquer un échantillon et de le caractériser, le choix des longueurs d'onde de travail est limité par des contraintes expérimentales. J'ai donc cherché à concevoir une structure qui respecte l'accord de modes en DFG suivant :

$$\frac{1}{\underbrace{1.064 \mu\text{m}}_{\text{TE}}} - \frac{1}{\underbrace{1.6 \mu\text{m}}_{\text{TM}}} = \frac{1}{\underbrace{3.17 \mu\text{m}}_{\text{TM}}} \quad (4.9)$$

Il convient donc d'utiliser la résonance TE autour de 1 μm , et les résonances TM autour de 1.5 μm et 3 μm . Ces résonances viennent de phénomènes différents, et ne dépendent donc pas des mêmes paramètres, ce qui me permet d'ajuster les dimensions de la structure pour les accorder.

Pour placer la résonance TE à 1.064 μm , il faut respecter les équations 4.6 et 4.8, qui correspondent dans notre cas à :

$$322 \text{ nm} < d < 1064 \text{ nm} \quad (4.10)$$

et

$$h > 111 \text{ nm} \quad (4.11)$$

Pour placer la résonance MIM à $3.17 \mu\text{m}$, on voit Fig. 4.8 et avec l'équation 4.4, qu'il faut fixer w autour de 200 nm . On remarque que la résonance est optimisée pour une épaisseur de GaAs assez faible (autour de 50 nm), qui est inférieure à l'épaisseur de coupure des modes guidés (eq 4.8). On ne peut donc pas optimiser parfaitement cette résonance.

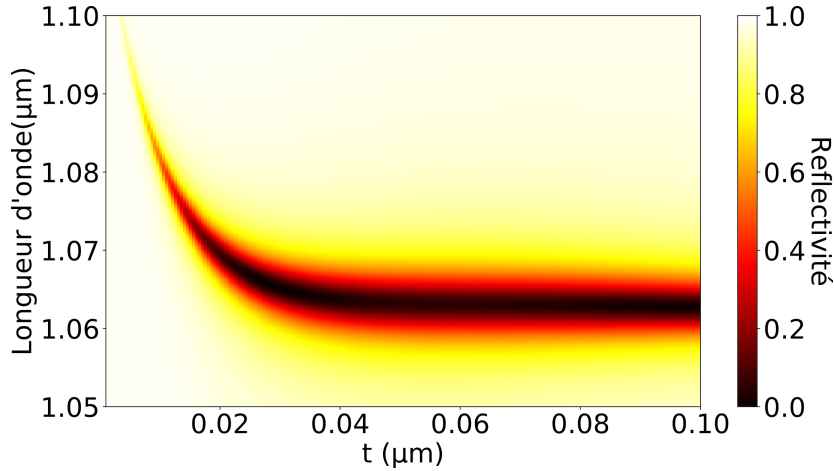


FIGURE 4.14 – Spectre de réflectivité du mode guidé TE en fonction de l'épaisseur des barreaux d'or t . Les paramètres de la structure utilisés pour la simulation sont : $w = 220 \text{ nm}$, $d = 456 \text{ nm}$, $h = 145 \text{ nm}$.

Après optimisation on arrive à respecter l'accord de modes avec les paramètres suivants : $d = 456 \text{ nm}$, $w = 220 \text{ nm}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 145 \text{ nm}$. L'épaisseur t des barreaux d'or n'a pas une grande influence sur les résonances, elle doit seulement être supérieure à l'épaisseur de peau de l'or. On peut voir cela sur la figure 4.14 qui représente le spectre de réflectivité TE en fonction de t : la longueur d'onde de résonance ne varie plus après 40 nm .

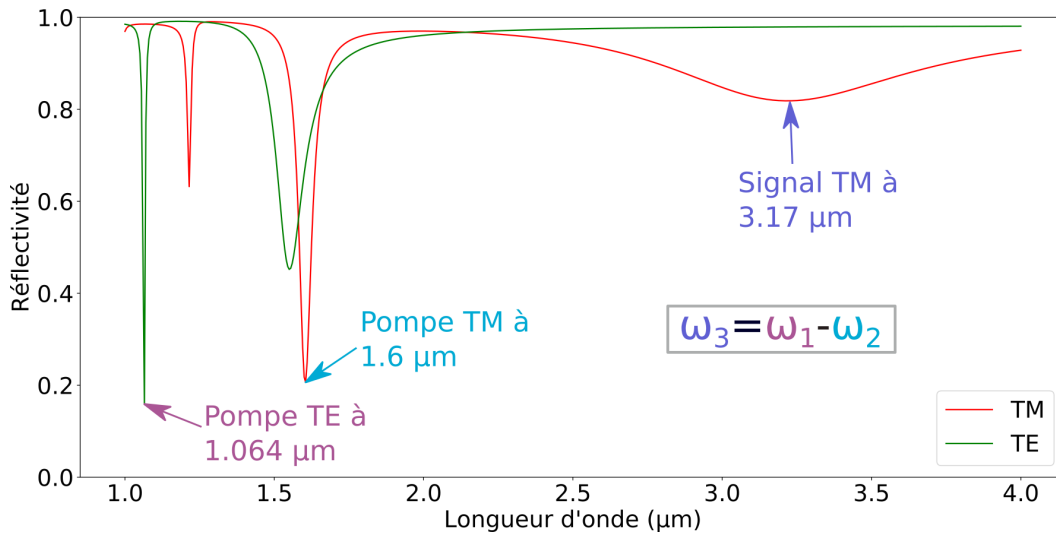


FIGURE 4.15 – Spectre de réflectivité du résonateur guide d'onde en polarisation TM (courbe rouge) et en polarisation TE (courbe verte). Les paramètres de la structure sont : $d = 456 \text{ nm}$, $w = 220 \text{ nm}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 145 \text{ nm}$. Les résonances utilisées pour la DFG sont indiquées.

La figure 4.15 présente le spectre de réflectivité de la structure simulée avec BMM, dans les deux polarisations.

Les cartes des champs à ces longueurs d'onde sont représentées Fig. 4.16. Les cartes (a) et (b) correspondent aux champs pompes impliqués dans la génération de la polarisation non linéaire, et la carte (c)

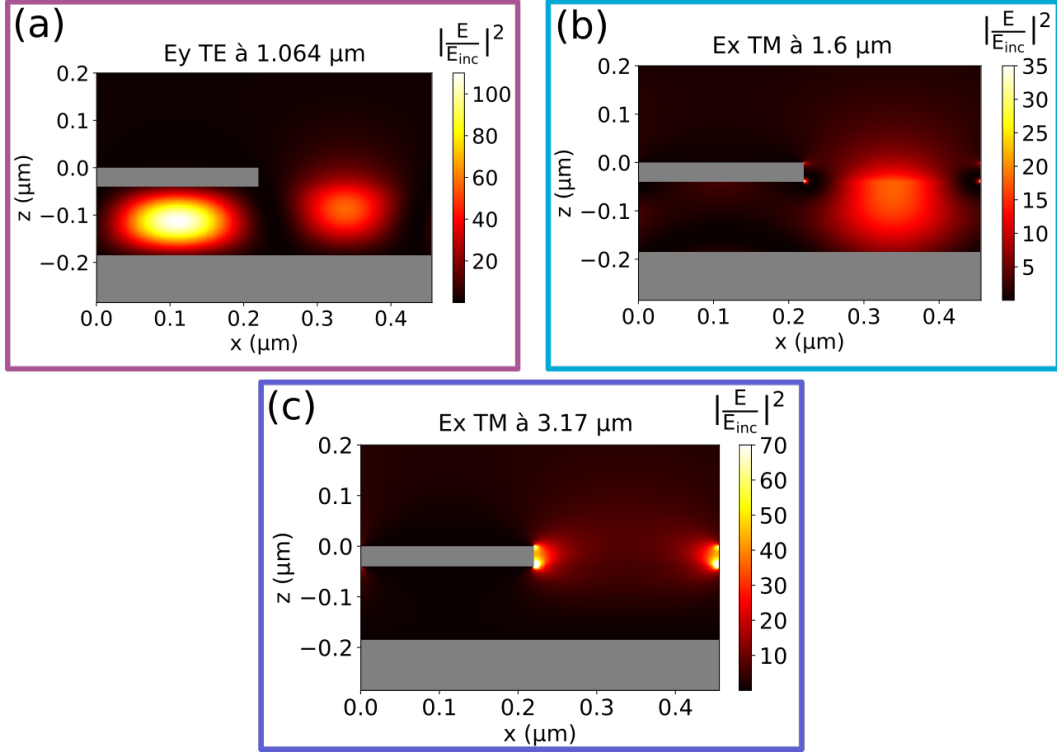


FIGURE 4.16 – Cartes de champs aux longueurs d’onde mises en jeu : (a) Champs pompe TE à 1.064 μm , (b) Champs pompe TM à 1.6 μm et (c) Champs à la longueur d’onde signal à 3.17 μm . Les zones contenant de l’or sont représentées en gris, pour une période. Les paramètres de la structure sont : $d = 456$ nm, $w = 220$ nm, $t = 40$ nm, $h = 145$ nm.

représente le champ linéaire qui serait exalté si l’on envoyait une onde incidente à 3.17 μm , qui est la longueur d’onde signal dans notre cas. On observe bien une forte exaltation du champ électrique aux trois longueurs d’ondes. Aux longueurs d’onde pompes, cette exaltation servira à créer la polarisation non linéaire. Pour la longueur d’onde signal, on verra en section 4.3.3 qu’elle servira à une bonne extraction du signal généré dans la structure.

4.3.2 Génération de la polarisation non linéaire

La première étape dans la génération d’un champ non linéaire est la création d’une polarisation non linéaire. Dans notre cas (DFG avec une pompe TE et une pompe TM), il existe deux directions de polarisation possibles, décrites par ces équations :

$$\mathcal{P}_x^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 - \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_y(\omega_1) \mathcal{E}_z(\omega_2) \quad (4.12)$$

$$\mathcal{P}_z^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 - \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_y(\omega_1) \mathcal{E}_x(\omega_2) \quad (4.13)$$

La figure 4.17 présente les cartes de polarisation normalisées dans les deux cas. La normalisation se fait par rapport à la polarisation non linéaire qui serait générée par le champ unitaire incident. On remarque que le P_z est plus fort que le P_x . Si l’on intègre cette polarisation normalisée dans la couche, selon les équations 4.14 et 4.15, on obtient 202 μm pour le P_z , et seulement 0.09 μm pour le P_x .

$$P_{xnorm} = \frac{1}{d} \int_{z_1}^{z_2} \int_{x=0}^{x=d} \frac{E_y E_z}{E_{inc}^2} dx dz = 0.09 \mu\text{m} \quad (4.14)$$

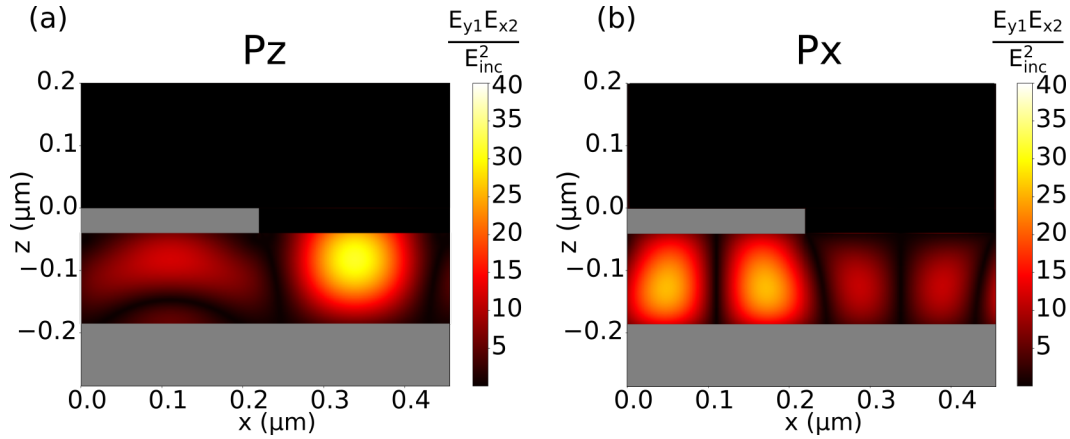


FIGURE 4.17 – Carte de la polarisation non linéaire normalisée selon les équations 4.12 et 4.13 dans les deux configurations possibles : (a) P_z , (b) P_x . L'intégration dans la couche de GaAs vaut 202 pour le P_z , et seulement 0.09 pour le P_x .

$$P_{znorm} = \frac{1}{d} \int_{z_1}^{z_2} \int_{x=0}^{x=d} \frac{E_y E_x}{E_{inc}^2} dx dz = 202 \mu\text{m} \quad (4.15)$$

z_1 et z_2 sont les limites en z de la couche de GaAs.

La polarisation selon z est donc plus forte que selon x . En réalité, les deux polarisations sont créées, mais celle selon x est négligeable.

Dans tout le manuscrit, c'est cette polarisation normalisée que j'appelle "colocalisation". En fait, cette quantité dépend de la multiplication des champs pompes dans la couche non linéaire, donc de la colocalisation spatiale des champs, mais également leur intensité. J'utiliserai le même terme même en cas de colocalisation "automatique" (comme au chapitre 7 avec le GaN), qui dépend donc surtout de l'intensité des champs. J'ai choisi d'exprimer la colocalisation en μm , c'est-à-dire en normalisant par la période uniquement. Dans la littérature on trouve également une définition de la colocalisation normalisée par le volume non linéaire. Cela reviendrait dans mon cas à normaliser par la période et l'épaisseur de couche non linéaire. Cette manière de procéder est également pertinente, car elle permet d'évaluer la capacité d'un volume non linéaire à concentrer et colocaliser les champs. Cependant, j'ai choisi de normaliser uniquement par la période, car cela permet de mieux évaluer le volume de polarisation non linéaire créé, ce qui a plus de sens d'un point de vue pratique.

La figure 4.18(c) présente une carte du P_z en fonction de d et h . Sont tracées par dessus les minima de réflectivité des deux pompes, dont les cartes sont présentées en Figs. 4.18(a) et (b). La polarisation non linéaire est maximale lorsque les deux pompes présentent un minimum de réflectivité. On observe deux points de fonctionnement où les courbes se rencontrent, donnant une polarisation élevée.

4.3.3 Extraction du champ généré

Le champ non linéaire généré dans la couche de GaAs doit être extrait de la structure à travers le réseau. Une structure qui piège efficacement une onde incidente, est réciproquement capable d'extraire efficacement une onde générée dans la couche. Ce comportement n'est pas intuitif, il peut être compris en écrivant les expressions des ratios de réflectivité et d'extraction à partir des matrices S (décrites dans le chapitre 3) :

$$\text{Réflectivité} = S_{AA}^\alpha + S_{AB}^\alpha (\mathbb{I} - \text{Pr}(\Gamma \text{Pr} S_{BB}^\alpha)^{-1} \text{Pr} \Gamma \text{Pr} S_{BA}^\alpha), \quad (4.16)$$

$$\text{Extraction} = (\text{Réflectivité} - S_{AA}^\alpha) S_{AB}^{\alpha -1} \quad (4.17)$$

où $\Gamma = S_{BB}^\beta + S_{CB}^\beta (\mathbb{I} - \text{Pr}(S_{CC}^\gamma \text{Pr} S_{BB}^\alpha)^{-1} \text{Pr} S_{CC}^\beta \text{Pr} S_{BA}^\alpha)$.

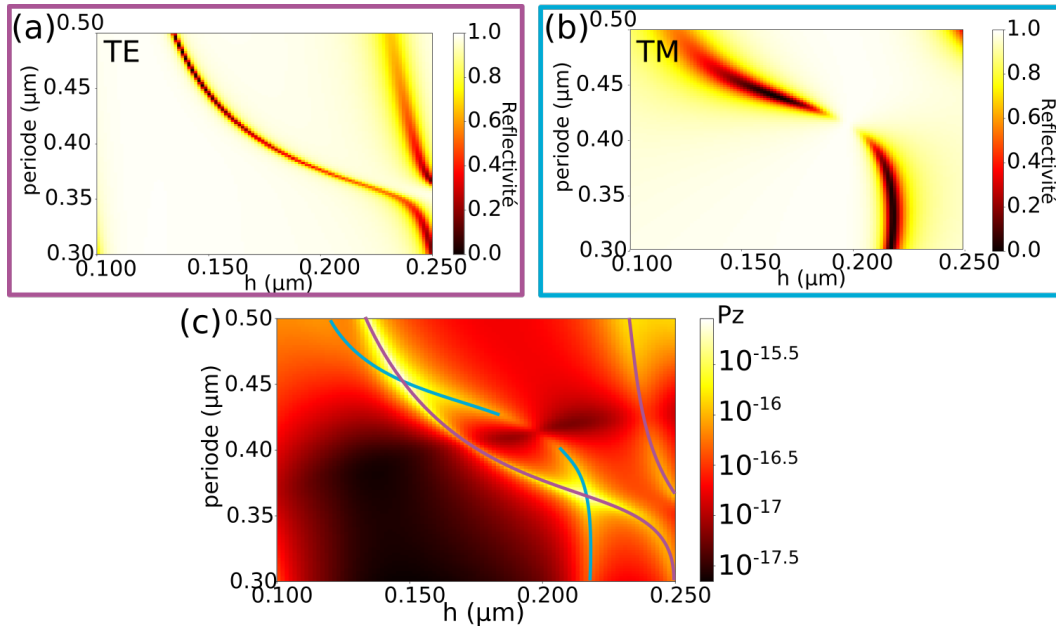


FIGURE 4.18 – Cartes en fonction de la période d et de l'épaisseur de GaAs h : (a) Réflectivité TE à la longueur d'onde pompe $1.064 \mu\text{m}$, (b) Réflectivité TM à la longueur d'onde pompe $1.6 \mu\text{m}$, (c) polarisation selon z en fonction de la période d et de l'épaisseur de GaAs h , avec les courbes de dispersion des résonances aux longueurs d'onde pompe : TE à $1.064 \mu\text{m}$ en rose, TM à $1.6 \mu\text{m}$ en bleu.

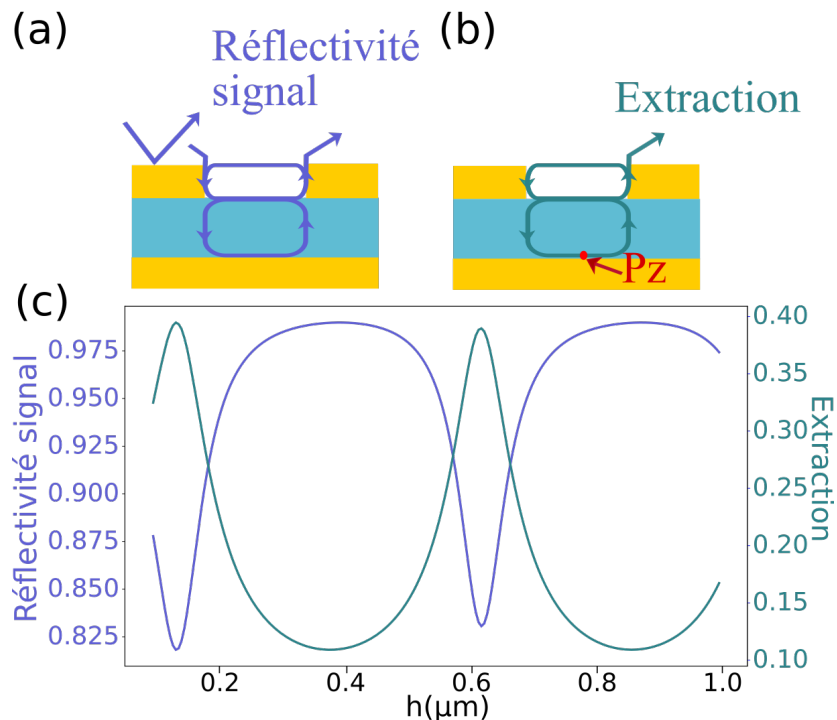


FIGURE 4.19 – Schema des S-matrices impliquées dans (a) le calcul de la réflectivité et (b) l'extraction de la polarisation non linéaire dans la couche de GaAs. (c) Réflectivité (courbe bleue) et efficacité d'extraction (courbe turquoise) en fonction de la hauteur de la couche de GaAs h à la longueur d'onde signal $\lambda_3 = 3.17 \mu\text{m}$.

Les efficacités de réflexion (courbe bleue) et d'extraction (courbe turquoise) sont tracées en Fig. 4.19 à la longueur d'onde signal $\lambda_3 = 3.17 \mu\text{m}$, en fonction de l'épaisseur de la couche d'arséniure de gallium. Les deux courbes présentent des résonances avec une alternance de pics et creux, mais elles sont en opposition de phase. L'extraction est maximale quand la réflectivité atteint sa valeur minimale, soit lorsque la structure

piège le mieux le champ électrique et donc l'exalte.

Cette allure s'explique en regardant les équations 4.16 et 4.17. Les matrices S_{AA}^α et S_{AB}^α sont des matrices de diffusion à l'interface du réseau d'or, elles ne dépendent donc pas de l'épaisseur de GaAs h . Ainsi, la dérivée selon h de l'amplitude de l'extraction est la même que celle de la réflectivité, multipliée par la matrice $S_{AB}^{\alpha -1}$. Cela veut dire qu'elles ont les mêmes extrêmes et que leur variations sont liées par la matrice $S_{AB}^{\alpha -1}$, qui dépend uniquement de la géométrie du réseau métallique. De plus, lorsqu'il n'y a pas de résonance, l'amplitude de la réflectivité est proche de S_{AA}^α , donc l'extraction est proche de zéro.

4.3.4 Efficacité non linéaire

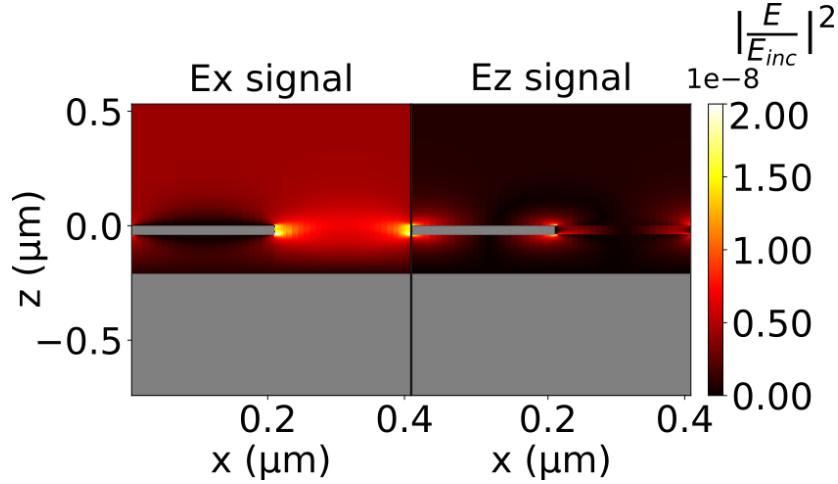


FIGURE 4.20 – Champs électriques non linéaires normalisés E_x et E_z générés par le résonateur à $\lambda = 3.17 \mu\text{m}$. Le champ généré est polarisé TM.

La figure 4.20 représente les composantes du champ électrique non linéaire généré par la polarisation P_z . Le champ électrique généré est particulièrement exalté dans la couche du réseau avec des points chauds sur les côtés des barreaux métalliques. La distribution du champ électrique est assez différente de la polarisation non linéaire, car elle dépend des effets de la résonance de la structure à λ_3 . En effet, cette distribution est assez proche de celle obtenue par l'onde incidente à λ_3 (Fig. 4.16 (c)). Ce comportement résonant est indispensable pour l'extraction et l'efficacité de la structure, et pour l'évaluer, l'efficacité du processus de DFG est définie par $\Pi = \frac{\mathcal{P}_{\text{DFG}}}{\mathcal{P}_{\text{inc}}^2}$, \mathcal{P}_{DFG} étant la puissance générée et \mathcal{P}_{inc} la puissance incidente.

En guise de comparaison, l'efficacité de la structure est comparée à une couche de GaAs déposée sur un miroir d'or sans la métasurface d'or, avec une efficacité Π_{ref} . Cette couche agit comme une cavité, dont la longueur d'onde de résonance est déterminée par l'épaisseur de la couche. Dans le but d'avoir la même longueur d'onde de résonance que le résonateur, son épaisseur est fixée à $h = 200 \text{ nm}$.

La figure 4.21 montre les efficacités Π et Π_{ref} en fonction de la longueur d'onde pompe λ_2 et avec l'autre longueur d'onde de pompe fixée à $\lambda_1 = 1.064 \mu\text{m}$. Comme attendu, les efficacités sont maximales près de la longueur d'onde de résonance de la structure et sont considérablement réduites lorsque l'on s'éloigne de cette résonance. L'efficacité du processus DFG peut être accrue de trois ordres de grandeur en comparaison avec la référence ($\Pi = 1.4 \times 10^{-2} \text{ W/W}^2$ and $\Pi_{\text{ref}} = 3.5 \times 10^{-6} \text{ W/W}^2$ à $\lambda_2 = 1.608 \mu\text{m}$). C'est une amélioration d'un ordre de grandeur par rapport aux résonateurs à multi-puits quantiques.¹²

La figure 4.22 présente une carte de l'efficacité en fonction d et h . On y retrouve les courbes de dispersion aux deux longueurs d'onde pompes présentes en Fig. 4.18, ainsi qu'à la longueur d'onde signal. On remarque que l'efficacité suit la courbe de dispersion du signal, qui conditionne l'extraction. Cependant, elle est plus forte au point de fonctionnement où les trois longueurs d'onde présentent un minimum de réflectivité. Le deuxième point de fonctionnement où les courbes deux pompes se rejoignent ne contribue

¹²LIU, LEE, MARCH, NOOKALA, PALAFERRI, KLEM, BANK, BRENER et BELKIN, « Difference-Frequency Generation in Polaritonic Inter-subband Nonlinear Metasurfaces ».

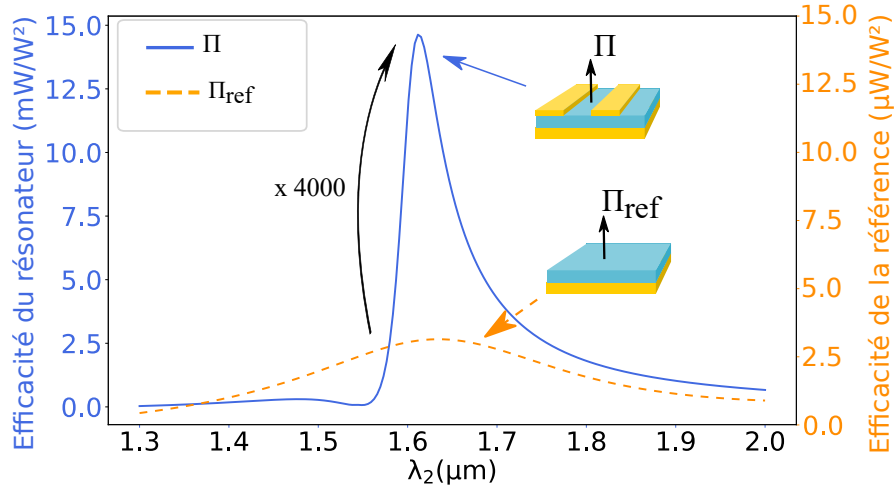


FIGURE 4.21 – Spectre d'efficacité du résonateur (courbe bleue) et d'une référence (courbe orange), en fonction de la longueur d'onde pompe λ_2 . La référence est composée d'une couche de GaAs (épaisseur $h = 200$ nm) sur un miroir d'or. A la longueur d'onde pompe $\lambda_2 = 1.6$ μm , le résonateur est 4000 fois plus efficace que la référence.

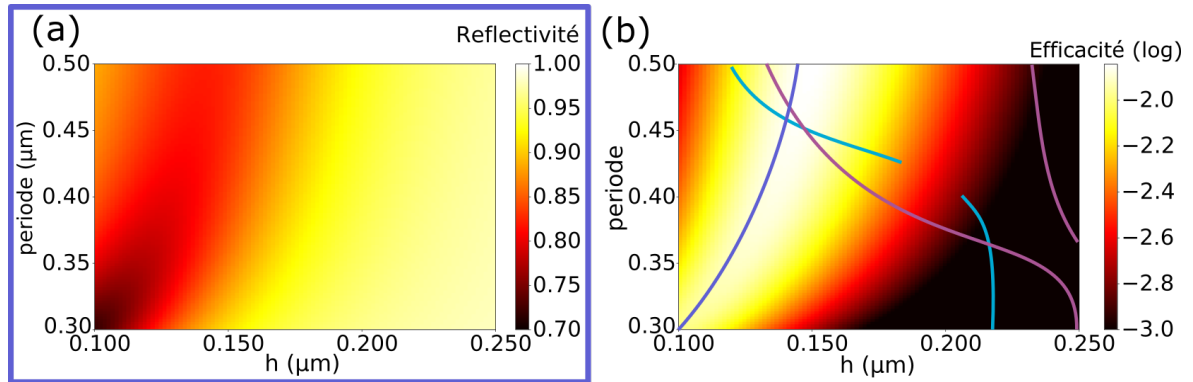


FIGURE 4.22 – Cartes en fonction de la période d et de l'épaisseur de GaAs h : (a) Réflectivité TM à la longueur d'onde signal 3.17 μm , (b) Efficacité non linéaire $\log(\Pi)$, avec les courbes de dispersion des résonances aux trois longueurs d'onde : TE à 1.064 μm en vert, TM à 1.6 μm en bleu, TM à 3.17 μm en violet.

pas à l'efficacité, du fait de la faible extraction, malgré une bonne polarisation non linéaire. Cela montre l'importance d'optimiser la structure pour les trois longueurs d'onde.

On pourrait d'ailleurs envisager d'inverser la pompe TM avec le signal, l'accord de modes ainsi que les contraintes dues au cristal non linéaires seraient respectées. On aurait donc l'accord de modes suivant :

$$\frac{1}{\underbrace{1.064 \mu\text{m}}_{\text{TE}}} - \frac{1}{\underbrace{3.17 \mu\text{m}}_{\text{TM}}} = \frac{1}{\underbrace{1.6 \mu\text{m}}_{\text{TM}}} \quad (4.18)$$

On exploiterait donc les mêmes résonances. La résonance MIM sous-couplée exalterait donc la pompe TM, ce qui amènerait à une polarisation non linéaire plus élevée (296 μm), et l'extraction est bien meilleure, ce qui amène à une efficacité de 9.8×10^{-2} . C'est ce scénario que je vais démontrer expérimentalement dans le chapitre 5.

4.3.5 Tolérances de dimensionnement

Les valeurs des différents paramètres de la structure ont été optimisés au nanomètre près. Cependant, l'efficacité a une certaine tolérance de dimensionnement. En figure 4.23 sont tracés les pourcentages d'ef-

efficacité $\frac{\Pi}{\Pi_{max}}$, pour w et h . En effet, nous verrons au chapitre 5 que ce sont ces deux paramètres qui sont les plus susceptibles de varier de la valeur consigne lors de la fabrication. On voit que ces deux paramètres sont assez tolérants, puisque l'on garde 80% de l'efficacité maximale dans une plage de 45 nm pour w et 35 nm pour h .

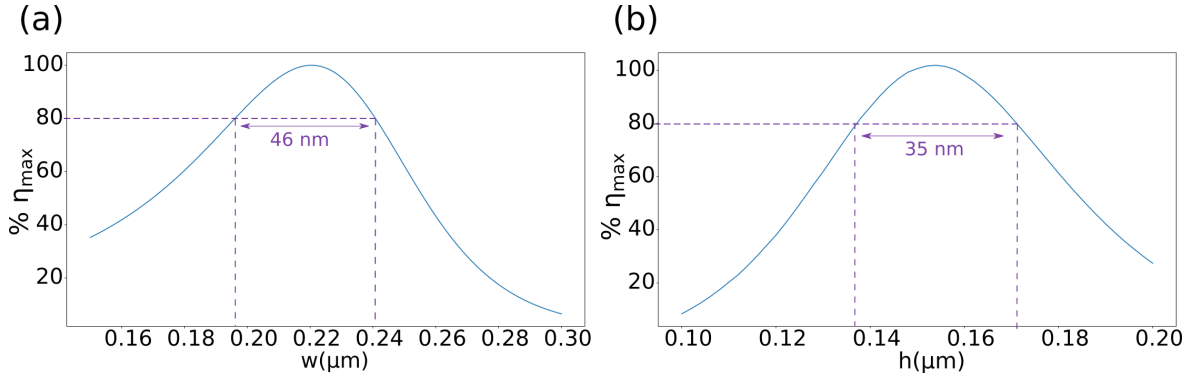


FIGURE 4.23 – Efficacité (en pourcentage de l'efficacité maximale) en fonction des paramètres : (a) La largeur des barreaux w , (b) L'épaisseur de GaAs h .

Ce résonateur permet donc d'obtenir du P_z avec une forte efficacité. De plus, ses tolérances de dimensionnement permettent d'envisager la fabrication d'un échantillon.

4.4 Résonateur guide d'onde multibarreaux

À présent, nous allons voir une structure qui permet de résoudre le problème d'efficacité de la résonance MIM du résonateur guide d'onde, expliqué dans la sous-section 4.3.1. En effet, on a vu que l'on ne pouvait pas optimiser parfaitement les résonances MIM et modes guidés tout en accordant leurs longueurs d'onde résonance, et que cela conduisait à utiliser un MIM sous-couplé. Le résonateur multibarreau est une structure inspirée des nano Fabry-Perot couplés publiés par B. Fix *et al.*,¹³ qui a démontré que l'on peut coupler deux résonateurs MIM sous-couplés pour obtenir une résonance à haut facteur de qualité. C'est ce que j'ai

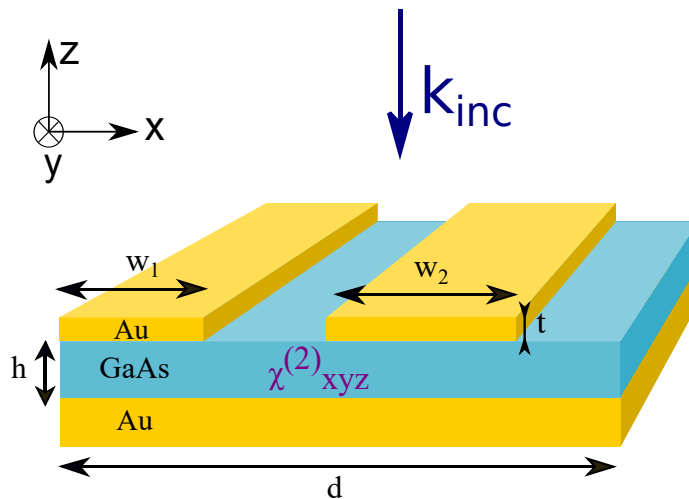


FIGURE 4.24 – Structure du multibarreaux : il y a deux barreaux de largeurs différentes dans une période. Les paramètres du multibarreaux sont : $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm, $t = 40$ nm, $h = 145$ nm.

fait sur le résonateur guide d'onde, pour donner le résonateur multibarreau, illustré Fig. 4.24.

¹³Baptiste FIX, Julien JAECK, Patrick BOUCHON, Sébastien HÉRON, Benjamin VEST et Riad HAIDAR. « High-quality-factor double Fabry-Perot plasmonic nanoresonator ». *Optics Letters* 42.24 (2017), p. 5062-5065.

4.4.1 La résonance de nano-Fabry Perot couplés

La figure 4.25 présente le spectre de réflectivité TM du multibarreaux ainsi que ceux des deux guides d'onde "monobarreaux" qui ont été associés pour créer le multibarreau. On y voit que les deux guides monobarreaux présentent des résonances entre 4 et 4.5 μm , avec un facteur de qualité d'environ 3. L'association des deux monobarreaux faiblement couplés crée une résonance de même qualité entre les deux résonances monobarreaux, mais également une autre résonance à 3.2 μm au couplage critique. Le facteur de qualité de cette nouvelle résonance est de 28.

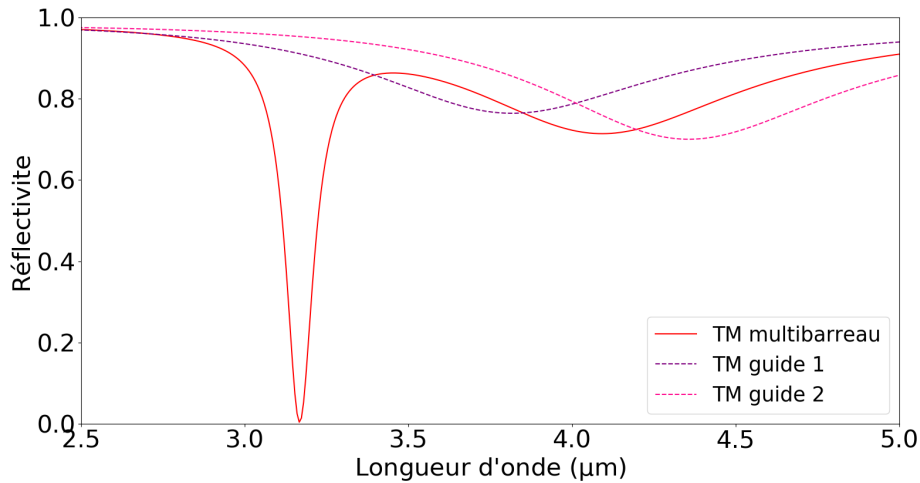


FIGURE 4.25 – Spectre de réflectivité du multibarreaux comparé à celui du guide d'onde (en pointillés) en (a) TM et (b) TE. Les paramètres du multibarreaux sont : $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm, ceux du guide 1 sont $d = 428$ nm, $w = 275$ nm, ceux du guide 2 sont $d = 497$ nm, $w = 344$ nm. Pour les trois structures $t = 40$ nm, $h = 145$ nm.

La figure 4.26 présente une carte de champs de la résonance. On voit que le champ est exalté aux coins des barreaux, comme la résonance MIM.

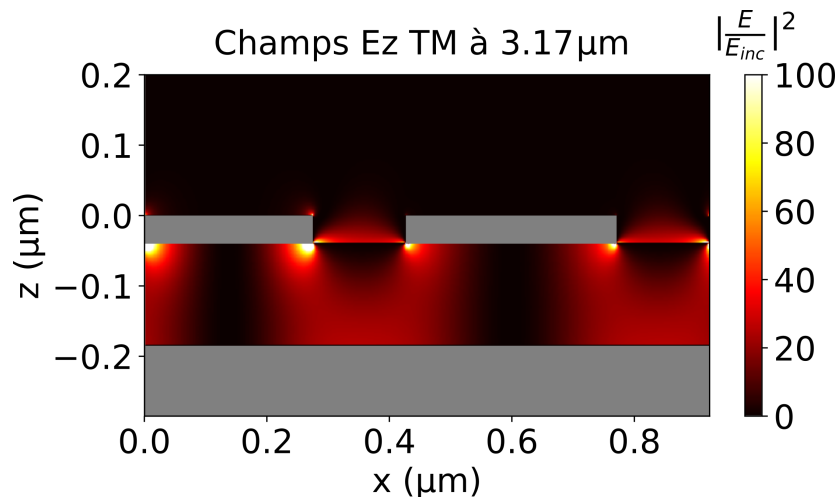


FIGURE 4.26 – Carte du champ E_z à la résonance nano-Fabry Perot couplé pour un multibarreaux ayant les dimensions : $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm, $t = 40$ nm, $h = 145$ nm.

La figure 4.27(a) représente le spectre de réflectivité en fonction de h d'un guide d'onde composé de barreaux de larges de $w = 275$ nm, ce qui correspond au premier barreau composant une période du multibarreaux. On voit que la résonance est optimisée pour des épaisseurs de GaAs très faibles (< 50 nm). On a vu en section 4.3.1 que l'on ne peut pas avoir une telle épaisseur car elle ne convient pas aux modes gui-

dés. A l'épaisseur retenue ($h = 145$ nm), la résonance descend seulement à 0.8. En figure 4.27(b) on voit le même spectre de réflectivité mais pour le multibarreaux. Dans ce cas on voit d'abord deux résonances pour les faibles épaisseurs (la deuxième qui commence au delà de $4 \mu\text{m}$ correspond au deuxième barreau). Puis au delà de 100 nm il n'y a plus qu'une résonance, dont la longueur d'onde ne varie plus, qui reste fortement couplée et s'affine lorsque l'épaisseur augmente. On a à présent une résonance qui descend à 0 pour l'épaisseur désirée.

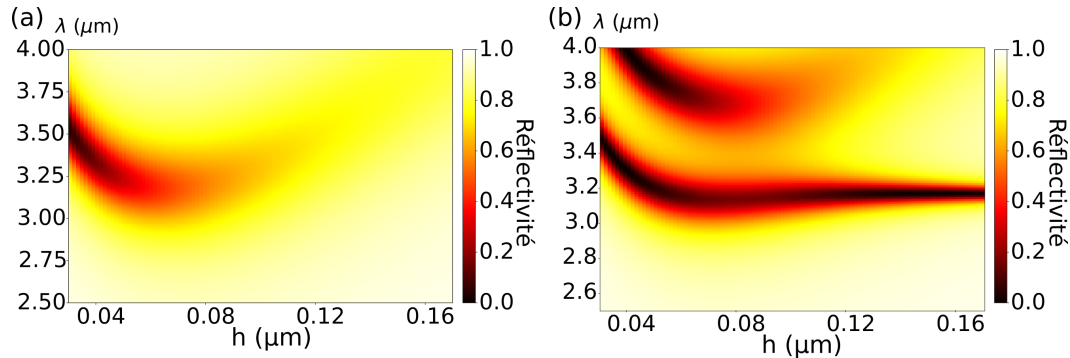


FIGURE 4.27 – Spectre de réflectivité TM en fonction l'épaisseur de GaAs h : (a) pour un guide d'onde de paramètres $w = 275$ nm et $d = 428$ nm, (b) pour le multibarreaux de paramètres $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm. Pour les deux structures $t = 40$ nm.

Pour finir sur l'étude de cette résonance, on peut regarder son comportement angulaire. Le spectre de réflectivité en fonction de l'angle d'incidence est tracé Fig. 4.28. On remarque que la résonance est stable sur seulement une dizaine de degrés, mais garde la même intensité quelque soit l'angle.

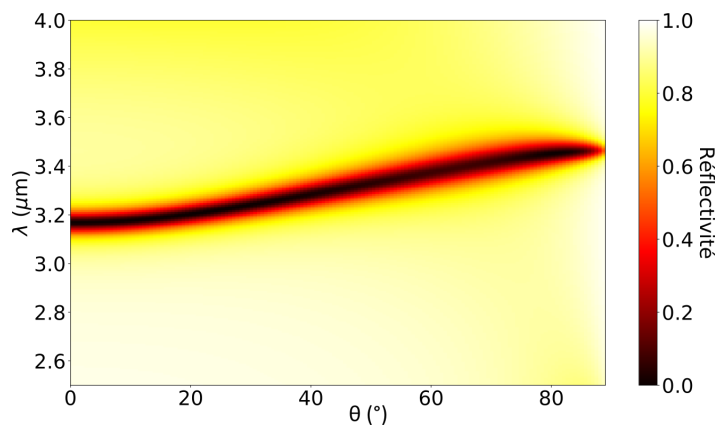


FIGURE 4.28 – Spectre de réflectivité TM en fonction de l'angle d'incidence. Les paramètres du multibarreaux sont : $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm, $t = 40$ nm, $h = 145$ nm.

4.4.2 Génération de DFG

La figure 4.29 présente le spectre de réflectivité comparé à celui du résonateur guide d'onde. On y voit que la résonance TM à $3.2 \mu\text{m}$ a été significativement améliorée. Par ailleurs, les autres résonances n'ont presque pas été altérées.

On peut donc calculer l'efficacité de la DFG, comme on l'a fait avec le résonateur guide d'onde. On considère le même accord de modes que précédemment. Dans ce cas, les résonances aux longueurs d'onde de pompes ($1.064 \mu\text{m}$ en TE) et ($1.6 \mu\text{m}$ en TM) n'ont pas bougé, la colocalisation des champs et donc la polarisation non linéaire est la même qu'avant. Ici, c'est la résonance à la longueur d'onde signal qui est améliorée, ce qui donne une meilleure extraction du signal. On le voit sur la figure 4.30, où sont tracées la réflectivité à la longueur d'onde signal et l'extraction en fonction de l'épaisseur de GaAs. On y voit que

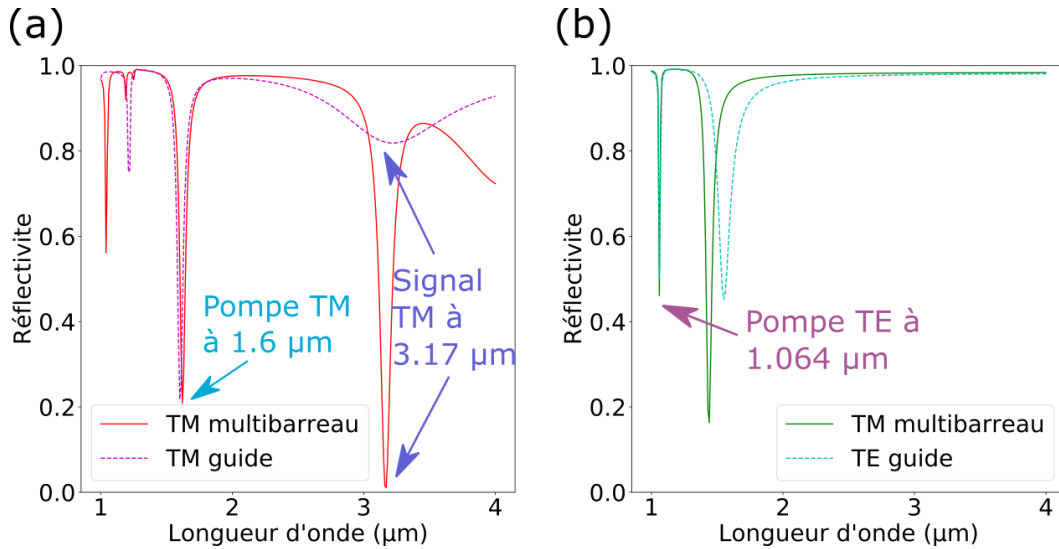


FIGURE 4.29 – Spectre de réflectivité du multibarreaux comparé à celui du guide d'onde (en pointillés) en (a) TM et (b) TE. Les paramètres du multibarreaux sont : $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm et ceux du guide sont $d = 456$ nm, $w = 220$ nm. Pour les deux structures $t = 40$ nm, $h = 145$ nm

l'extraction peut atteindre 0.95, contre 0.4 précédemment. On génère donc autant dans la couche de GaAs, mais on extrait mieux, ce qui donne une efficacité améliorée d'un ordre de grandeur ($\Pi = 0.23W^{-1}$).

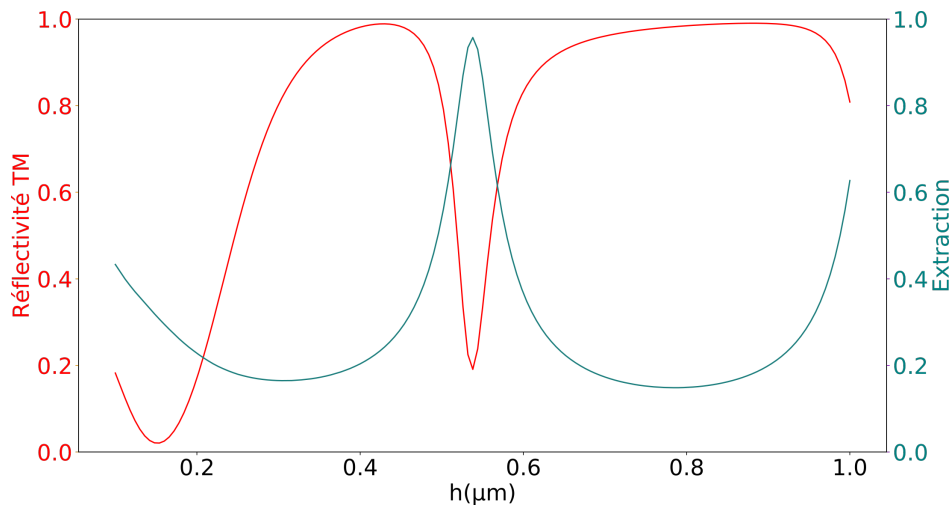


FIGURE 4.30 – Réflectivité TM (courbe rouge) et efficacité d'extraction (courbe bleue) en fonction de la hauteur de la couche de GaAs h à la longueur d'onde signal $\lambda_3 = 3.17$ μm. Les autres paramètres du multibarreaux sont : $w_1 = 275$ nm, $w_2 = 344$ nm, $d = 924$ nm, $t = 40$ nm.

4.4.3 Génération de SHG

On peut également envisager de générer de la SHG avec le multibarreaux. En effet, on remarque Fig. 4.29 que l'on a une résonance TM à 3.2 μm et une résonance TE à 1.43 μm. Cette dernière est une résonance Fabry Perot verticale, il est donc aisé de l'ajuster à 1.6 μm en modifiant l'épaisseur de GaAs à $h = 170$ μm. Le spectre de réflectivité est illustré Fig. 4.31. On peut donc générer de la SHG avec une pompe TM à 3.2 μm, donnant un signal TE à 1.6 μm. Comme expliqué Fig. 4.3, c'est la seule configuration possible en SHG, et elle ne permet pas de générer du Pz.

Malgré la présence de résonances efficaces, l'efficacité non linéaire est très faible (10^{-8}). Cela s'explique par la mauvaise colocalisation des champs, ce qui produit une faible polarisation non linéaire. En effet, même si en SHG il n'y a qu'une seule pompe impliquée dans le processus non linéaire, la colocalisation

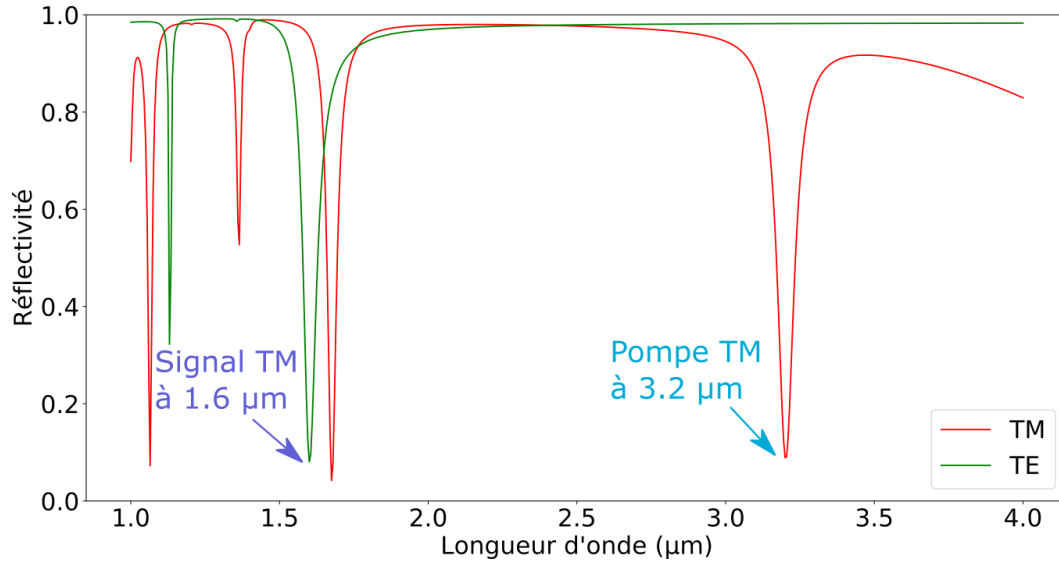


FIGURE 4.31 – Spectre de réflectivité du multibarreaux optimisé pour la SHG, avec les paramètres : $w_1 = 284$ nm, $w_2 = 340$ nm, $d = 924$ nm, $t = 40$ nm, $h = 170$ nm.

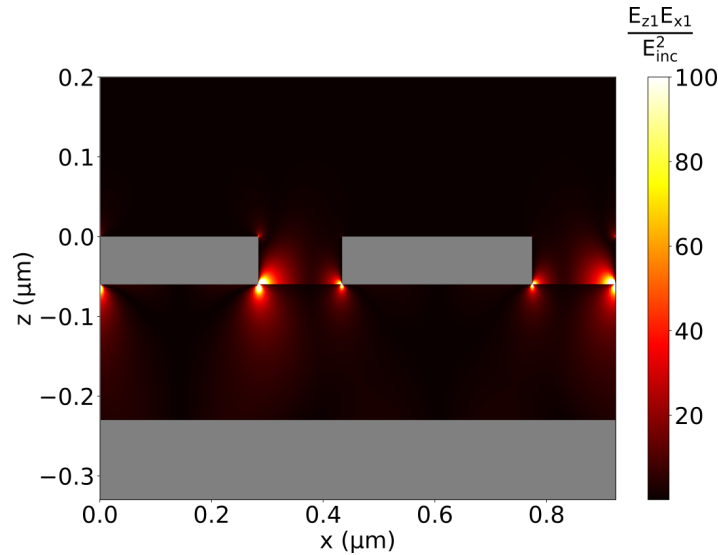


FIGURE 4.32 – Carte de polarisation normalisée du P_y produit en SHG dans le multibarreaux : $P_{ynorm} = \frac{1}{d} \int_{z_1}^{z_2} \int_{x=0}^{x=d} \frac{E_x E_z}{E_{inc}^2} = 0.08$ μm .

n'est pas automatique. En effet, comme décrit Fig. 4.3, pour générer le P_y , on fait le produit des deux composantes du champ pompe à savoir E_x et E_z . Ce produit est représenté Fig. 4.32, normalisé par le champ incident. De plus, la résonance Fabry Perot couplée utilisée ici se caractérise par une exaltation du champ localisée sur les côtés des barreaux, il y a donc peu de champ dans la couche de GaAs, où la polarisation non linéaire est produite.

4.5 Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre

A présent, nous pouvons comparer les différentes structures présentées dans ce chapitre. Une synthèse est présentée dans le tableau 4.2. Nous avons vu l'importance de la colocalisation des champs pour générer efficacement, comme on le voit avec le multibarreaux SHG qui présente une mauvaise colocalisation des champs et donc une mauvaise efficacité. L'extraction a également un rôle important. Dans ce tableau sont présentées les moyennes des matrices d'extraction de la couche non linéaire vers le champ lointain. On

retrouve bien l'amélioration de l'extraction lorsque la résonance à la longueur d'onde signal est meilleure, comme pour la deuxième version du guide d'onde (où le signal est à 1.6 μm , profitant d'une bonne résonance), ou pour les multibarreaux.

Structure	Longueurs d'onde	Colocalisation	Extraction	Efficacité	Description
Guide DFG	1.064, 1.6 \rightarrow 3.17	202	0.17	1.4×10^{-2}	4.3
Guide DFG	1.064, 3.17 \rightarrow 1.6	296	0.28	9.8×10^{-2}	4.3.4
Multibarreaux DFG	1.064, 1.6 \rightarrow 3.17	196	0.25	0.23	4.4.2
Multibarreaux SHG	3.2 \rightarrow 1.6	0.08	0.26	10^{-8}	4.4.3

TABLEAU 4.2 – Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre : les longueurs d'onde sont en microns, la colocalisation en μm , et l'efficacité en W^{-1} .

Un synthèse similaire sera donnée dans les autres chapitres présentant des structures, et un bilan général est présenté en annexe A.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la génération de DFG et SHG dans un résonateur de type guide d'onde. Nous avons vu le caractère multirésonant de cette structure et les différentes règles de conception menant à la génération efficace d'effets non linéaires. En effet, plusieurs paramètres doivent être pris en compte, comme l'accord des longueurs d'onde de résonance, la colocalisation des champs pompe et l'extraction du champ généré. Le résonateur guide d'onde est particulièrement efficace en DFG, avec une polarisation selon z . Nous avons vu une variante de ce résonateur, qui utilise la résonance de nano-Fabry Perot couplés, et permet d'améliorer l'efficacité. Cette variante permet également de générer de la SHG, malgré une efficacité bien inférieure.

Chapitre

5

Démonstration expérimentale

Sommaire

5.1 Conception de l'échantillon	59
5.2 Fabrication de l'échantillon	60
5.2.1 Procédé de fabrication	61
5.2.2 Caractérisation de la couche reportée seule	61
5.3 Caractérisation	63
5.3.1 Caractérisation linéaire de l'échantillon	63
5.3.2 Caractérisation de la SHG	68
5.3.3 Caractérisation de la DFG	73

L'étude réalisée au chapitre 4 m'a permis de concevoir une structure de type guide d'onde avec du GaAs comme matériau non linéaire, qui promet d'atteindre une forte efficacité DFG de 10^{-2} W^{-1} . J'ai également étudié dans ce chapitre la possibilité de mettre deux barreaux différents dans la même période, améliorant une des résonances. Cette structure multibarreaux améliore l'efficacité DFG, et permet d'envisager de générer de la SHG, toutefois avec une efficacité moindre. Cela m'a permis de concevoir plusieurs structures à fabriquer et caractériser, dans le but de générer de la SHG ou de la DFG sur un banc expérimental. Dans ce chapitre je vais présenter le procédé de fabrication de l'échantillon composé de plusieurs de ces structures, réalisé au C2N à Marcoussis, ainsi que la caractérisation linéaire et non linéaire que j'ai menée à l'ONERA.

5.1 Conception de l'échantillon

L'objectif est de démontrer la génération de SHG et de DFG dans des structures guides d'onde. Comme expliqué au chapitre 4, on peut générer de la DFG dans des guides d'ondes monobarreaux et multibarreaux. La DFG permet de générer du P_z , pour atteindre une efficacité de 98 mW/W^2 . La disponibilité des sources et détecteurs au laboratoire (détecteurs InGaAs optimaux pour $1.6 \mu\text{m}$, source accordable autour de $3 \mu\text{m}$ et laser à $1.064 \mu\text{m}$) nous imposent la configuration suivante :

$$\underbrace{\frac{1}{1.064 \mu\text{m}}}_{\text{pompe TE}} - \underbrace{\frac{1}{3.17 \mu\text{m}}}_{\text{pompe TM}} = \underbrace{\frac{1}{1.6 \mu\text{m}}}_{\text{signal TM}} \quad (5.1)$$

On peut également générer de la SHG, préférentiellement dans des multibarreaux. L'efficacité est beaucoup plus faible (10^{-8} W/W^2). Cependant, la caractérisation expérimentale est plus aisée, car elle ne nécessite qu'une pompe. La configuration pour la SHG est la suivante :

$$\underbrace{\frac{3.2 \mu\text{m}}{2}}_{\text{pompe TM}} = \underbrace{1.6 \mu\text{m}}_{\text{signal TE}} \quad (5.2)$$

Dans les deux cas, la pompe TM utilisée est une source accordable, la longueur d'onde signal est donc accordée en conséquence. La pompe TE elle est monochromatique, il faut donc avoir des réseaux ayant une résonance à cette longueur d'onde précise. Il faut également prendre en compte les spécificités du détecteur, qui est de type InGaAs, et est sensible aux longueurs d'onde entre 0.9 et $1.7 \mu\text{m}$.

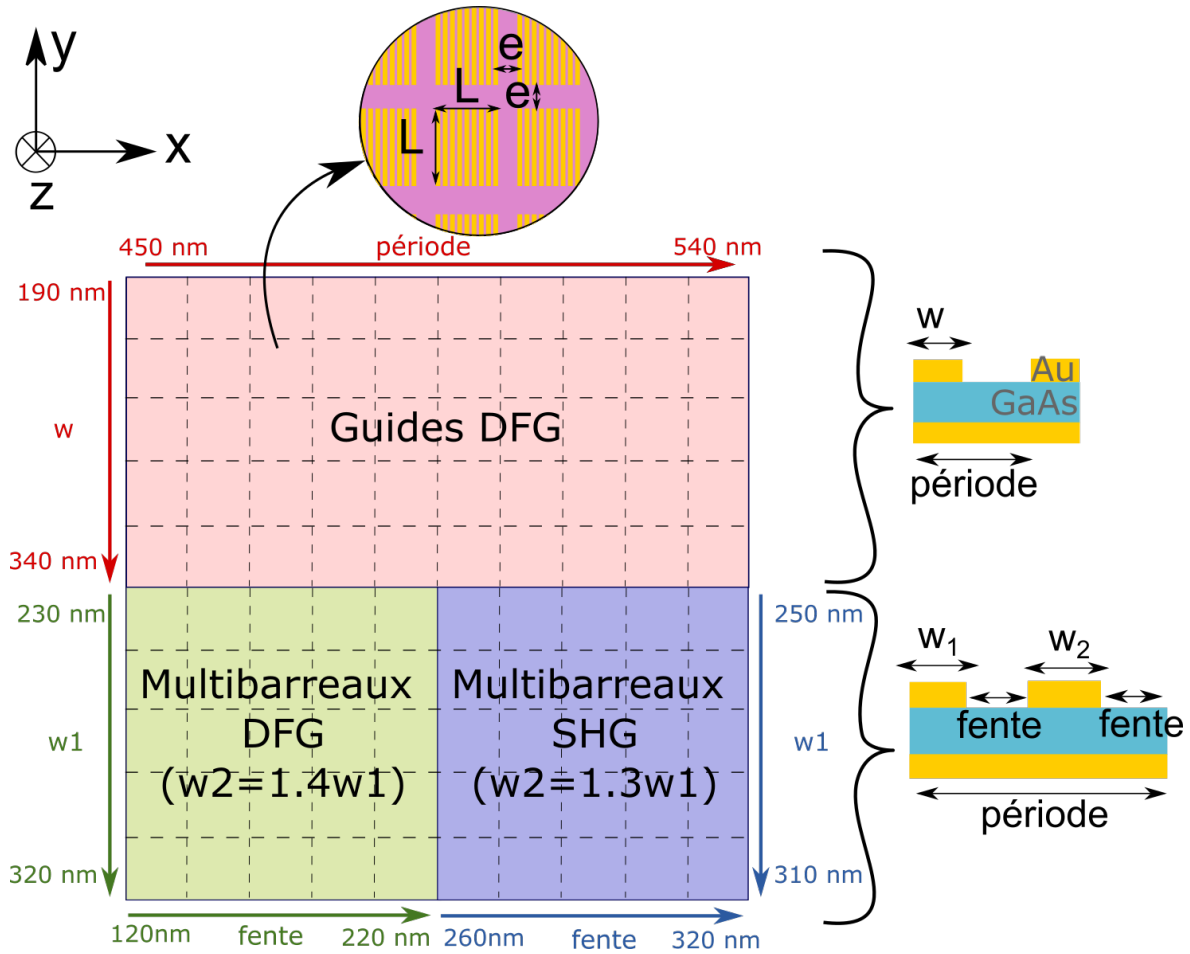


FIGURE 5.1 – Architecture de l'échantillon : 10 par 10 réseaux d'or de taille $L = 300 \mu\text{m}$, espacés de la distance $e = 200 \mu\text{m}$, sur une couche de GaAs, sur un miroir d'or. La première moitié est composée de guides d'onde monobarreaux de largeur de barreaux et périodes différentes. La deuxième moitié de multibarreaux, dont la largeur du deuxième barreau est égale à $w_2 = 1.4w_1$ dans le cas DFG et $w_2 = 1.3w_1$ dans le cas SHG. Les fentes entre les barreaux sont égales. La largeur du premier barreau varie (et du deuxième en conséquence), ainsi que la taille des fentes.

Pour limiter le nombre d'échantillons à fabriquer, nous avons choisi de concevoir plusieurs structures fabricables sur un seul échantillon. L'épaisseur de GaAs est donc la même pour toutes les structures. Tenant compte de cela, et pour parer à d'éventuelles variations de paramètres lors de la fabrication, j'ai conçu un échantillon (représenté Fig. 5.1) comportant des guides d'onde de périodes et largeurs de barreaux différentes. Il y a trois régions comportant :

- 50 guides d'ondes monobarreaux pour faire de la DFG (w entre 190 et 340 nm, période entre 450 et 540 nm)
- 25 multibarreaux pour faire de la DFG (w_1 entre 230 et 320 nm, fente entre 120 et 220 nm, $w_2 = 1.4w_1$)
- 25 multibarreaux pour faire de la SHG (w_1 entre 250 et 310 nm, fente entre 260 et 320 nm, $w_2 = 1.3w_1$).

5.2 Fabrication de l'échantillon

La fabrication a été réalisée par Baptiste Fix, Nathalie Bardou et Christophe Dupuis dans la salle blanche du C2N à Marcoussis (à présent déménagée à Palaiseau), à partir d'une couche épitaxiée de GaAs commandée chez SWI.

5.2.1 Procédé de fabrication

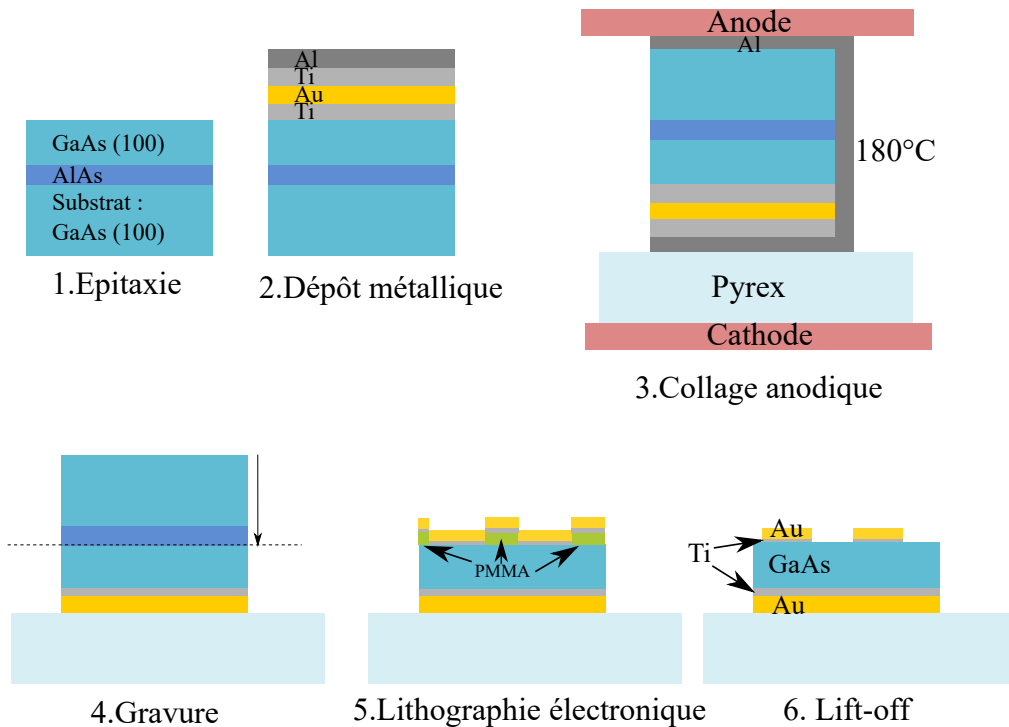


FIGURE 5.2 – Etapes de fabrication de l'échantillon

Les étapes de fabrication sont illustrées Fig. 5.2 :

1. Epitaxie du GaAs orienté (100) : empilement d'une couche de GaAs de 170 nm, d'une couche d'arrêt en AlAs de 30 nm et d'un substrat en GaAs. L'épitaxie a été faite chez SWI.
2. Dépôt métallique (miroir d'or) : empilement Ti/Au/Ti/Al avec les épaisseurs 5/200/20/200 nm. Le titane entre le GaAs et l'or sert de couche d'accroche.
3. Collage anodique (Collage sur le substrat en Pyrex) : une couche d'aluminium est déposée en rotation pour couvrir toutes les faces, de sorte à avoir des électrodes des deux côtés du dispositif. Cela permet de créer une déviation pour ne pas faire passer de courant dans la couche semiconductrice. Une tension de 1700 V crée une force électrostatique qui colle l'échantillon au pyrex.
4. Retrait du substrat : polissage mécanique puis gravure chimique à la sauce Pyranha ($2\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{H}_2\text{O}_2$).
5. Lithographie électronique : dépôt métallique Ti/Au 2/40 nm avec résine positive PMMA A5.
6. Lift-off dans du trichloréthylène.

Cette technologie est relativement simple, en comparaison à celle développée pendant la thèse de Sébastien Héron¹ pour la réalisation de sillons gravés dans de l'or et remplis de GaAs orienté (110).

5.2.2 Caractérisation de la couche reportée seule

Avant l'étape de lithographie électronique, nous avons pu caractériser la couche de GaAs reportée sur le miroir d'or, qui correspond à la fin de l'étape 4 sur la figure 5.2. Cela nous a permis d'ajuster notre modèle de GaAs. La figure 5.3 présente la mesure du spectre de réflectivité de cette couche au spectromètre à transformée de Fourier (FTIR). La mesure de réflectivité a été réalisée sans polarisation particulière, avec un angle

¹HÉRON, « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ».

de 13° , et avec un miroir d'or comme référence. On observe une résonance vers $2.3\mu\text{m}$. La couche que nous avons commandée avait une épaisseur de 170nm . Nous avons donc supposé qu'à cette étape l'échantillon était composé d'une couche de GaAs de 170nm , sur le miroir d'or, avec au milieu une couche d'accroche en titane. La simulation de cet empilement est représentée en violet. On remarque que la résonance est ici à $2.5\mu\text{m}$, ce qui est assez différent de la mesure. Une mesure au MEB a permis de déterminer que la couche de GaAs fait en réalité 162nm . Avec cette information, j'ai adapté le modèle de GaAs pour avoir la bonne longueur d'onde de résonance (tracé en vert sur la figure). Cependant, cela implique une partie réelle de l'indice de GaAs de 3.02 , ce qui est beaucoup trop faible par rapport aux données de la littérature.² Nous avons donc fait l'hypothèse que la gravure n'avait pas été réalisée jusqu'au bout et qu'il reste de l'aluminium oxydé. La simulation avec 20nm de AlO_3 (indice de 1.7) et 142nm de GaAs est tracée en rouge. Elle est en accord avec la mesure, nous avons donc par la suite effectué les simulations avec cet empilement. Cela nous a permis d'ajuster les paramètres des réseaux de barreaux d'or à donner pour la lithographie électronique pour obtenir des guides d'onde ayant les résonances voulues.

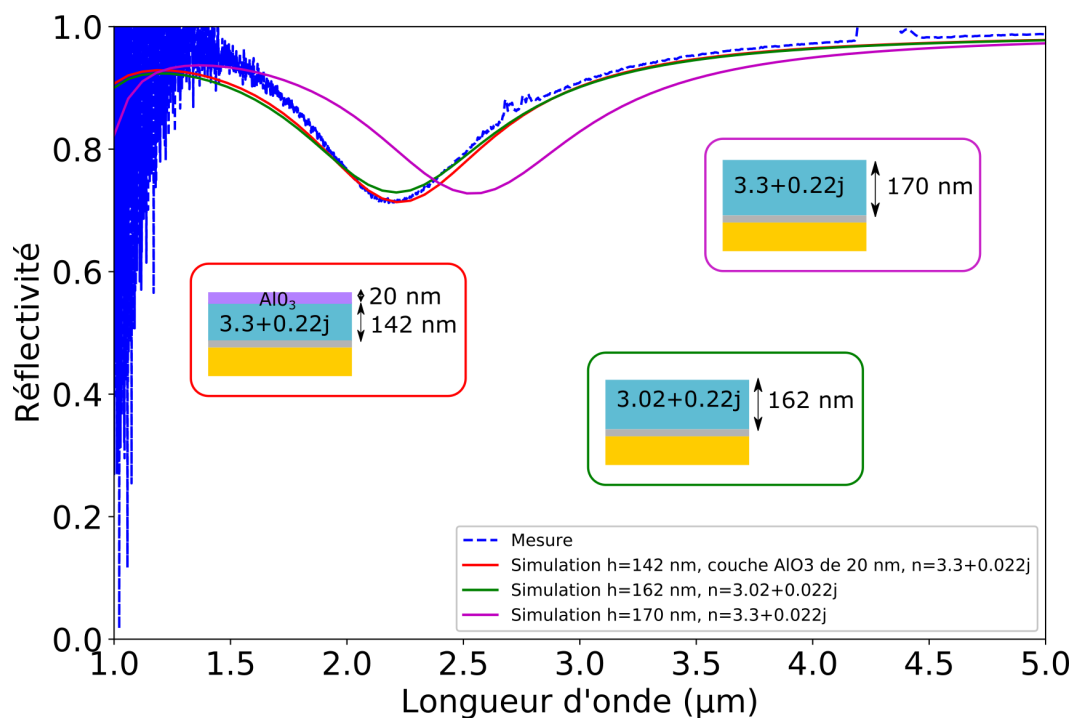


FIGURE 5.3 – Spectre de réflectivité de la couche de GaAs reportée sur le miroir d'or : en bleu la mesure au FTIR, en violet la simulation avec $h = 170\text{nm}$ et $n=3.3 + 0.022j$, en vert la simulation avec $h = 162\text{nm}$ et $n=3.02 + 0.022j$ et en rouge simulation avec $h = 142\text{nm}$, $h_{\text{AlO}_3} = 20\text{nm}$ et $n=3.3 + 0.022j$.

Echantillon obtenu La figure 5.4 est une photo de l'échantillon final prise au microscope. Sur la couche de GaAs en rose, on repère les 100 réseaux d'or, sans distinguer les barreaux. La différence de teinte entre les réseaux vient de la taille des barreaux qui diffère et donc la proportion d'or dans une période qui diffère. Certains réseaux (de la 4ème à la 6ème ligne à gauche) sont défectueux : la fente d'air entre les barreaux n'a pas été ouverte lors du lift-off.

²SKAULI, KUO, VODOPYANOV, PINGUET, LEVI, EYRES, HARRIS, FEJER, GERARD, BECOUARN et al., « Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics ».

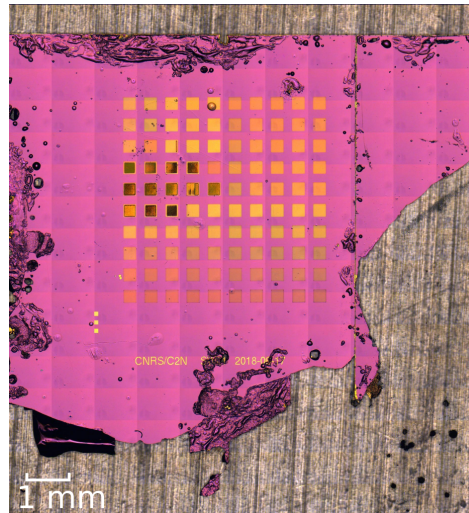


FIGURE 5.4 – Photo de l'échantillon prise au microscope

5.3 Caractérisation

Une fois l'échantillon réalisé, j'ai pu mener les caractérisations au laboratoire ONDA à l'ONERA. La caractérisation de l'échantillon commence par une mesure de spectres linéaires pour vérifier la présence des résonances obtenues en simulations. Puis j'ai monté deux montages optiques pour la démonstration de SHG et DFG.

5.3.1 Caractérisation linéaire de l'échantillon

La première caractérisation consiste à mesurer les spectres de réflectivité de tous les réseaux, dans les deux polarisations. Comme il y a 10×10 réseaux, séparés de $200 \mu\text{m}$ les uns des autres, nous utilisons un FTIR couplé à un microscope (FTIR Hyperion). Cela nous permet de visualiser l'échantillon, et de distinguer les différents réseaux. Il est ainsi possible de placer des points de mesure sur chaque réseau. Cependant, ce microscope comporte un objectif Cassegrain qui illumine et collecte la réflexion sur l'échantillon dans les angles $12^\circ < \theta < 24^\circ$ et $0^\circ < \phi < 90^\circ$. Cette forme d'illumination est à prendre en compte pour les simulations. D'autre part, elle est assez différente des conditions d'expérience des montages non linéaires.

Mesures au FTIR

La figure 5.5 présente les mesures de réflectivité au FTIR de deux réseaux : un monobarreau DFG (Fig. 5.5(a)) et un multibarreaux SHG (Fig. 5.5(b)). Les résonances intéressantes pour la suite sont indiquées sur les spectres. On remarque bien l'amélioration de la résonance TM autour de $3.2 \mu\text{m}$ ($\lambda_2\text{TM}$) dans le cas du multibarreaux. Pour le monobarreau, on repère les trois résonances qui serviront à générer la DFG : une résonance TE autour de $1.064 \mu\text{m}$ ($\lambda_1\text{TE}$) et une résonance TM autour de $3.2 \mu\text{m}$ ($\lambda_2\text{TM}$) pour exalter les pompes, et une résonance TM autour de $1.6 \mu\text{m}$ ($\lambda_1\text{TM}$) pour le signal. Le multibarreaux présente les résonances nécessaires à la génération de SHG : une résonance TM autour de $3.2 \mu\text{m}$ ($\lambda_2\text{TM}$) et une résonance TM autour de $1.6 \mu\text{m}$ ($\lambda_1\text{TM}$). Sur cette figure sont aussi tracés les spectres calculés avec BMM, dans les mêmes conditions d'illumination qu'avec le FTIR Hyperion (angle d'incidence : $12^\circ < \theta < 24^\circ$ et $0^\circ < \phi < 90^\circ$). On y voit un bon accord sur les positions des résonances, avec toutefois des différences d'amplitude.

La figure 5.6 présente les cartes de longueurs d'onde de résonance pour tout l'échantillon. Les longueurs d'onde de résonance pour le signal TE, le signal TM et la pompe TM trouvées en mesures sont comparées avec la simulation après ajustement des paramètres. En effet, un élargissement des barreaux d'or de 15 nm dans la simulation colle mieux avec les mesures. Nous supposons donc que les barreaux d'or de tous les réseaux ont été élargis lors de la lithographie électronique. C'est une erreur systématique, qui est tout à fait

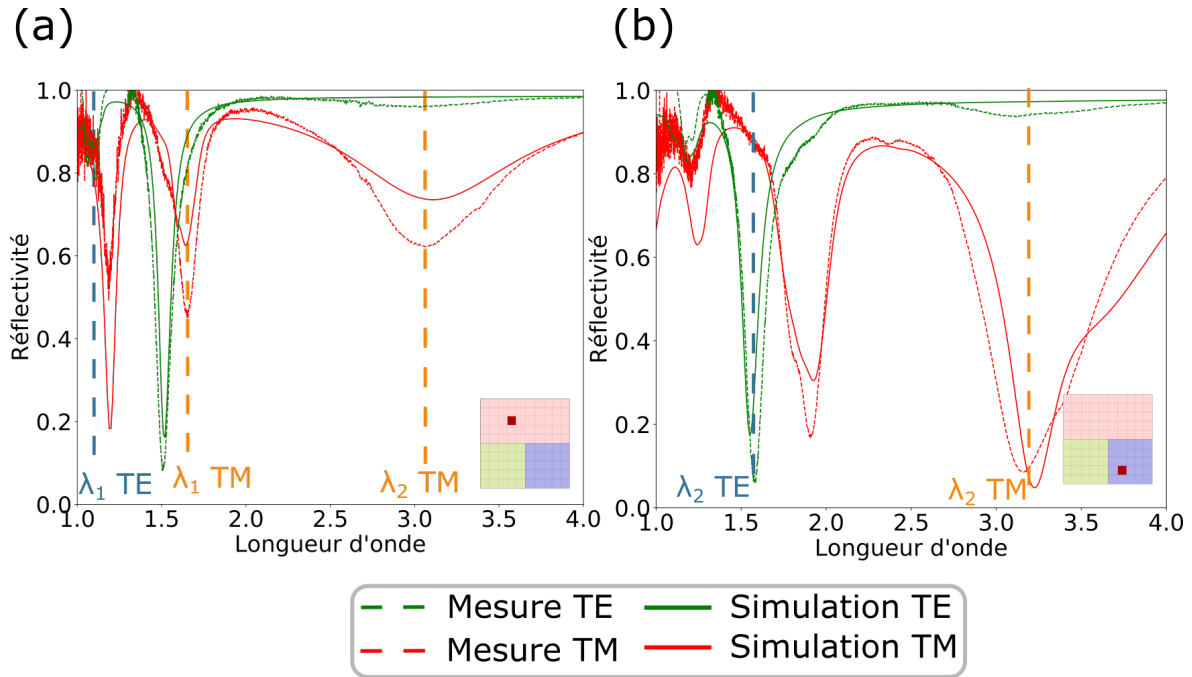


FIGURE 5.5 – Spectres de réflectivités mesurés au FTIR (en pointillés) comparés à la simulation dans les mêmes conditions (en trait plein) : (a) Réseau 34 (monobarreau DFG) : $w = 275$ nm, $d = 480$ nm, résonances pour la DFG : $\frac{1}{\lambda_1^{TE}} - \frac{1}{\lambda_1^{TM}} = \frac{1}{\lambda_2^{TM}}$ (b) Réseau 97 (multibarreaux SHG) : $w_1 = 315$ nm, $w_2 = 405$ nm, $d = 1.23$ μ m, résonances pour la SHG : $\lambda_2^{TM} = 2\lambda_2^{TE}$.

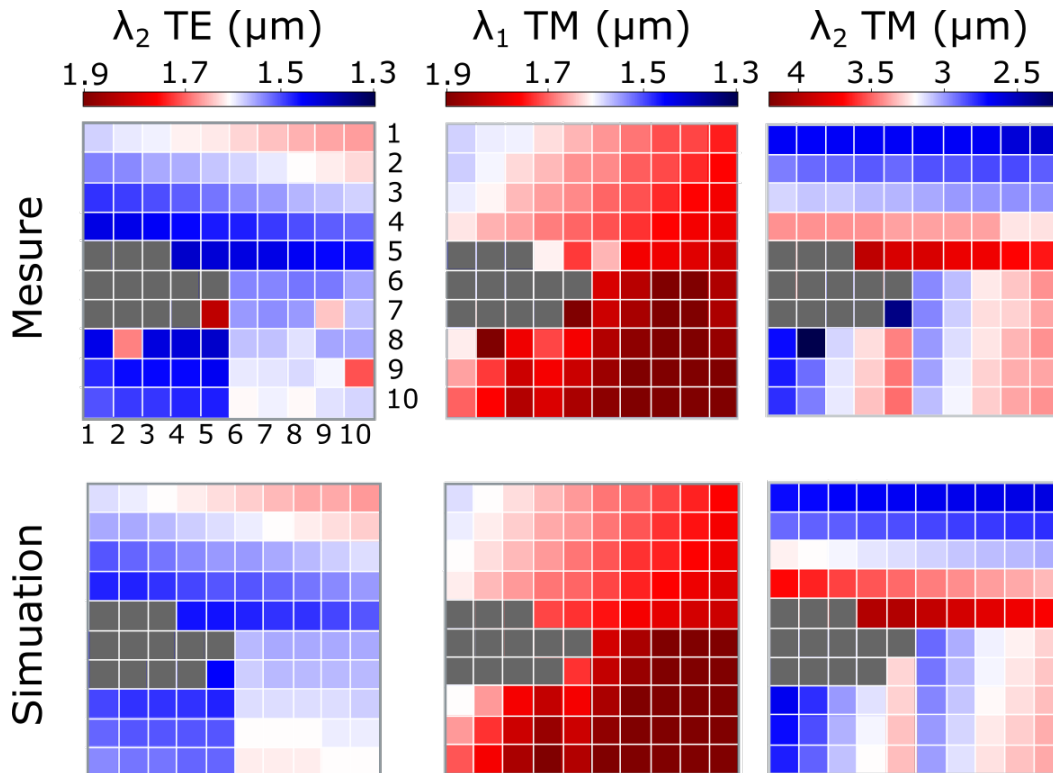


FIGURE 5.6 – Cartes des longueurs d'onde de résonance pour tout l'échantillon, en mesure (1ère ligne) et en simulations avec $w + 15$ nm (2ème ligne) : signal λ_2^{TE} autour de 1.6 μ m (1ère colonne), signal DFG λ_1^{TM} autour de 1.6 μ m (2ème colonne) et pompe λ_2^{TM} autour de 3.2 μ m (3ème colonne). Les réseaux défectueux sont représentés en gris.

envisageable pour la méthode de fabrication employée. Pour les trois longueurs d'onde de résonance, la

simulation est en accord avec la mesure.

La mesure de la troisième ligne de l'échantillon est présentée en Fig. 5.7, dans les deux polarisations. La troisième ligne est composée de guides d'ondes monobarreaux DFG ayant une largeur de barreaux de 275 nm. La période varie de 450 nm à 540 nm. Ils présentent tous des résonances à des longueurs d'ondes proches de l'accord de modes DFG présenté dans l'équation 5.1, qui sont indiquées sur les figures 5.7(a) pour le polarisation TM et 5.7(b) pour la polarisation TE. On retrouve bien la dépendance de la période pour les résonances de modes guidés : la longueur d'onde de résonance associée à la pompe TE augmente avec la période (voir Fig 4.12).

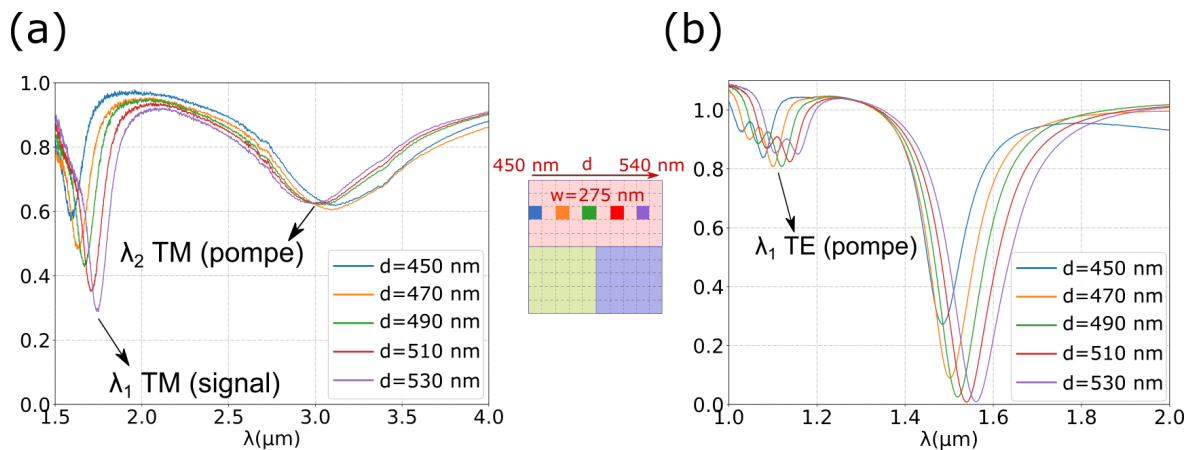


FIGURE 5.7 – Mesure au FTIR des réseaux de la 3ème ligne : (a) TM, (b) TE. Tous ces réseaux ont des barreaux larges de 275 nm, et la période varie de 450 nm à 540 nm. Le dépassement de 1 en TE est dû à un défaut de référence.

Comme dit plus haut, la caractérisation se fait avec un FTIR couplé à un microscope, qui émet et collecte dans les angles $12^\circ < \theta < 24^\circ$ et $0^\circ < \phi < 90^\circ$. La figure 5.8 présente les spectres de réflectivité simulés pour un faisceau incident collimaté, focalisé par le FTIR ou dans les conditions du montage, c'est-à-dire avec un faisceau incident focalisé avec une lentille. On voit que les résonances diffèrent légèrement : en focalisé elles ont généralement une amplitude plus faible et sont légèrement décalées vers de plus faibles longueurs d'onde. Cela est dû à la décomposition en ondes planes réalisée pour simuler la focalisation : on fait la moyenne de la réflectivité sur tous les angles du cône de focalisation. Lorsque l'on compare les deux modes de focalisation, on remarque que la longueur d'onde de résonance TE autour de $1.064 \mu\text{m}$ est identique, mais que dans le cas de la focalisation par le FTIR, la résonance est dégradée. Cela est dû au fait que le FTIR hyperion focalise avec des angles entre 12 et 24 degrés, ce qui est problématique pour la résonance de modes guidés, qui présente une ouverture de gap après quelques degrés, comme on l'a vu en sous-section 4.2.3. Heureusement, dans le montage non linéaire on focalisera dans un cône comprenant l'incidence normale, ce qui est plus favorable pour la résonance, et l'on devrait avoir un spectre similaire à la courbe bleue.

Vérification de l'accord de modes

Les mesures au FTIR ont permis de vérifier que les résonances que je souhaite utiliser sont bien présentes. Pour réaliser les effets non linéaires voulus, il faut également s'assurer que ces résonances respectent l'accord de modes de l'effet considéré. En effet, les effets non linéaires se produisent à des longueurs bien précises. Même si l'échantillon a été conçu pour respecter au mieux cette contrainte, les réseaux ne présentent pas toujours de résonances aux longueurs d'onde voulues. Malgré tout, certaines sont assez larges, en particulier celle à λ_2 TM. Il serait donc possible de générer des effets non linéaires avec une pompe décalée du pic de résonance, mais à la longueur d'onde respectant l'accord. Je vais donc définir un critère prenant en compte la valeur de la réflectivité aux longueurs d'ondes voulues.

Pour la SHG, je vais prendre en compte la résonance la plus fine, qui est celle du signal (λ_2 TE), puis

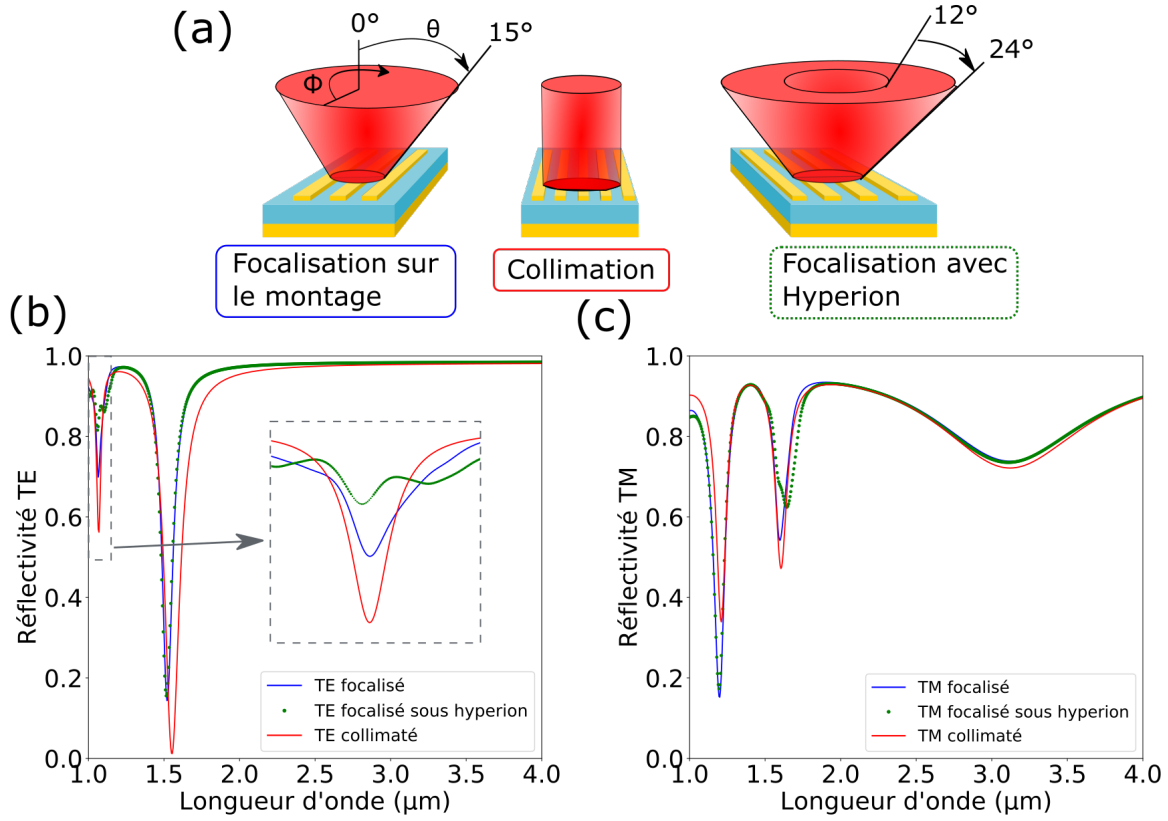


FIGURE 5.8 – Comparaison des spectres de réflectivité du réseau 34 pour un faisceau incident collimaté ou focalisé par le FTIR ou dans les conditions du montage (demi-angle de 15°) : (a) Schémas des trois situations : focalisation avec une lentille sur le montage (0° < θ < 15° et 0° < φ < 90°), collimation, focalisation avec Hyperion (12° < θ < 24° et 0° < φ < 90°) (b) réflectivité TE et (c) réflectivité TM pour les trois situations.

je vais regarder la valeur de la réflectivité TM à la longueur d'onde double. En effet, je vais utiliser une pompe accordable, je pourrais donc me placer exactement à cette longueur d'onde. Je définis donc le critère d'erreur sur l'accord de modes SHG comme suit :

$$\text{Err}_{\text{SHG}} = (\text{Refl}_{\text{TE}}(\lambda_2 \text{TE}) + \text{Refl}_{\text{TM}}(2 \times \lambda_2 \text{TE}))/2 \quad (5.3)$$

Pour la DFG, je vais utiliser la même pompe accordable TM, mais pour la pompe TE je vais utiliser un laser monochromatique à 1.064 μm. Je vais donc considérer la réflectivité à 1.064 μm. Je vais ensuite prendre en compte la résonance la plus fine, qui est la résonance du signal (λ₁TM), et regarder la valeur de la réflectivité TM à la longueur d'onde qui respecte l'accord de modes DFG, soit :

$$\lambda_{\text{pompe}} = \frac{1.064 \times \lambda_1 \text{TM}}{\lambda_1 \text{TM} - 1.064} \quad (5.4)$$

et je définis l'erreur sur l'accord de modes comme suit :

$$\text{Err}_{\text{DFG}} = (\text{Refl}_{\text{TE}}(1.064) + \text{Refl}_{\text{TM}}(\lambda_1 \text{TM}) + \text{Refl}_{\text{TM}}(\lambda_{\text{pompe}}))/3 \quad (5.5)$$

J'ai donc un critère qui évolue entre 0 et 1 dans les deux cas. Ce critère est tracé en Fig. 5.9. Cela nous donne une carte "de générabilité du signal". On voit que la génération de SHG est plus favorable. Ce n'est pas surprenant, car pour cet effet il n'y a que deux longueurs d'ondes en jeu, qui sont accordables. La génération de DFG est plus compliquée, du fait du nombre de longueurs d'onde en jeu, et du caractère monochromatique d'une des sources. On remarque cependant des zones plus favorables, notamment les lignes

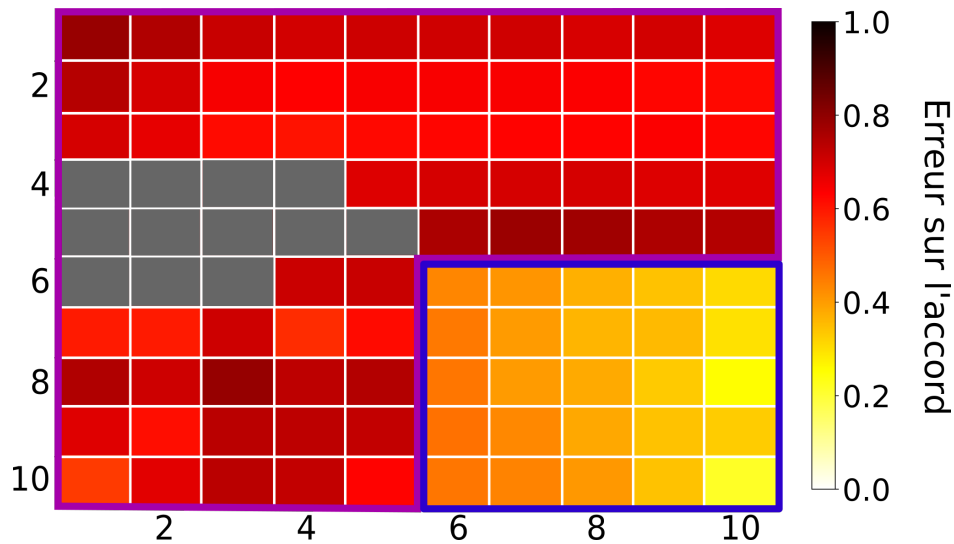


FIGURE 5.9 – Carte de l'accord de modes à partir des mesures au FTIR : pour la partie DFG (encadré en rose), l'erreur est égale à $Err_{DFG} = (Refl_{TE}(1.064) + Refl_{TM}(\lambda_1 TM) + Refl_{TM}(\lambda_{pompe}))/3$, et pour la SHG (bleu), l'erreur est égale à $Err_{SHG} = (Refl_{TE}(\lambda_2 TE) + Refl_{TM}(2 \times \lambda_2 TE))/2$. Les réseaux défectueux sont représentés en gris.

2 et 3 et quelques réseaux dans la partie multibarreaux. Pour la SHG, il semble que les dernières colonnes (qui correspondent à une fente plus élevée) soient plus favorables.

Il faut également vérifier que la longueur d'onde signal est dans la bande passante de la caméra de détection, qui est : $0.9 \mu m < \lambda < 1.7 \mu m$. Pour ce dernier point, tous les réseaux SHG fonctionnent, mais plusieurs réseaux DFG ont des longueurs d'onde signal trop hautes. C'est ce que l'on voit Fig. 5.10, où est tracée la réponse du détecteur aux longueurs d'onde de résonances signal (TM pour la DFG et TE pour la SHG). Une partie des réseaux a une résonance TM supérieure à $1.7 \mu m$, or la DFG se fait avec un signal TM. La caméra ne pourra donc pas voir le signal de ces réseaux.

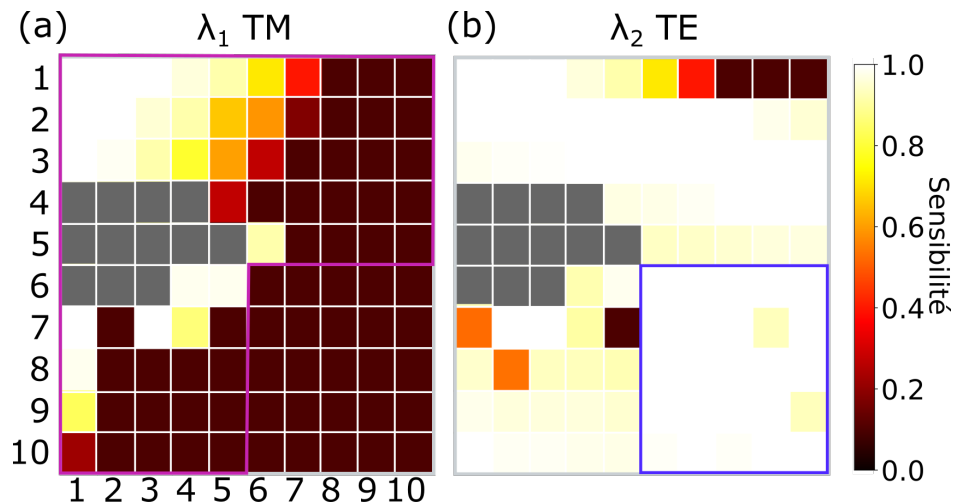


FIGURE 5.10 – Sensibilité du détecteur aux longueurs d'onde de résonances signal : (a) DFG TM (réseaux encadrés en rose), (b) SHG TE (réseaux encadrés en bleu).

Les mesures de réflectivité au FTIR nous ont permis de faire toutes les vérifications nécessaires pour la génération de SHG et DFG. Nous savons à présent quels sont les réseaux qui sont le plus susceptibles de générer un signal non linéaire. La caractérisation non linéaire peut donc commencer. Elle nécessite le montage d'un banc optique, qui sera d'abord équipé d'une seule pompe pour la caractérisation de la SHG. D'après les simulations, cet effet est moins efficace que la DFG, mais sa caractérisation nous permettra de tester le montage et de valider notre méthode de simulations. La caractérisation de la DFG viendra ensuite

avec l'ajout d'une deuxième pompe.

5.3.2 Caractérisation de la SHG

L'échantillon comporte 25 réseaux SHG (lignes 6 à 10, colonnes 6 à 10), qui sont des multibarreaux. Ils ont été conçus pour générer un signal SHG avec une pompe autour de $3.2 \mu\text{m}$, donnant un signal à $1.6 \mu\text{m}$. Cependant, nous avons d'abord réalisé les mesures sur des réseaux monobarreau, des lignes 1 à 5 et colonnes 6 à 10 de l'échantillon (la caractérisation des multibarreaux sera réalisée plus tard). Dans cette section je vais décrire le montage réalisé, ainsi que les mesures de SHG obtenues.

Description du montage

La pompe est générée par un oscillateur paramétrique optique (OPO) nanolevante pulsé à 20 kHz avec une durée d'impulsion de 1.5 ns. On utilise le complémentaire (idler) de l'OPO, qui génère à des longueurs d'onde comprises entre 2 et $4.1 \mu\text{m}$, avec une puissance moyenne de 10 mW, ce qui donne une puissance crête d'environ 300 W.

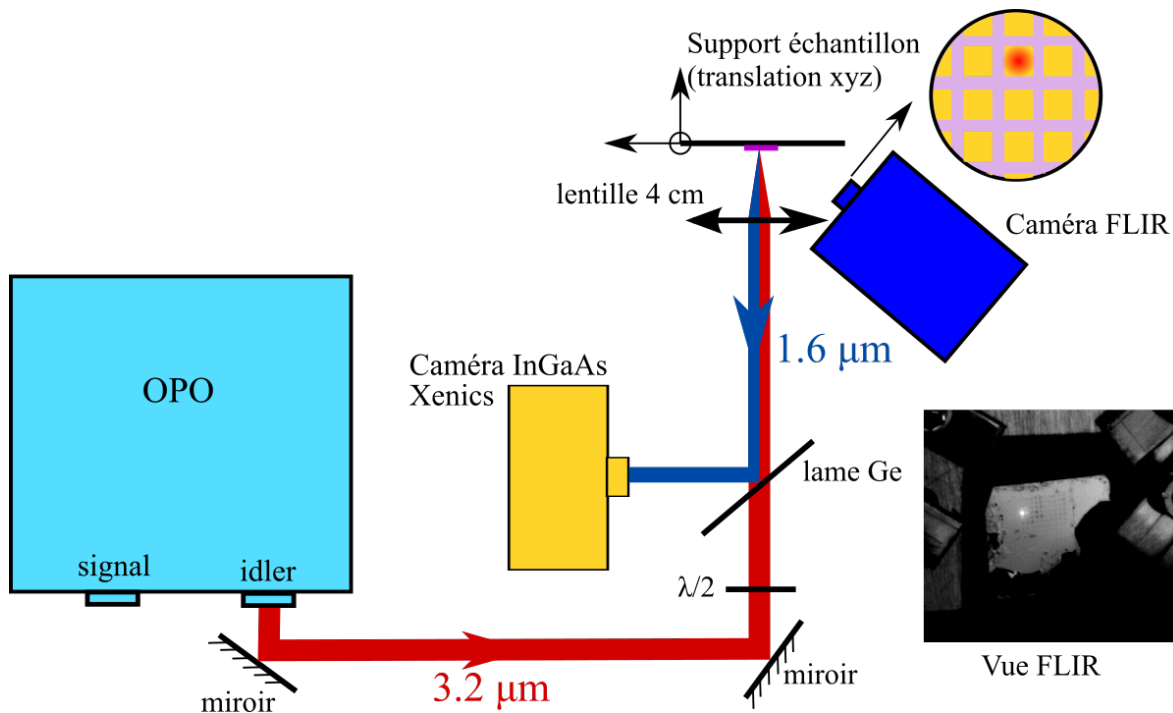


FIGURE 5.11 – Montage SHG : Le faisceau pompe à $3.2 \mu\text{m}$, généré par l'OPO et matérialisé en rouge, est polarisé TM en traversant la lame demi-onde. Il traverse la lame en germanium et est focalisé sur l'échantillon par la lentille. Le signal à $1.6 \mu\text{m}$, matérialisé en bleu, est réfléchi par la lame en germanium et arrive sur la caméra Xenics. La caméra FLIR SC7000 permet de visualiser le spot pompe focalisé sur l'échantillon (illustration par un schéma et une photo).

Le montage réalisé est décrit Fig. 5.11. Il répond à plusieurs problématiques décrites ci-après :

Structure du montage : L'objectif du montage est d'envoyer sur l'échantillon un faisceau incident à $3.2 \mu\text{m}$ à incidence normale, et de récupérer le signal généré à $1.6 \mu\text{m}$ dans la même direction, sur un photodétecteur. La manière la plus simple de réaliser cela est de mettre en place deux bras perpendiculaires : un d'injection et collection, et un de détection. Les deux bras doivent se rejoindre sur un miroir dichroïque qui différencie les deux longueurs d'onde en jeu : en effet, il doit être transparent pour la longueur d'onde pompe et réfléchissant pour la longueur d'onde signal. On utilisera pour cela une lame en germanium non traitée, qui transmet 90% au dessus de $2 \mu\text{m}$.

Focalisation : Le faisceau sortant de l'OPO a un diamètre de 8 mm. Il est nécessaire de le focaliser pour qu'il arrive sur l'échantillon avec une tache focale inférieure à la taille d'un réseau (300 μm). Pour des raisons de simplicité expérimentale et pour optimiser la taille de la tache focale et la densité d'énergie, nous choisissons d'utiliser une lentille en CaF_2 (matériau à faible dispersion spectrale et peu chromatique), de 4 cm de focale. Le spot a été mesuré au point focal avec la méthode des couteaux de Foucault et fait 200 μm de diamètre, ce qui est inférieur à la taille d'un réseau.

Alignement sur un réseau : Le montage doit permettre de sélectionner précisément le réseau sur lequel on veut travailler, il s'agit donc de distinguer les réseaux et de savoir sur lequel le spot pompe est focalisé. Sur l'échantillon, les réseaux sont très proches les uns des autres : il y a seulement 200 μm entre chaque réseau. Pour la caractérisation de l'échantillon, je dois pouvoir différencier les réseaux et m'aligner sur un en particulier. Etant donné la complexité du montage, il est plus simple de fixer le système optique optimisé et de déplacer l'échantillon autour du point focal de l'OPO. Pour cela, l'échantillon a été monté sur un support avec des platines de translations micrométriques en xyz . Pour visualiser les réseaux, j'utilise une caméra FLIR SC7000 (InSb, sensible entre 1.5 et 5.4 μm), qui permet de distinguer les réseaux ainsi que le spot de la pompe focalisée (visualisation par diffusion représentée Fig. 5.11 (schéma et photo)). Il est ainsi possible de s'aligner précisément sur le réseau voulu. La perpendicularité entre l'échantillon et le montage a été vérifiée par auto-collimation.

Détection du signal SHG : Compte tenu des caractéristiques du faisceau incident et de l'efficacité de conversion (10^{-8}W^{-1}), nous estimons que le signal généré devrait avoir une puissance de l'ordre du pW. Il nous faut donc un détecteur capable de distinguer ce faible signal. On pourrait utiliser un capteur mono-élément qui serait placé au centre de la cage, mais il serait inefficace en cas d'un très léger décalage du faisceau. Il faudrait également le placer au foyer d'une seconde lentille de focalisation. Toutes ces contraintes nous ont conduit à opter pour une caméra Xenics Xeva 1.7-320 (InGaAs). L'avantage est d'avoir une matrice de pixels qui nous permet de détecter le signal même s'il est un peu décalé spatialement. La caméra possède son propre objectif, et on peut se mettre au point en visualisant l'échantillon. Cela est beaucoup plus commode que d'utiliser un mono-élément et une lentille.

Mesures du signal SHG

Calibration de la caméra : Le signal SHG a été observé et caractérisé avec la caméra Xenics. Celle-ci donne un signal en ADU bins, ce qui ne fournit pas directement le flux généré. Il a donc fallu la calibrer avec les paramètres de l'expérience : temps d'intégration (100 ms), niveau plancher et niveau de saturation (voir le tableau 5.3.2). Elle a été calibrée avec l'aide de Sophie Derelle au labo EPICEA de l'ONERA sur un banc comportant une sphère intégrante et un monochromateur. Le banc de calibration est décrit sur la figure 5.12. Le monochromateur génère une source, qui est injectée dans la sphère intégrante. Elle y subit des réflexions multiples qui amène à une homogénéisation du flux dans toute la sphère. Le flux obtenu est mesuré par le détecteur. La caméra Xenics reçoit ce flux parfaitement connu, nous permettant de calibrer la caméra.

La calibration a été réalisée avec les mêmes paramètres de la caméra que pour les mesures de SHG, à savoir :

Temps d'intégration	100 ms
ADC V_{in} (moyenne)	3063 ADU
ADC V_{ref} (demi-largeur)	1831 ADU
Gain	low gain (nombre de charges stockables : 3.5×10^6)
Niveau plancher	700 ADU
Niveau de saturation	4100 ADU

TABLEAU 5.1 – Paramètres de la caméra Xenics

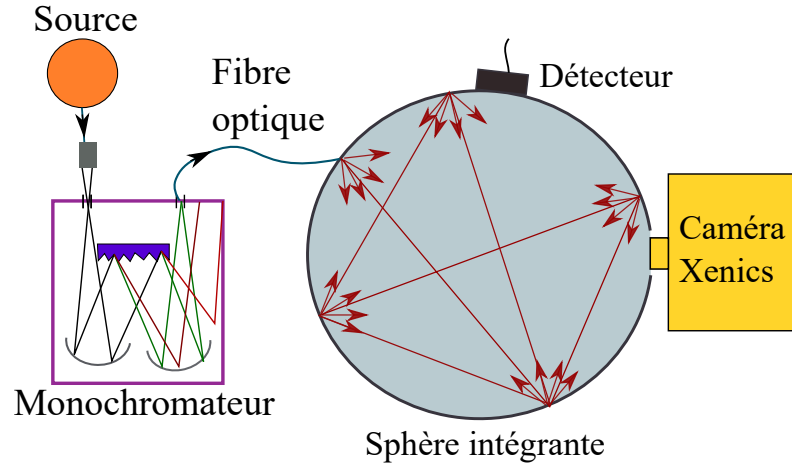


FIGURE 5.12 – Banc de calibration Epicea utilisé pour calibrer la caméra : La source est injectée dans le monochromateur qui sélectionne une longueur d'onde et adapte la puissance. Une fibre optique permet l'injection de la lumière dans une sphère intégrante, qui homogénéise le flux par réflexions multiples. Le détecteur permet de connaître ce flux qui arrive sur la caméra Xenics.

Nous avons effectué des mesures à la caméra pour plusieurs résolutions du monochromateur (la résolution est reliée au courant), et plusieurs temps d'intégration de la caméra. Ces mesures sont regroupées sur la figure 5.13. Une régression linéaire peut ainsi être faite pour un temps d'intégration de 100 ms (utilisé pour les mesures de SHG). On obtient :

$$\text{ADU} = 112.59 \times I + 7.2 \quad (5.6)$$

avec I le courant délivré par le monochromateur. On peut ainsi remonter au flux :

$$\Phi = \frac{IG}{E} \quad (5.7)$$

avec G l'étendue géométrique du détecteur de la caméra, E l'énergie.

Ce qui donne :

$$\Phi = \frac{\text{ADU} - 7.72}{112.59} \frac{G}{E} \quad (5.8)$$

La calibration de la caméra nous donne ainsi le flux SHG émis dans le montage, que l'on divise par le flux incident. Ce dernier a été mesuré à l'entrée du montage et réévalué en tenant compte des densités optiques présentes sur le trajet du faisceau :

$$\Phi_{inc} = \frac{\mathcal{P}_{inc} T_{\lambda/2} T_{Ge} T_{lentille}}{E_{inc}} \quad (5.9)$$

avec les taux de transmission : $T_{\lambda/2} = 0.97$, $T_{Ge} = 0.9$, $T_{lentille} = 0.95$.

Nous re-divisons par la puissance incidente \mathcal{P}_{inc} pour avoir une efficacité en W^{-1} .

Mesures préliminaires : La figure 5.14(a) présente les spectres mesurés à la caméra (en ADU bins) en fonction de la longueur d'onde pompe de quelques réseaux SHG de l'échantillon. On voit que le comportement spectral varie d'un échantillon à l'autre. Cela est dû aux différences dans les longueurs d'onde de résonance. Plusieurs réseaux ne produisent pas de signal mesurable. Nous avons donc un signal qui dépend de la position du spot pompe sur l'échantillon. De plus, pour nous assurer que nous sommes bien en présence d'un signal SHG, nous avons fait deux autres mesures de vérification. Tout d'abord, nous avons vérifié que la puissance signal dépend bien du carré de la puissance pompe (voir Fig. 5.14(c)), comme on s'y attend pour un signal SHG. Nous avons également vérifié que la puissance mesurée dépendait bien de la polarisation incidente. En effet, le faisceau pompe qui sort de l'OPO est polarisé TE par rapport aux réseaux.

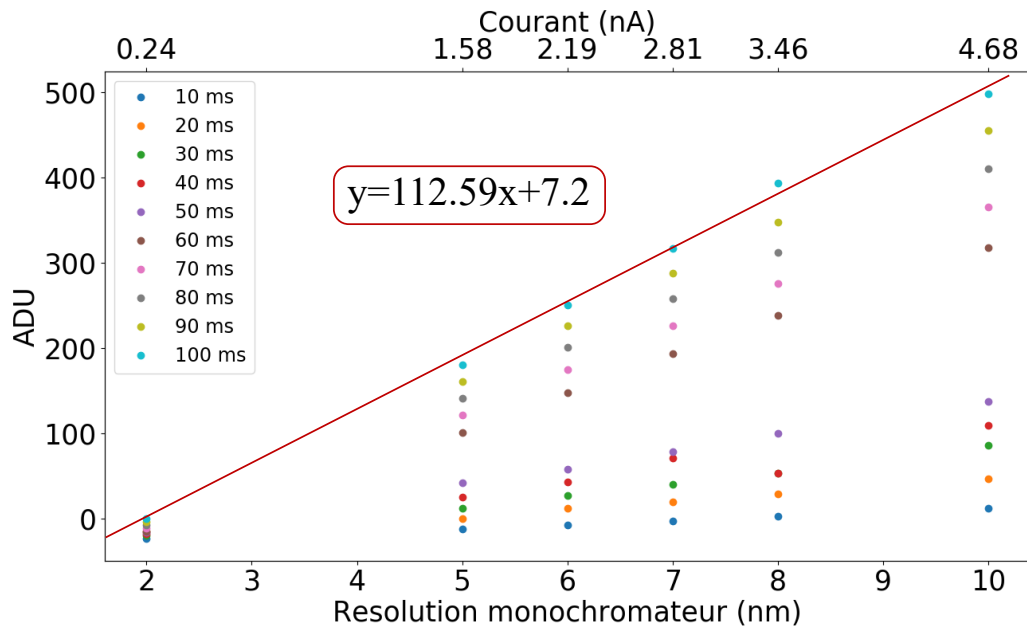


FIGURE 5.13 – ADU bins mesurés par la caméra sur le banc de calibration, en fonction du courant délivré par le monochromateur, pour plusieurs temps d’intégration de la caméra. Une régression linéaire a été réalisée pour un temps d’intégration de 100 ms.

On souhaite une pompe TM, il faut donc orienter la lame demi-onde à 45°. On voit Fig. 5.14(b) que le signal est maximal pour cet angle. On peut donc confirmer que l’on observe bien un signal SHG.

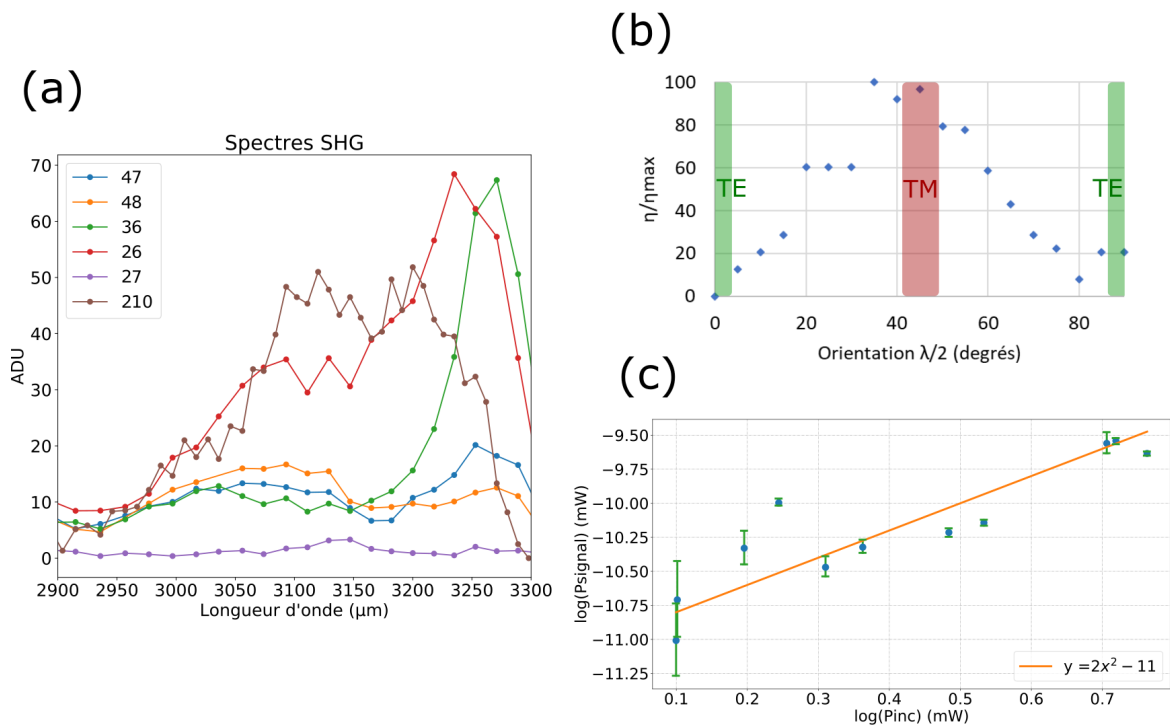


FIGURE 5.14 – Mesures du signal SHG : (a) Spectres SHG de différents réseaux en fonction de la longueur d’onde pompe en ADU bins (b) Signal SHG en fonction de l’orientation de la lame demi onde, pour le réseau 910, (c) Puissance du signal en fonction de la puissance pompe, en log (points bleus), et droite de régression linéaire de pente 2 (orange) pour le réseau 910.

Calcul de de la susceptibilité non linéaire effective : En partant de la mesure de la puissance émise en fonction de la puissance incidente, il est possible de calculer la susceptibilité non linéaire effective de la structure (susceptibilité d'une couche homogène équivalente), avec l'équation :³

$$I_2 = \frac{8\chi_{eff}^{(2)2}\omega_2^2 h^2 I_1^2}{\epsilon_0 c^2 n^3} \quad (5.10)$$

avec I_2 la puissance émise, I_1 la puissance incidente, n l'indice du GaAs, h l'épaisseur de GaAs que nous avons fixée à 142 nm. D'après la mesure, nous avons $I_2 = \alpha I_1^2 + \beta$, avec $\alpha = 8.58 \times 10^{-12}$. Nous avons donc :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \sqrt{\frac{\alpha n^3 \epsilon_0 c^2}{8\omega_2^2 h^2}} = 32 \text{ pm/V} \quad (5.11)$$

Pour comparer cela avec la simulation, on calcule la colocalisation des champs aux longueurs d'onde incidente et signal dans la couche.⁴ Ici la polarisation non linéaire créée est $P_y(\omega_2 = 2\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_x(\omega_1) E_z(\omega_1)$. La susceptibilité non linéaire effective est donc égale à :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \frac{\int_V \chi_{GaAs}^{(2)} E_x^{\omega_1} E_z^{\omega_1} E_y^{\omega_2} dV}{E_{inc}^3 V} = 50.5 \text{ pm/V} \quad (5.12)$$

avec V le volume non linéaire : $V = d \times h$.

On remarque que la susceptibilité effective est plus faible que la susceptibilité du matériau bulk, ce qui est dû à la très faible colocalisation des champs pompes (voir section 4.4.3).

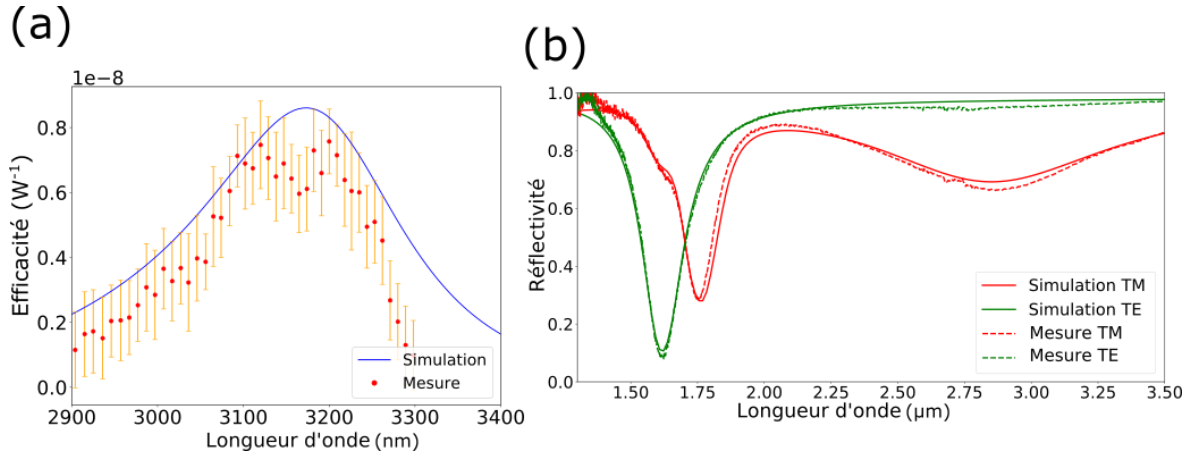


FIGURE 5.15 – (a) Mesure de l'efficacité SHG du réseau 210 (en rouge), en fonction de la longueur pompe, comparée avec la simulation (en bleu), (b) Spectre de réflectivité de ce réseau (TM en rouge, TE en vert, simulation en trait plein, mesures en pointillés).

Efficacité SHG mesurée : La figure 5.15(a) présente l'efficacité mesurée du réseau 910 ($w_1 = 315$ nm, $w_2 = 405$ nm, $d = 1.330$ μm). On voit qu'elle est très proche de la simulation. On observe cependant un élargissement spectral, qui est certainement dû à la distribution angulaire incidente qui n'est pas bien retranscrite en simulations (le non linéaire conique n'est pas implémenté dans BMM, on ne peut donc pas faire varier ϕ). La figure 5.15(b) présente le spectre de réflectivité de ce même réseau, en simulation et mesure. La résonance vers 1.6 μm explique que le pic d'efficacité se trouve pour une pompe vers 3.2 μm.

Nous avons à présent caractérisé la partie de l'échantillon conçue pour la génération de la SHG. Il y a une disparité dans l'efficacité des différents réseaux, mais plusieurs présentent une efficacité proche de la théorie. Nous pouvons à présent passer à la caractérisation de la DFG.

³BOYD, *Nonlinear Optics*.

⁴LIU, LEE, MARCH, NOOKALA, PALAFERRI, KLEM, BANK, BRENER et BELKIN, « Difference-Frequency Generation in Polaritonic Inter-subband Nonlinear Metasurfaces ».

5.3.3 Caractérisation de la DFG

L'échantillon compte 75 réseaux conçus pour la génération de DFG : 50 monobarreaux et 25 multibarreaux. Pour la caractérisation de la DFG, une pompe supplémentaire générant à $1.064 \mu\text{m}$ est nécessaire. Des difficultés supplémentaires par rapport à la caractérisation de la SHG sont à relever :

- Nous avons à présent deux pompes, qui doivent toutes les deux arriver sur l'échantillon à incidence normale, et être colocalisées sur le même réseau. Cela nécessite la mise en place d'un bras supplémentaire, avec un nouveau miroir dichroïque.
- La deuxième pompe à $1.064 \mu\text{m}$ est monochromatique. Cela enlève un degré de liberté par rapport à la SHG, qui bénéficiait d'une seule pompe accordable.
- Les deux pompes sont focalisées sur l'échantillon par la même lentille. Comme les deux longueurs d'onde sont assez différentes, cela induit une aberration chromatique sur la lentille. Cela veut dire que les deux faisceaux ne focaliseront pas à la même distance de la lentille.

On ne peut pas avoir deux pompes pulsées, car il faudrait synchroniser les trains d'ondes. Deux configurations de pompes ont été testées, toutes deux respectant le schéma représenté Fig. 5.16.

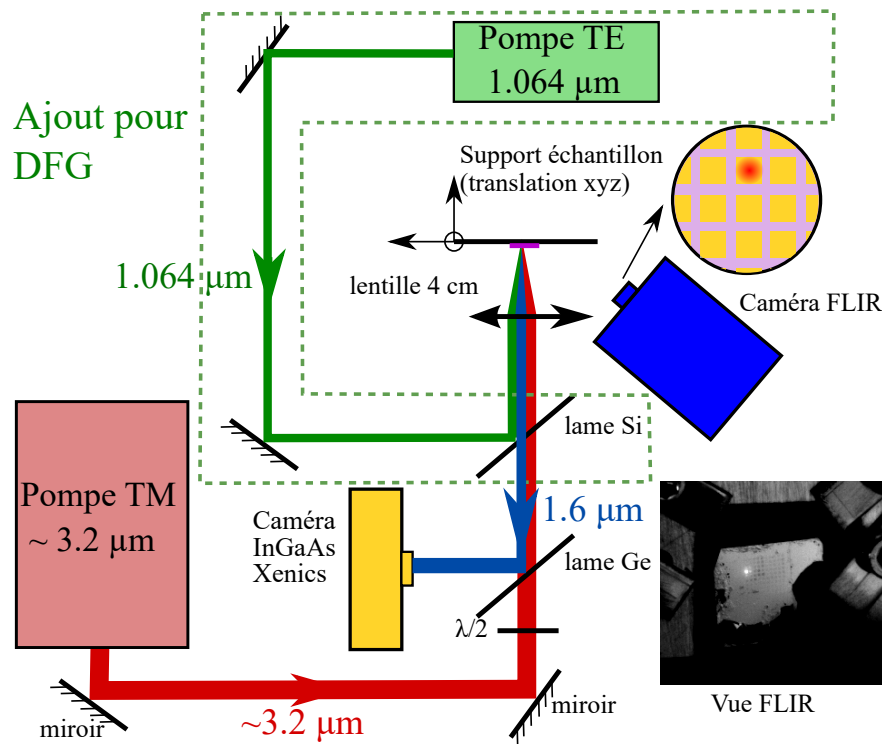


FIGURE 5.16 – Montage DFG : La pompe TM à $3.2 \mu\text{m}$, dont le trajet est matérialisé en rouge, traverse la lame en germanium et la lame en silicium et est focalisée sur l'échantillon. La pompe TE à $1.064 \mu\text{m}$, dont le trajet est matérialisé en vert, est réfléchi sur la lame en silicium et est focalisée sur l'échantillon. La caméra FLIR SC7000 permet de visualiser le spot pompe focalisé sur l'échantillon (illustration par un schéma et une photo). Le signal à $1.6 \mu\text{m}$, matérialisé en bleu, traverse la lame en silicium, et est réfléchi par la lame en germanium pour arriver sur la caméra.

Première configuration

Dans la première configuration, j'ai ajouté au montage SHG un laser continu émettant à $1.064 \mu\text{m}$ avec une puissance moyenne de 7 mW, ainsi qu'un miroir dichroïque en Si qui réfléchit la pompe à $1.064 \mu\text{m}$ à 99.7% et transmet respectivement le signal à $1.6 \mu\text{m}$ et la pompe à $3.2 \mu\text{m}$ à 99.2% et 87.52%. Ce montage présente des difficultés supplémentaires. D'abord, la deuxième pompe est beaucoup moins puissante,

ce qui amène à la génération d'un signal plus faible. Cependant, l'efficacité de la DFG (10^{-2} W^{-1}) devrait compenser cette faiblesse. Par ailleurs, il est indispensable que les deux sources focalisent au même endroit sur l'échantillon. Les deux faisceaux doivent également arriver à incidence normale sur l'échantillon. Cela est d'autant plus vrai pour la pompe à $1.064 \mu\text{m}$, car elle exalte une résonance de modes guidés très peu tolérante angulairement. De plus, cette deuxième pompe est continue et a donc une faible largeur spectrale. Comme elle est monochromatique, il est donc nécessaire que le réseau que l'on souhaite caractériser présente une résonance à exactement $1.064 \mu\text{m}$.

Deuxième configuration

Les essais étant infructueux, nous avons changé les sources, pour avoir la source pulsée à $1.064 \mu\text{m}$. Pour cela nous avons remplacé le laser continu par un laser picoseconde à $1.064 \mu\text{m}$, et l'OPO par un laser continu à $3.39 \mu\text{m}$. Les deux pompes sont à présent toutes les deux monochromatiques, ce qui fixe également la longueur d'onde signal. L'accord de modes est à présent :

$$\frac{1}{\underbrace{1.064 \mu\text{m}}_{\text{pompe TE}}} - \frac{1}{\underbrace{3.39 \mu\text{m}}_{\text{pompe TM}}} = \frac{1}{\underbrace{1.55 \mu\text{m}}_{\text{signal TM}}} \quad (5.13)$$

et l'on définit donc l'erreur sur l'accord de modes en conséquence :

$$\text{Err}_{\text{DFG}} = (\text{Refl}_{\text{TE}}(1.064) + \text{Refl}_{\text{TM}}(1.55) + \text{Refl}_{\text{TM}}(3.39))/3 \quad (5.14)$$

Cette erreur est tracée sur la figure 5.17. On remarque que l'erreur est plus élevée que dans le premier cas (Fig 5.9). Cependant, cette configuration reste intéressante car la résonance de modes guidés est à présent exaltée par la pompe pulsée, qui est plus puissante et présente une plus grande largeur spectrale.

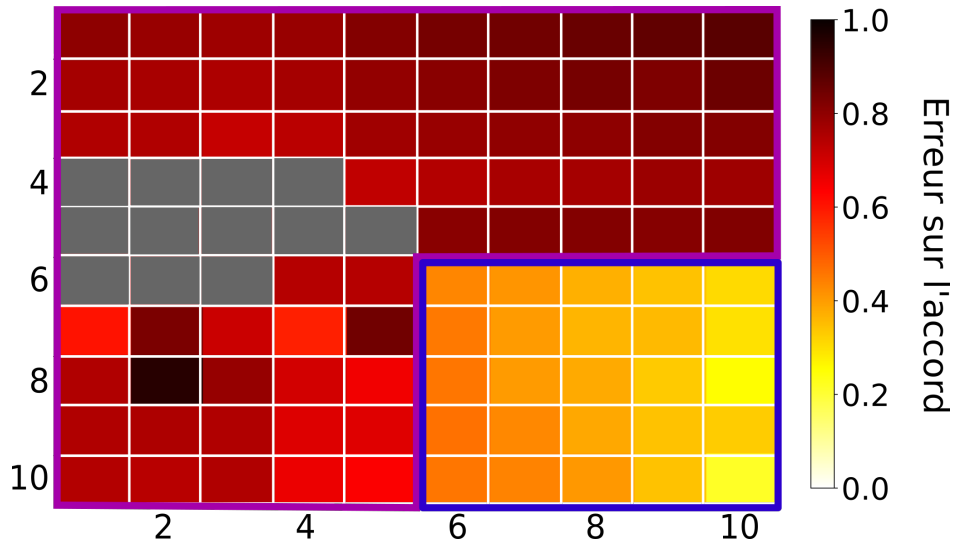


FIGURE 5.17 – Carte de l'accord de modes dans la deuxième configuration : pour la partie DFG (encadré en rose), l'erreur est égale à $\text{Err}_{\text{DFG}} = (\text{Refl}_{\text{TE}}(1.064) + \text{Refl}_{\text{TM}}(1.55) + \text{Refl}_{\text{TM}}(3.39))/3$, et pour la SHG (bleu), l'erreur est égale à $\text{Err}_{\text{SHG}} = (\text{Refl}_{\text{TE}}(\lambda_2 \text{TE}) + \text{Refl}_{\text{TM}}(2 \times \lambda_2 \text{TE}))/2$. Les réseaux défectueux sont représentés en gris.

Le laser picoseconde génère une puissance moyenne entre 5 et 18 W, à un taux de répétition de 75 MHz, et une durée d'impulsion de 8 ps. Cela donne une puissance crête entre 8 et 30 kW. Pour éviter d'endommager l'échantillon, nous atténuons la puissance avec une lame demi-onde suivie d'un polariseur. En effet, la très haute puissance du laser nous oblige à être précautionneux. Nous sommes obligés de focaliser avec une lentille, pour à la fois maximiser la puissance surfacique de la pompe continue (qui ne génère que 4 mW), n'éclairer qu'un seul réseau, et agrandir l'image de l'échantillon sur la caméra. Nous avons d'abord

choisi une lentille en CaF_2 de 15 cm de focale, puis nous sommes passés à une lentille en BaF_2 de 7.5 cm de focale pour agrandir l'image sur la caméra.

Pour éviter d'endommager les barreaux d'or avec le laser focalisé, nous avons effectué des calculs thermiques avant de tester ce nouveau laser. Nous avons calculé qu'avec une puissance crête de 8 kW, après une impulsion de 8 ps, la température de l'échantillon augmente de 12 K. Comme la fréquence de répétition du laser est élevée (1 impulsion toutes les 13 ns), nous avons effectué des calculs complémentaires. Des simulations sous Comsol ont été réalisées par Clément Verlhac (doctorant à l'Onera) et ont déterminé que pour un spot focalisé de $200\mu\text{m}$ de rayon, nous devrions envoyer au maximum une puissance moyenne de 300 mW pour éviter d'endommager d'échantillon (cette puissance amène tout de même à une élévation de la température de près de 300K).

Bien que faible, cette puissance est tout de même suffisante pour que la caméra Xenics détecte la réflexion sur l'échantillon. Cela malgré la présence du miroir dichroïque et d'un filtre diélectrique placé devant la caméra, qui coupe en dessous de $1.4\mu\text{m}$. Avec la caméra FLIR, qui ne détecte pas le $1.064\mu\text{m}$, on peut également observer la diffusion induite par le laser. On peut donc observer à la caméra FLIR les deux spots pompes, ce qui n'était pas le cas auparavant. Cela facilite l'alignement et la colocalisation des deux pompes.

La réflexion sur l'échantillon a été mesurée avec un détecteur InGaAs Judson J22. Les résultats sont présentés sur la figure 5.18. Le photocourant arrivant sur le détecteur (fixé à la place de la caméra Xenics) y est affiché en fonction du réseau sélectionné. Ce n'est pas une mesure de réflectivité car ce n'est pas normalisé par une référence, mais cela donne la capacité des réseaux à réfléchir le $1.064\mu\text{m}$. On remarque que les réseaux défectueux ont une très forte réflectivité. Les réseaux qui ont une faible réflectivité sont les plus susceptibles d'absorber le $1.064\mu\text{m}$ et donc de générer un signal DFG. Cependant, il ne faut pas oublier les autres paramètres influant sur la génération, comme le respect de l'accord de modes présenté en Fig. 5.17.

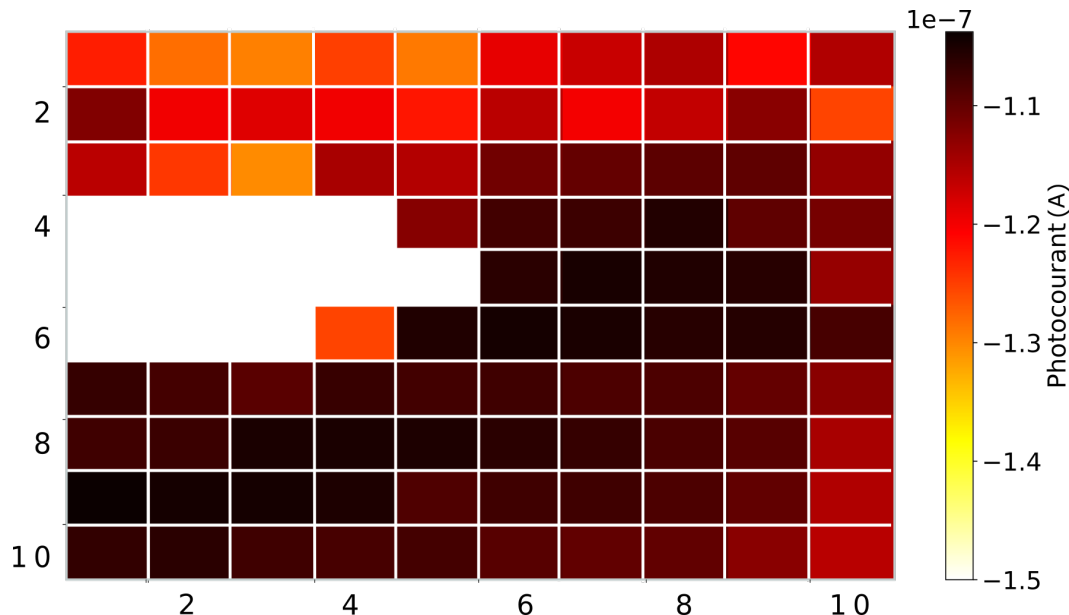


FIGURE 5.18 – Mesure de la réflexion du laser picoseconde sur l'échantillon, reçue par le détecteur Judson (photocourant en Ampère). Les réseaux défectueux saturent la colorbar.

Le tableau 5.2 résume les deux configurations.

	Pompe TE	Pompe TM
Cas 1	Continu $1.064\mu\text{m}$ 7 mW	Picoseconde $1.064\mu\text{m}$ 75 MHz
Cas 2	OPO nanoseconde 20 kHz	Continu $3.39\mu\text{m}$ 4 mW

TABLEAU 5.2 – Résumé des deux configurations pour la génération de DFG.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu la caractérisation expérimentale d'un échantillon composé de plusieurs résonateurs de type guide d'onde, pour générer de la SHG et de la DFG. Nous avons vu le procédé de fabrication utilisé, qui est relativement simple grâce au fait que le matériau non linéaire n'est pas gravé. Avant d'effectuer la caractérisation non linéaire, il était nécessaire de vérifier les propriétés résonantes de l'échantillon en mesurant les spectres linéaires au FTIR. Deux montages non linéaires ont ensuite été réalisés pour caractériser la SHG et la DFG. Les mesures de SHG ont permis d'obtenir des spectres non linéaires en accord avec les simulations. La caractérisation de la DFG est plus complexe et n'a pas encore donné de résultats.

Troisième partie

Nouvelles structures et matériaux

Dans cette dernière partie nous allons explorer les possibilités offertes par des structures ou matériaux différents, dans le but d'améliorer l'efficacité non linéaire. Nous allons d'abord voir le résonateur de Helmholtz, qui permet de confiner le champ électrique avec un facteur d'exaltation bien supérieur aux autres nanostructures étudiées ici. Puis nous allons revenir sur le résonateur guide d'onde, en explorant les possibilités de changement de matériau et de longueur d'onde, allant vers la génération de THz, et du passage à la nanostructuration 2D et aux effets non linéaires d'ordre 3.

Chapitre

6

Le résonateur de Helmholtz

Sommaire

6.1 La résonance de Helmholtz	79
6.1.1 Exaltation du champ électrique	80
6.1.2 Modèle LC du résonateur	80
6.2 Résonateur double cavité pour la SHG	82
6.2.1 Possibilités d'architecture double cavité	82
6.2.2 Double cavité latérale	83
6.2.3 Génération de SHG	84

Dans ce chapitre, nous allons nous intéresser à une structure prometteuse pour l'exaltation des effets non linéaires : le résonateur de Helmholtz. Adapté de l'acoustique par Paul Chevalier (ancien docteur à l'Onera),¹ ce résonateur permet une exaltation du champ électrique supérieure aux nanoantennes d'un à deux ordres de grandeur. On devine que si l'on introduit un matériau non linéaire dans cette structure, on peut générer une très forte polarisation non linéaire. Cette idée a déjà été explorée par Sébastien Héron,² mais compte tenu des contraintes supplémentaires associées à l'optique non linéaire, le résonateur qu'il a proposé s'est avéré difficilement fabricable. Ici je propose une version dont la fabrication est plus envisageable.

6.1 La résonance de Helmholtz



FIGURE 6.1 – Résonateur de Helmholtz acoustique

Le résonateur de Helmholtz a d'abord été étudié dans sa version acoustique, illustrée Fig. 6.1. Il est composé d'une cavité surmontée d'une fente très fine. Le système peut être modélisé comme un système

¹Paul CHEVALIER, Patrick BOUCHON, Jean-Jacques GREFFET, Jean-Luc PELOUARD, Riad HAIDAR et Fabrice PARDO. « Giant field enhancement in electromagnetic Helmholtz nanoantenna ». *Physical Review B* 90.19 (2014), p. 195412; CHEVALIER, BOUCHON, HAIDAR et PARDO, « Optical helmholtz resonators ».

²HÉRON, « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ».

masse-ressort : l'air contenu dans la fente oscille et comprime l'air contenu dans la cavité. Cela crée une résonance, unique car les dimensions ne permettent pas de résonances harmoniques.

6.1.1 Exaltation du champ électrique

L'analogie optique du résonateur de Helmholtz est également composé d'une cavité et d'une fente, entourées d'or. Il est représenté Fig. 6.2(a).

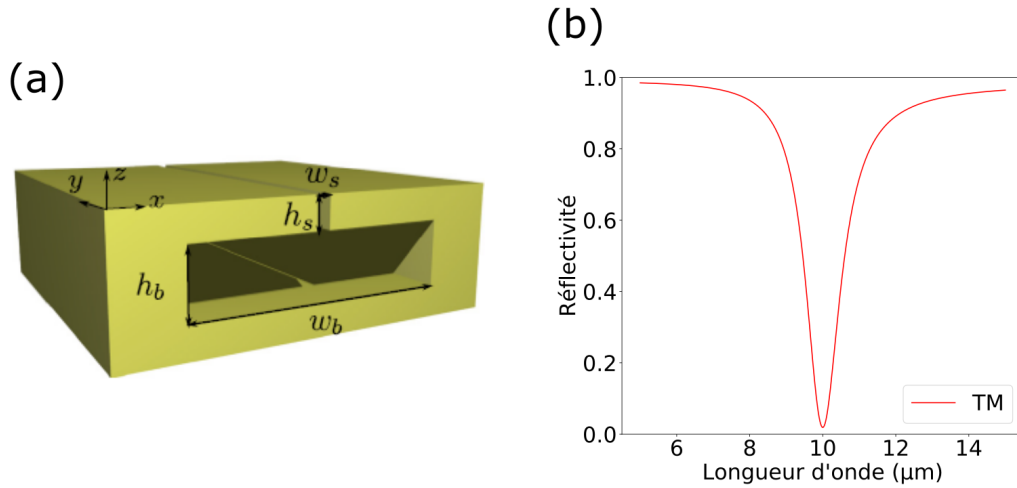


FIGURE 6.2 – Résonateur de Helmholtz optique : (a) Structure avec $w_s = 15$ nm, $h_s = 15$ nm, $h_b = 200$ nm, $w_b = 400$ nm, la fente et la cavité sont remplis de ZnS, (b) Spectre de réflectivité TM.

Ce résonateur présente donc une résonance optique, en polarisation TM, illustrée Fig. 6.2(b). On voit en Fig. 6.3(a) les flux de Poynting entrant dans le résonateur, se concentrant dans la fente très fine (largeur de $\lambda/800$). Cela donne l'exaltation du champ présentée en Fig. 6.3(b) : le facteur d'exaltation en intensité atteint 10^4 dans la fente, alors que dans les nanoantennes vues précédemment, il atteignait à peine 100.

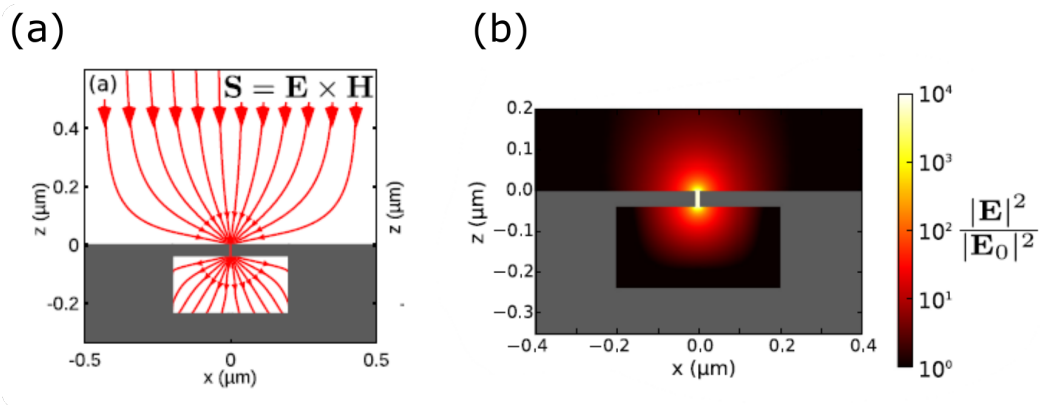


FIGURE 6.3 – Résonateur de Helmholtz optique : (a) Flux de Poynting entrant dans le résonateur, (b) Carte du champ électrique ($\lambda = 10$ μm).

6.1.2 Modèle LC du résonateur

Ce résonateur a un comportement que l'on peut assimiler à un circuit LC. En effet, la cavité se comporte comme une inductance et la fente comme une capacité. Ces grandeurs sont reliées aux paramètres géométriques de la structure par ces équations :

$$C_{\text{fente}} = \epsilon_0 \epsilon_s \frac{h_s L_y}{w_s} \tag{6.1}$$

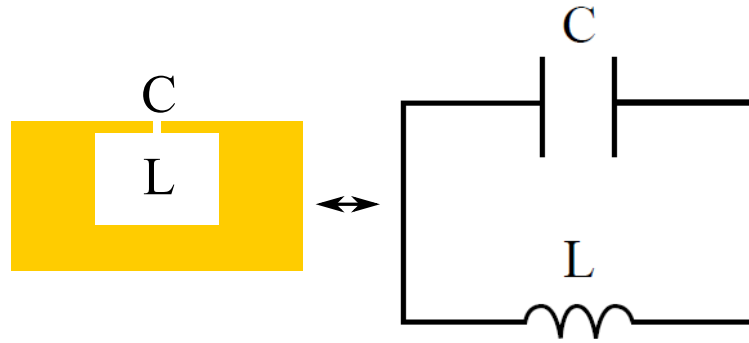


FIGURE 6.4 – Analogie du résonateur de Helmholtz avec un circuit LC

$$L_{\text{boite}} = \mu_0 \frac{w_b h_b}{L_y} \quad (6.2)$$

avec ϵ_s la permittivité du matériau présent dans la fente, et L_y est la dimension de la boîte selon la direction y (arbitraire car les simulations se feront avec les dimensions selon y infinies, et car elle va s simplifier par la suite).

On peut ainsi avoir une expression pour la longueur d'onde de résonance, comme pour le circuit LC où $f_{LC} = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$:

$$\lambda_H \approx 2\pi \sqrt{\epsilon_s \frac{w_b h_b h_s}{w_s}} \quad (6.3)$$

Dans l'étude qui suit, je vais m'intéresser à une version légèrement différente de ce résonateur. Celle-ci est illustrée sur la figure 6.5, où on y voit un résonateur présentant deux fentes horizontales. Dans ce cas,

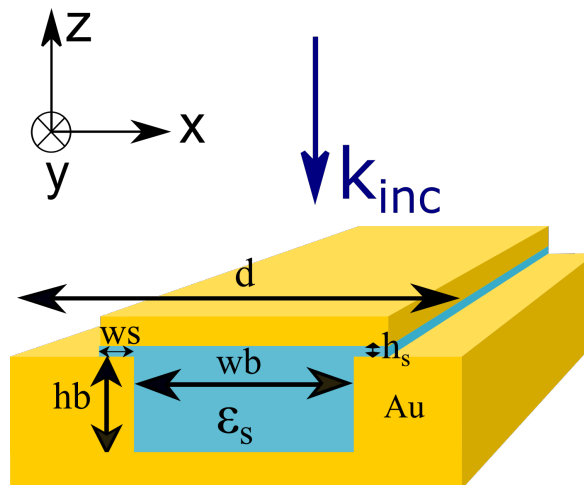


FIGURE 6.5 – Résonateur de Helmholtz à fentes horizontales. Les deux fentes ont des dimensions identiques h_s et w_s .

la formule de la longueur d'onde de résonance change légèrement : Il y a maintenant deux fentes, donc la capacité effective est divisée par deux. Elles sont horizontales, donc les paramètres géométriques sont inversés dans la définition de la capacité :

$$\lambda_H = 2\pi \sqrt{\epsilon_s \frac{w_b h_b w_s}{2h_s}} \quad (6.4)$$

Ce modèle LC ne prend pas en compte la nature inductive de l'or, qui augmente lorsque l'on se rapproche de la fréquence plasma. On peut également prendre en compte les effets de bord dans la fente, pour

considérer une largeur effective : $w_{seff} = w_s + Kh_s$. On arrive à une définition de la longueur d'onde de résonance plus raffinée :

$$\lambda_H = 2\pi A \sqrt{\epsilon_s \frac{w_b h_b (w_s + Kh_s)}{2h_s}} + B\lambda_p \quad (6.5)$$

Où A, B et K sont des paramètres à déterminer par régression, et λ_p est la longueur d'onde plasma de l'or.

Nous avons donc un résonateur qui présente une forte exaltation du champ dans la fente, ainsi qu'un modèle pour approximer la longueur d'onde de résonance. Pour permettre la génération d'effets non linéaires, il faut introduire un matériau non linéaire dans la fente, où l'exaltation est la plus forte. Cela joue sur la longueur d'onde de résonance, comme on le voit dans l'équation 6.3. Pour la fabrication, il faudrait également remplir la cavité de ce matériau. Il a été montré que le milieu de la cavité n'a pas d'influence sur la longueur d'onde de résonance.³

6.2 Résonateur double cavité pour la SHG

Il serait donc possible d'exploiter la forte exaltation du champ électrique de ce résonateur pour exalter des effets non linéaires. Cependant, la résonance de Helmholtz est unique (elle ne se produit qu'à une seule longueur d'onde). Or, comme on l'a vu précédemment, il nous faut une structure multirésonante. En effet, il nous faut au moins deux résonances, pour générer de la SHG, présentant évidemment l'accord de modes associé ($\lambda_1 = 2\lambda_2$).

Pour cela on peut associer deux cavités différentes dans une même période.

6.2.1 Possibilités d'architecture double cavité

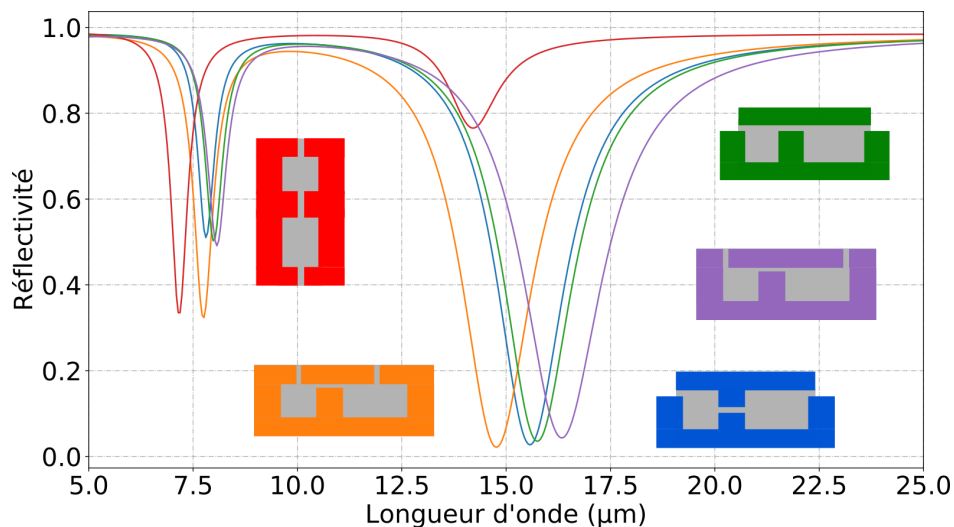


FIGURE 6.6 – Spectre de réflectivité TM pour différentes architectures de résonateur de Helmholtz double cavité. Les boîtes ont la même hauteur (largeur dans le cas rouge) mais pas la même largeur (hauteur dans le cas rouge). Les fentes 1 et 3 (fentes en contact avec l'air) ont les mêmes dimensions. La fente du milieu a une largeur (hauteur dans le cas rouge) plus grande. Les paramètres sont : $hb = 150$ nm, $wb_1 = 150$ nm, $wb_2 = 570$ nm, $ws_1 = 30$ nm, $wb_2 = 100$ nm, $h_s = 10$ nm. Les fentes et les cavités sont remplies de GaAs.

Il y a plusieurs façons d'associer deux cavités. La figure 6.6 présente différentes solutions, avec leurs spectres de réflectivité. On peut d'abord les superposer, comme l'a fait Sébastien Héron.⁴ Cette solution, schématisée en rouge sur la figure 6.6, présente bien deux résonances. Cependant, sa fabrication n'est pas envisageable. Une manière de simplifier la réalisation pratique est de mettre les deux cavités côte à côte.

³CHEVALIER, BOUCHON, HAIDAR et PARDO, « Optical helmholtz resonators ».

⁴HÉRON, « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ».

Cela suppose que les deux cavités aient la même hauteur. On perd donc un degré de liberté. Plusieurs versions sont proposées (en orange, bleu et vert). Elles diffèrent par la position des fentes et leurs orientations (verticales ou horizontales). Les quatre solutions proposées ont les mêmes paramètres, elles sont donc censées avoir le même comportement. Nous remarquons cependant des différences, malgré un comportement spectral très proche. Dans sa thèse, Paul Chevalier a montré que les fentes horizontales induisaient des longueurs d'onde de résonances plus élevées. Cela est dû au fait que la capacité équivalente d'une fente horizontale est plus faible que pour une fente verticale. Il a également montré que la position de la fente influe aussi sur la longueur d'onde de résonance, l'augmentant lorsqu'elle s'éloigne du centre de la cavité. La solution rouge diffère des autres par sa configuration particulière. En effet, la lumière incidente ne rentre que par la fente du haut, alors que les configurations à cavités superposées ont deux fentes d'entrée. La solution optimale pour le cas rouge est d'avoir deux boîtes carrées. Cependant, cela n'est pas possible pour les autres configurations. Dans la suite je vais étudier la configuration verte pour la génération de SHG, car cette configuration nécessite moins d'étapes de fabrication.

6.2.2 Double cavité latérale

C'est ce que je présente dans la figure 6.7(a), où est illustré un résonateur de Helmholtz avec deux cavités côte à côte. Les cavités et les fentes sont remplies de GaAs. Pour des raisons de simplicité de fabrication, les hauteurs des cavités h_b sont les mêmes, ainsi que les hauteurs des fentes h_s . La figure 6.7(b) présente le circuit LC équivalent.

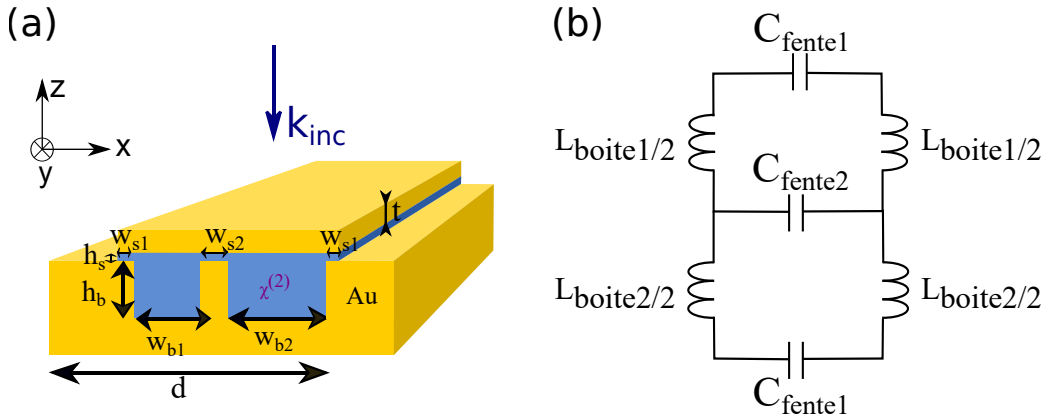


FIGURE 6.7 – (a) Résonateur de Helmholtz double, (b) Analogie circuit LC : la fente1 a une largeur w_{s1} et une hauteur h_s , la fente2 a une largeur w_{s2} et une hauteur h_s , la boîte1 a une largeur w_{b1} et une hauteur h_b , la boîte2 a une largeur w_{b2} et une hauteur h_b .

On peut déduire de ce circuit LC l'expression de la longueur d'onde de résonance. Dans ce cas on obtient deux longueurs d'onde de résonances λ_+ et λ_- :

$$\lambda_{\pm} = 2\pi A \sqrt{\frac{2X_1 X_2}{(X_1 + X_2 + X_{12} + X_{21}) \pm \sqrt{(X_1 + X_2 + X_{12} + X_{21})^2 - 8X_1 X_2 - 4X_{12} X_{21}}}} + B\lambda_p \quad (6.6)$$

avec

$$X_1 = \frac{\epsilon_s w_{b1} h_b h_s}{w_{s1} + K h_s}, X_2 = \frac{\epsilon_s w_{b2} h_b h_s}{w_{s2} + K h_s}, X_{12} = \frac{\epsilon_s w_{b2} h_b h_s}{w_{s1} + K h_s}, X_{21} = \frac{\epsilon_s w_{b1} h_b h_s}{w_{s2} + K h_s} \quad (6.7)$$

Ces équations nous montrent que les deux longueurs d'onde de résonance dépendent de tous les paramètres. Il n'y a donc pas une résonance qui dépend de la boîte 1 et l'autre de la boîte 2. D'ailleurs, si l'on calcule les spectres des deux résonateurs séparés, on s'aperçoit que le spectre du résonateur total n'est pas la somme des deux spectres séparés (voir Fig. 6.8). Il y a donc un couplage entre les deux cavités, ce qui est opportun, car pour générer de la SHG, on veut que le champ soit colocalisé pour les deux longueurs d'onde.

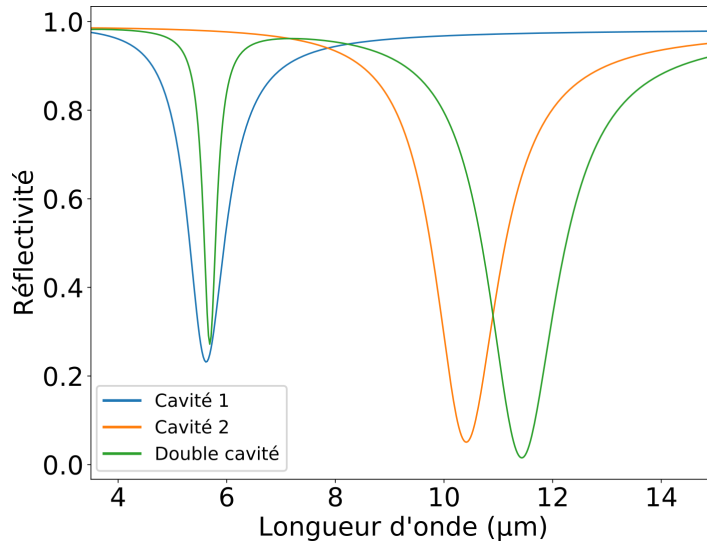


FIGURE 6.8 – Spectre de réflectivité du résonateur en fonction de h_s . Les paramètres de la structure sont : $h_b = 150$ nm, $w_{b1} = 240$ nm, $w_{b2} = 2.2w_{b1}$, $w_{s1} = 30$ nm, $w_{s2} = 3.34w_{s1}$

On définit :

$$\alpha = \frac{X_1}{X_{21}} = \frac{w_{s2} + Kh_s}{w_{s1} + Kh_s} \quad (6.8)$$

$$\beta = \frac{X_{12}}{X_1} = \frac{w_{wb2}}{w_{b1}} \quad (6.9)$$

L'équation 6.6 nous permet de trouver les conditions imposant $\lambda_+ = 2\lambda_-$ pour la SHG :

$$(16\beta^2 + 32\beta + 16)\alpha^2 + (-68\beta^2 - 136\beta + 32)\alpha + 16\beta^2 + 32\beta + 16 = 0 \quad (6.10)$$

Il y a un grand nombre de couples de solutions (α, β) . Je choisis le couple : $\alpha = 3.73$ et $\beta = 4$. La figure 6.9 présente la réflectivité de la structure en fonction du paramètre h_s . On y voit deux résonances qui respectent l'accord de modes $\lambda_+ = 2\lambda_-$. Ce dimensionnement permet d'ajuster les paramètres A, B et K. Les courbes des longueurs théoriques calculées avec $A=1.15$, $B=18$ et $K=0.5$ sont tracées sur la même figure.

On a donc une règle de conception d'une structure résonante respectant l'accord de modes de la SHG.

6.2.3 Génération de SHG

La résonance de Helmholtz n'apparaît qu'en polarisation TM. La SHG doit donc se faire avec une pompe et un signal TM. On a vu dans le chapitre 4 que ce n'est pas possible avec le GaAs orienté (100) comme matériau non linéaire. Les solutions possibles sont d'utiliser du GaAs orienté (110), ou un autre matériau, comme le GaN, qui a, entre autres, un $\chi_{zzz}^{(2)}$. Nous allons exploiter cette composante car la résonance de Helmholtz exalte préférentiellement le champ E_z dans la fente horizontale.

La figure 6.10 présente le spectre de réflectivité d'un tel résonateur avec du GaN. On y voit deux résonances : $\lambda_+ = 11.4$ μm et $\lambda_- = 5.66$ μm .

La figure 6.11 présente les cartes de champs de la structure aux deux longueurs d'onde résonantes. On voit que le champ E_z est exalté dans toutes les fentes. Le facteur d'exaltation va de quelques centaines à 1000. Le champ magnétique est concentré dans la première fente pour λ_- et dans la deuxième fente pour λ_+ .

Puisque l'on exploite le $\chi_{zzz}^{(2)}$, la polarisation non linéaire générée est la suivante :

$$\mathcal{P}_z^{(2)}(\omega_2 = 2\omega_1) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathcal{E}_z(\omega_1) \mathcal{E}_z(\omega_1) \quad (6.11)$$

Il y a donc une colocalisation automatique des champs pompes. Le facteur d'exaltation est très important,

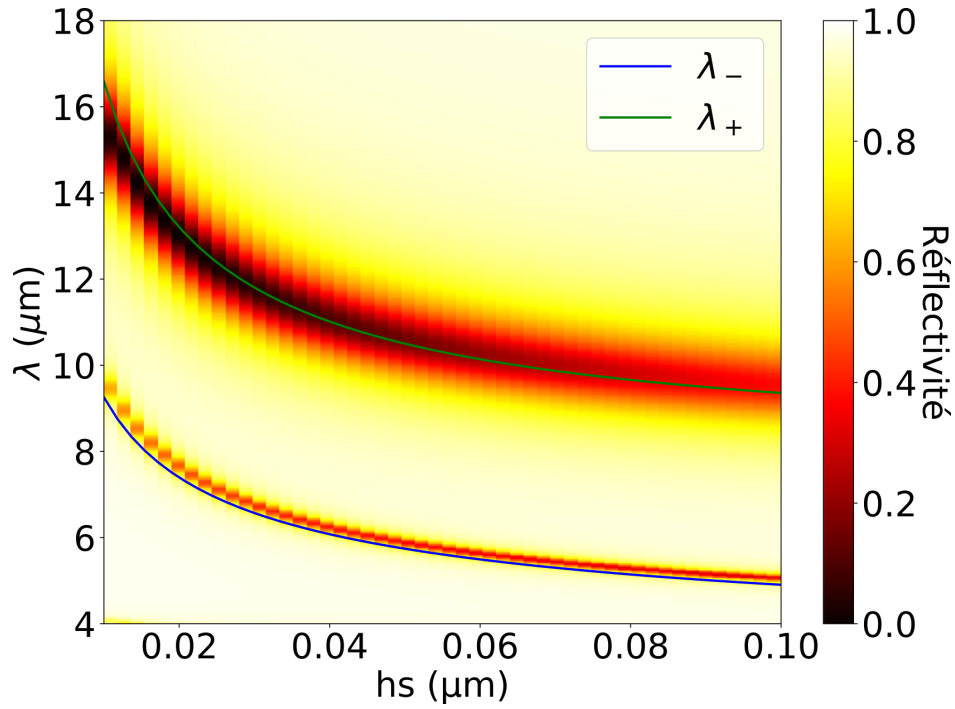


FIGURE 6.9 – Spectre de réflectivité du résonateur de Helmholtz double cavité en fonction de h_s . Les paramètres de la structure sont : $h_b = 150$ nm, $w_{b1} = 240$ nm, $w_{b2} = 2.2w_{b1}$, $w_{s1} = 30$ nm, $w_{s2} = 3.34w_{s1}$

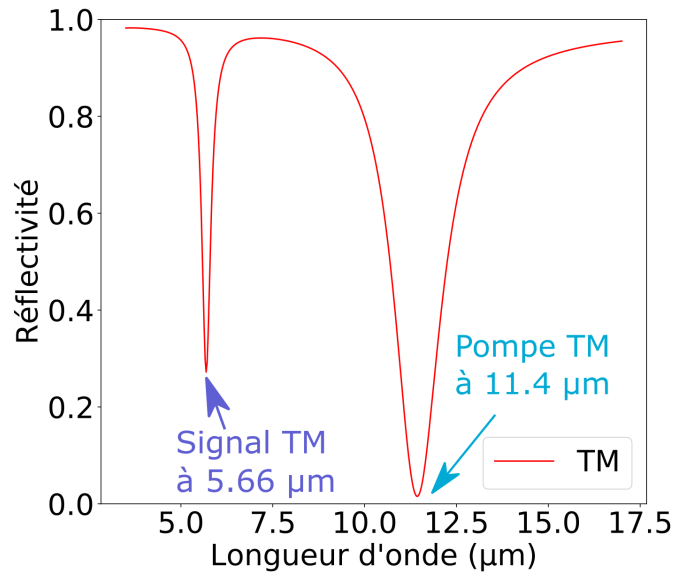


FIGURE 6.10 – Spectre de réflectivité du résonateur de Helmholtz double cavité latérale, avec les fentes et cavités remplies de GaN. Les paramètres de la structure sont : $h_b = 150$ nm, $w_{b1} = 150$ nm, $w_{b2} = 570$ nm, $w_{s1} = 30$ nm, $w_{s2} = 100$ nm

dans un volume exalté assez faible (uniquement dans les fentes), l'intégration de la polarisation normalisée n'est donc pas très élevée :

$$P_{znorm} = \frac{1}{d} \int_{z_1}^{z_2} \int_{x=0}^{x=d} \frac{E_z E_z}{E_{inc}^2} dx dz = 138 \mu\text{m} \quad (6.12)$$

Malgré tout, l'extraction est assez élevée (0.37), l'efficacité générée est donc intéressante : $\Pi = \frac{\mathcal{P}_{SHG}}{\mathcal{P}_{inc}^2} = 8 \times 10^{-3} \text{W}^{-1}$. Ce résonateur est donc légèrement moins efficace que le résonateur guide d'onde avec GaAs

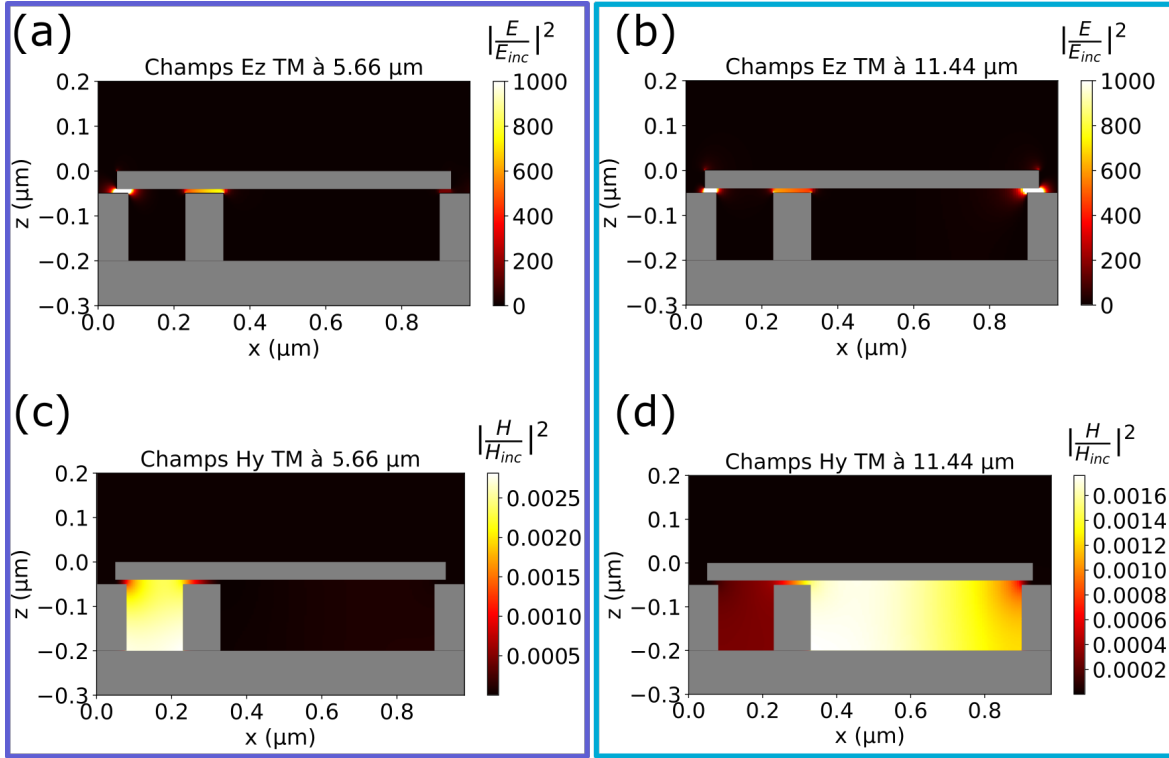


FIGURE 6.11 – Cartes de champ du résonateur de Helmholtz double cavité latérale, avec les fentes et cavités remplies de GaN : (a) Champ E_z à $\lambda_- = 5.66 \mu\text{m}$, (b) Champ E_z à $\lambda_+ = 11.4 \mu\text{m}$, (c) Champ H_y à $\lambda_- = 5.66 \mu\text{m}$, (d) Champ H_y à $\lambda_+ = 11.4 \mu\text{m}$. Les paramètres de la structure sont : $h_b = 150 \text{ nm}$, $w_{b1} = 150 \text{ nm}$, $w_{b2} = 570 \text{ nm}$, $w_{s1} = 30 \text{ nm}$, $w_{s2} = 100 \text{ nm}$, $h_s = 10 \text{ nm}$

($\Pi = 1.4 \times 10^{-2} \text{ W}^{-1}$, voir le chapitre 4), avec une susceptibilité d'un ordre de grandeur plus faible.

Le tableau 6.1 résume les propriétés du résonateur de Helmholtz. On y voit que l'extraction est supérieure à toutes les autres structures présentées dans le manuscrit. Cela s'explique par la très faible épaisseur de couche considérée (10 nm).

Structure	Longueurs d'onde	Colocalisation	Extraction	Efficacité	Description
Helmholtz SHG	11.4 \rightarrow 5.66	138	0.37	8×10^{-3}	6.2.3

TABLEAU 6.1 – Synthèse des propriétés du résonateur de Helmholtz SHG : les longueurs d'onde sont en microns, la colocalisation en μm^{-1} , et l'efficacité en W^{-1} .

Conclusion

En conclusion, le résonateur de Helmholtz présente une exaltation des champs très intéressante pour la génération d'effets non linéaires. Cependant, le volume exalté est faible et cela réduit la polarisation non linéaire donc l'efficacité. Malgré cela, l'extraction de ce résonateur surpasse toutes les autres structures de type guide d'onde présentées dans le manuscrit. Il faut donc peut-être chercher un compromis entre facteur d'exaltation et volume exalté. Par ailleurs, même si cette configuration est moins complexe à fabriquer que la superposition de deux cavités, elle nécessite plus d'étapes de fabrication que le guide d'onde. De plus, les longueurs d'onde de résonances avec ce résonateur sont plus élevées que pour le résonateur guide d'onde, avec des dimensions similaires. Si l'on voulait atteindre les mêmes longueurs d'onde (entre 1 et 3 μm , contre 5 et 12 μm actuellement), il faudrait réduire les dimensions, ce qui peut s'avérer compliqué pour la fabrication.

Chapitre

7

Résonateur guide d'onde avec d'autres matériaux

Sommaire

7.1 Résonateur guide d'onde avec GaN	87
7.1.1 Configuration zzz	88
7.1.2 Configuration xxz	88
7.1.3 Configuration yyz	89
7.2 Génération de THz	90
7.2.1 Résonateur guide d'onde classique	90
7.2.2 Résonateur guide d'onde tout semiconducteur	91
7.3 Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre	93
7.4 Guide d'onde 2D	95
7.5 Génération de troisième harmonique	97

Dans le chapitre 4, nous avons vu le fonctionnement du résonateur guide d'onde et la forte efficacité théorique avec du GaAs. Ce résonateur comporte du GaAs comme matériau non linéaire. Or nous avons vu dans la section 2.1.3, que ce n'est pas le seul matériau intéressant pour la génération d'effets non linéaires d'ordre 2. Il y a notamment le GaN qui a retenu notre attention par sa capacité de générer de la SHG avec colocalisation automatique, en générant du P_z par exemple. Nous allons donc voir dans ce chapitre l'inclusion du GaN dans le résonateur guide d'onde. Nous verrons également la possibilité d'adapter ce résonateur à la génération de hautes longueurs d'onde, se rapprochant du THz. Ce changement de longueurs d'onde nous permet d'envisager la possibilité de remplacer le miroir d'or par un semi-conducteur fortement dopé, facilitant la fabrication. Nous finirons par une ouverture sur le passage en deux dimensions du résonateur guide d'onde, qui offre de nouvelles possibilités, ainsi que sur le troisième ordre.

7.1 Résonateur guide d'onde avec GaN

Dans le chapitre 4 nous avons vu la possibilité de générer de la SHG dans un résonateur guide d'onde mutibarreaux. Malheureusement, ce résonateur n'est pas très efficace ($\Pi = 10^{-8}$). Cela est dû à la mauvaise colocalisation des champs pompes. En effet, le fait d'utiliser du GaAs comme matériau non linéaire impose de multiplier les composantes x et z du champ pompe. Hors, ces composantes ne se colocalisent pas bien.

Pour remédier à ce problème, on peut changer de matériau non linéaire, pour en prendre un qui permette une colocalisation automatique. Le nitrure de gallium (GaN) est un bon candidat, car il est de type wurzite, avec un $\chi^{(2)}$ dont les composantes non nulles sont selon $:zzz, zxx = zyy, xxz = yyz, xzx = yzy$. Il y a plusieurs possibilités pour générer de la SHG avec colocalisation automatique, toutes en générant du P_z . On peut par exemple utiliser la composante zzz , ou utiliser les composantes xxz ou yyz . Dans les trois cas on multiplie la même composante du champ par elle-même, la colocalisation est donc automatique. Cela constitue un avantage certain par rapport au GaAs.

Cependant, la susceptibilité non linéaire du GaN est plus faible que celle du GaAs, de 5 pm/V pour les composantes xxz et yyz à 10 pm/V pour la composante zzz ¹ (150 pm/V pour le GaAs). Dans la suite je vais traiter les trois configurations possibles. Il est à noter que dans chaque cas je vais présenter une structure

¹SANFORD, DAVYDOV, TSVETKOV, DMITRIEV, KELLER, MISHRA, DENBAARS, PARK, HAN et MOLNAR, « Measurement of second order susceptibilities of GaN and AlGaN ».

optimisée pour la composante voulue, mais les autres composantes peuvent également prendre part à la génération. L'efficacité calculée prend en compte toutes les composantes.

7.1.1 Configuration zzz

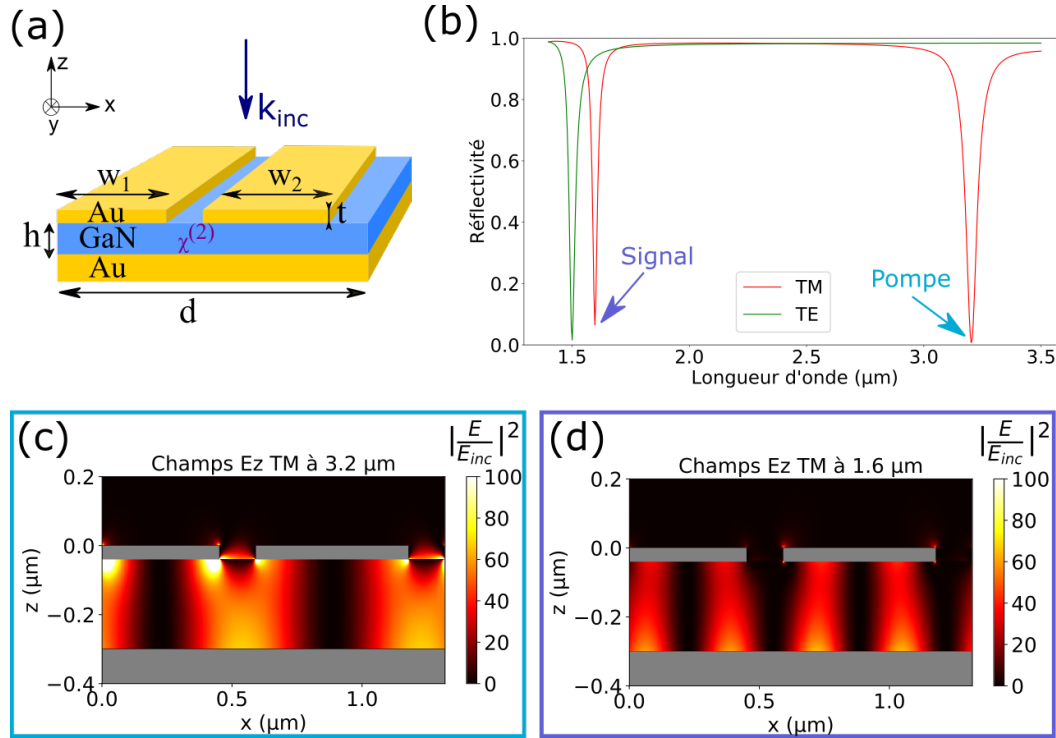


FIGURE 7.1 – Multibarreaux GaN en configuration zzz : (a) Schéma de la structure, les paramètres sont : $w_1 = 451$ nm, $w_2 = 586$ nm, $d = 1.32$ μm , $h = 260$ nm, $t = 40$ nm. (b) Spectre de réflectivité, TE en vert et TM en rouge. On exploite les deux résonances TM à 3.2 μm et 1.6 μm . (c) Carte du champ pompe E_z à 3.2 μm . (d) Carte du champ linéaire à la longueur d'onde signal E_z à 1.6 μm .

La figure 7.1 montre la structure multibarreaux que j'ai conçue (7.1(a)) pour la configuration zzz, pour obtenir des résonances TM à 3.2 μm et 1.6 μm (7.1(b)). J'ai opté pour une structure multibarreaux pour avoir une résonance nano-Fabry Perot couplés comme dans la structure avec GaAs présentée au chapitre 4. La figure 7.1(c) présente la carte du champ pompe E_z . La polarisation non linéaire dépend du carré de ce champ. Dans ce cas, l'intégration dans la couche du P_z normalisé créé est de 1216 μm , ce qui est beaucoup plus élevé que dans le cas du GaAs (colocalisation du P_y de 0.42). De fait, l'efficacité SHG induite est plus élevée : elle est de 0.14 W^{-1} .

Le champ pompe exalté par la résonance nano-Fabry Perot est concentré sur les côtés des barreaux. Malgré cela, il y a une bonne partie du champ dans la couche de GaN, ce qui donne une forte polarisation non linéaire. On peut cependant se demander si l'on obtiendrait de meilleurs résultats en exploitant des résonances qui exaltent le champ principalement dans la couche, comme la résonance de modes guidés. Dans la suite je vais présenter des structures qui exaltent des modes guidés TM et TE pour les configurations xxz et yyz.

7.1.2 Configuration xxz

Pour cette configuration, j'ai cherché à avoir un mode guidé pour la pompe TM. J'ai donc significativement augmenté l'épaisseur de GaN (760 nm contre 260 nm précédemment). La figure 7.2 présente cette structure en (a), le spectre de réflectivité avec les deux résonances pour la pompe et le signal en (b), et les cartes de champs pompe en (c) et champ linéaire à la longueur d'onde signal en (d). La période de cette structure étant élevée (2 μm), elle est sur-longueur d'onde pour certaines parties du spectre, donnant des

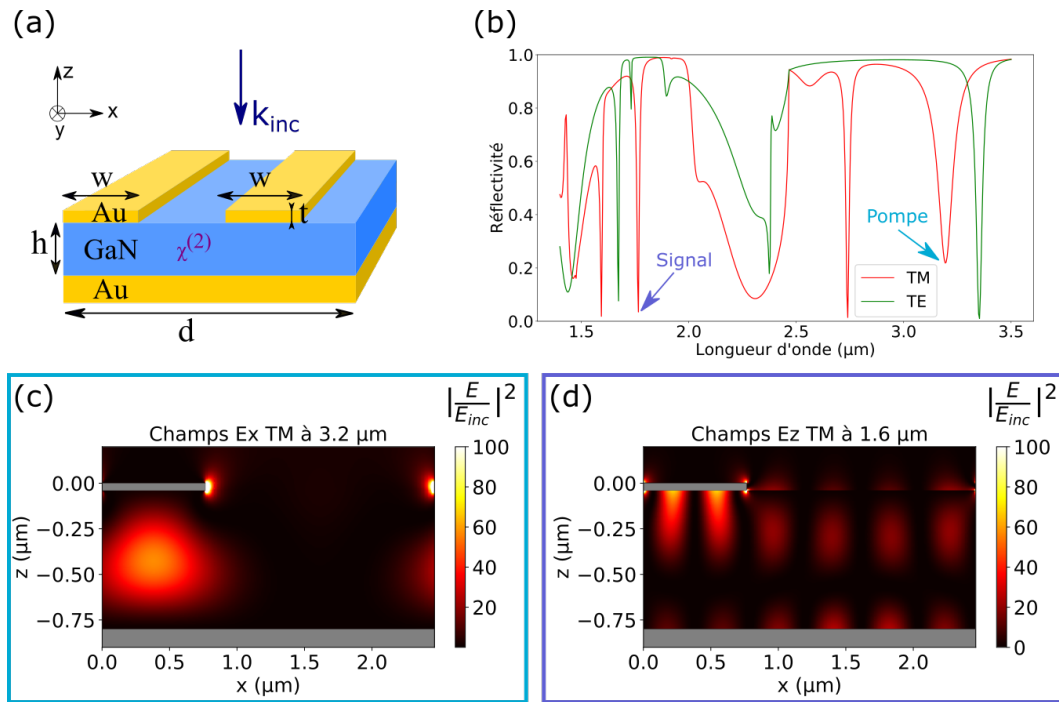


FIGURE 7.2 – Guide d'onde GaN en configuration xxz : (a) Schéma de la structure, les paramètres sont : $w = 765$ nm, $d = 2.465$ μm , $h = 760$ nm, $t = 40$ nm. (b) Spectre de réflectivité, TE en vert et TM en rouge. On exploite les deux résonances TM à 3.2 μm et 1.6 μm . (c) Carte du champ pompe E_x à 3.2 μm . (d) Carte du champ linéaire à la longueur d'onde signal E_z à 1.6 μm .

résonances supplémentaires dues à la diffraction. Dans cette configuration, le champ pompe est exalté dans la couche, l'intégration du P_z normalisé est donc plus élevée, elle est de 6510 μm . L'efficacité, malgré une susceptibilité plus faible (5 pm/V contre 10 pm/V pour le zzz), est donc plus élevée, de 0.35 W^{-1} .

7.1.3 Configuration yyz

La dernière configuration tire profit d'une pompe TE en résonance de modes guidés. Les paramètres de la structure sont assez proches de la configuration xxz car on a juste décalé la résonance TE qui était autour de 3.4 μm à 3.2 μm , tout en gardant la résonance TM à 1.6 μm pour le signal. La structure résultante est décrite en Fig. 7.3(a). On voit les deux résonances utilisées dans le spectre en Fig. 7.3(b). La résonance de modes guidés TE est assez efficace car elle présente un facteur d'exaltation élevé sur une bonne partie de la couche non linéaire (Fig. 7.3(c)). L'intégration du P_z normalisé est donc très élevée : elle est de 13267 μm . Malheureusement, l'exaltation du champ à la longueur d'onde signal (Fig. 7.3(d)) n'est pas très élevée, ce qui influe sur l'extraction, et donc l'efficacité, qui est de 0.074 W^{-1} .

Dans cette section nous avons trois configurations de résonateurs guide d'onde avec du GaN, chacune exaltant un type de résonance différent. Cela donne un aperçu des nouvelles possibilités offertes par le GaN, par rapport au GaAs. Malgré une susceptibilité non linéaire plus faible, la propriété de colocalisation automatique en SHG permet d'exploiter au mieux l'exaltation du champ électrique, pour créer une forte polarisation non linéaire. Les propriétés des trois configurations étudiées sont rassemblées et comparées dans la section 7.3.

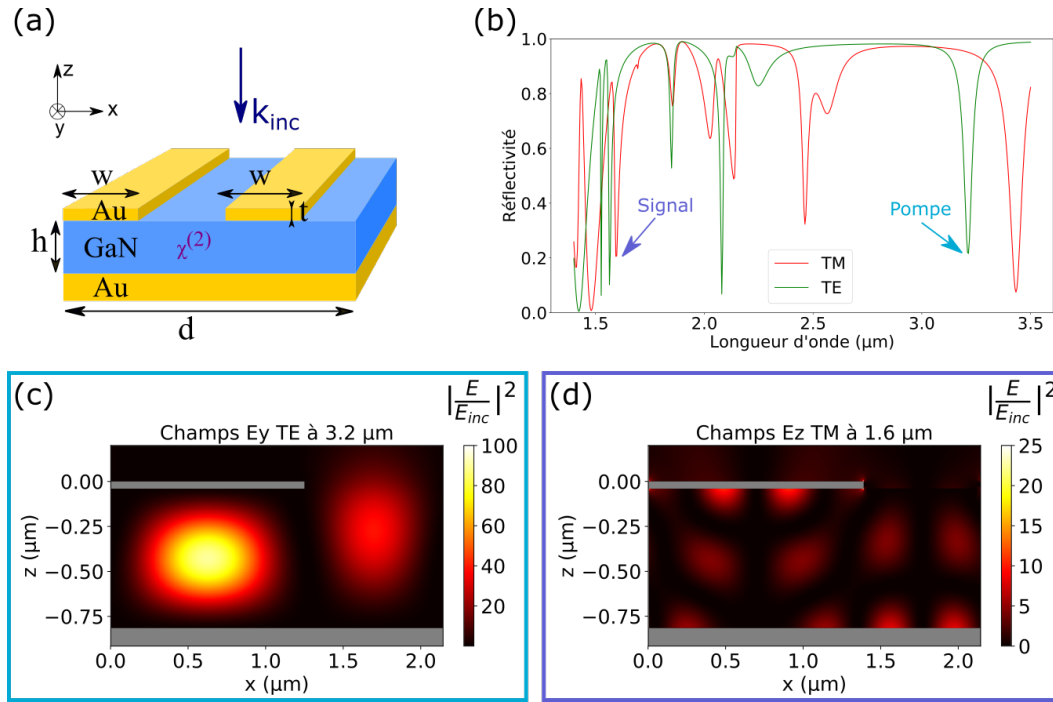


FIGURE 7.3 – Guide d'onde GaN en configuration yz : (a) Schéma de la structure, les paramètres sont : $w = 1.25 \mu\text{m}$, $d = 2.145 \mu\text{m}$, $h = 775 \text{ nm}$, $t = 40 \text{ nm}$. (b) Spectre de réflectivité, TE en vert et TM en rouge. On exploite la résonance TE à $3.2 \mu\text{m}$ et la résonance TM $1.6 \mu\text{m}$. (c) Carte du champ pompe E_y à $3.2 \mu\text{m}$. (d) Carte du champ linéaire à la longueur d'onde signal E_z à $1.6 \mu\text{m}$.

7.2 Génération de THz

La différence de fréquence a l'avantage de permettre la génération de longueurs d'ondes beaucoup plus élevées que les longueurs d'onde pompe. On peut notamment atteindre des longueurs d'onde pour lesquelles il n'existe que peu de sources à l'heure actuelle, comme le THz.

7.2.1 Résonateur guide d'onde classique

On peut donc adapter le résonateur guide d'onde pour générer du THz avec des pompes dans l'infrarouge. Cependant, il n'est pas aisé d'accorder des longueurs d'onde si éloignées, comme on l'a vu avec les différentes règles de dimensionnement du chapitre 4. Par exemple, il est impossible de générer autour de $100 \mu\text{m}$ avec des pompes autour de $1 \mu\text{m}$, notamment à cause des règles de dimensionnement des modes guidés (équations 4.6 et 4.8) et MIM (équation 4.4). En effet, un mode guidé autour de $1 \mu\text{m}$ impose une période beaucoup trop petite (inférieure à $1 \mu\text{m}$) pour un mode MIM autour de $100 \mu\text{m}$ ($w \approx 8 \mu\text{m}$). On doit donc augmenter les longueurs d'onde pompe. En prenant des longueurs d'onde autour de $10 \mu\text{m}$, on peut générer des modes guidés avec des barreaux de $8 \mu\text{m}$. Il faut pour cela augmenter l'épaisseur de la couche de GaAs, pour satisfaire l'équation 4.8. Avec les paramètres $d = 8.92 \mu\text{m}$, $w = 7.9 \mu\text{m}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 2 \mu\text{m}$, on obtient des résonances respectant l'accord de modes suivant :

$$\underbrace{\frac{1}{10 \mu\text{m}}}_{\text{TE}} - \underbrace{\frac{1}{11.29 \mu\text{m}}}_{\text{TM}} = \underbrace{\frac{1}{87 \mu\text{m}}}_{\text{TM}} \quad (7.1)$$

Les cartes de champs non linéaires sont représentées Fig. 7.4. Elles sont très similaires au guide d'onde original dans l'infrarouge. La colocalisation des champs est de $3878 \mu\text{m}$.

L'efficacité non linéaire de la DFG est de $5 \times 10^{-3} \text{ W}^{-1}$.

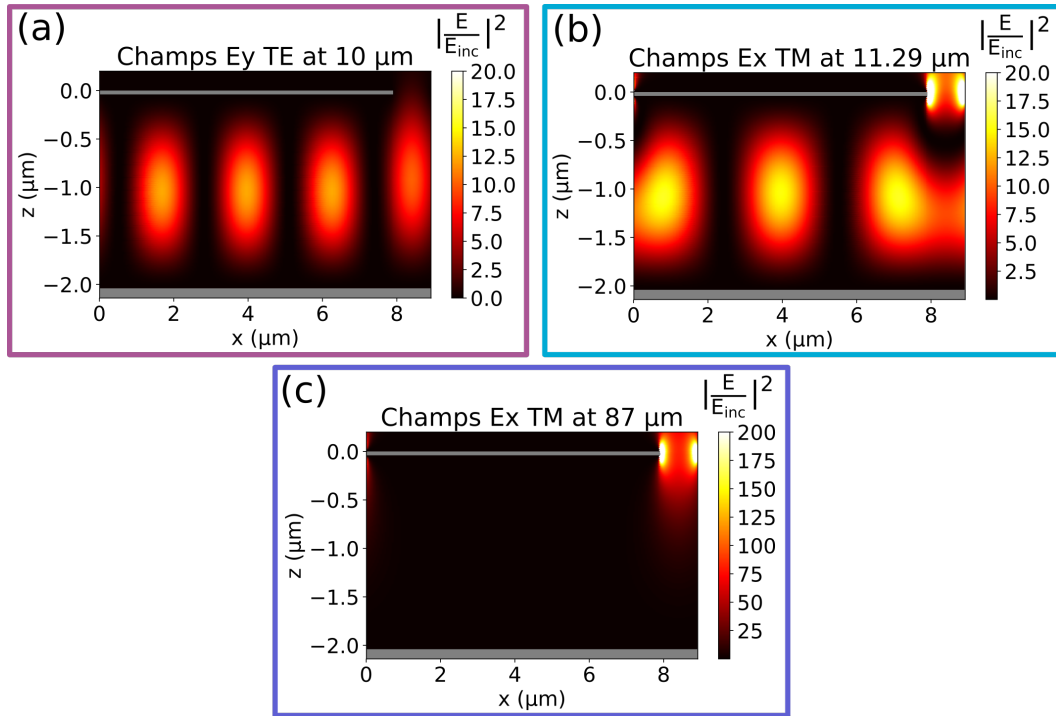


FIGURE 7.4 – Cartes de champs linéaires du guide d’onde THz : (a) Champs E_y TE à $10 \mu\text{m}$. (b) Champs E_x TM à $11.29 \mu\text{m}$. (c) Champs E_x TM à $87 \mu\text{m}$.

7.2.2 Résonateur guide d’onde tout semiconducteur

Lorsque l’on se place à des longueurs d’onde aussi élevées, on peut s’affranchir d’une contrainte technologique importante, à savoir le report du miroir d’or. Il s’agit de remplacer ce miroir d’or par un semiconducteur fortement dopé. En effet, l’InAsSb dopé à $N = 5 \times 10^{19}$ se comporte comme un miroir à des longueurs d’onde supérieures à $8 \mu\text{m}$. Son spectre de réflectivité est illustré Fig. 7.5. La simulation a été

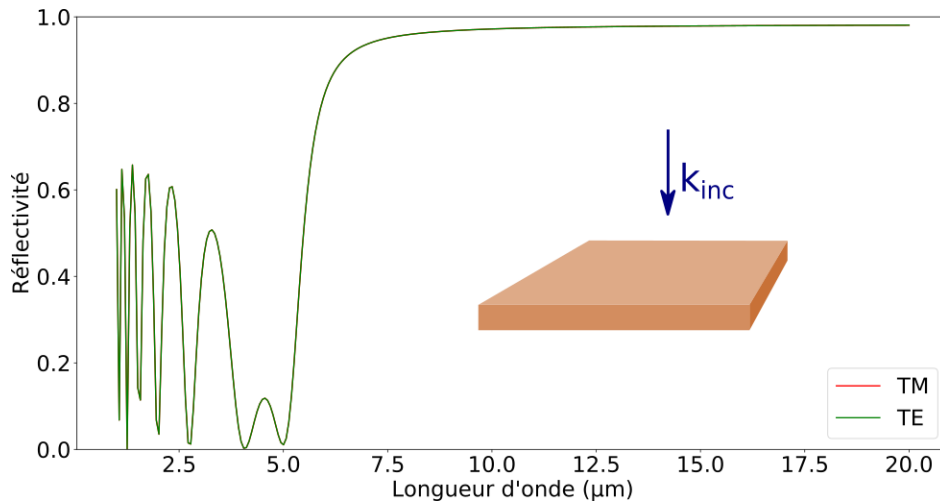


FIGURE 7.5 – Spectre de réflectivité d’une couche d’InAsSb dopée à $N = 5 \times 10^{19}$, d’épaisseur $1 \mu\text{m}$. Les courbes TE et TM sont confondues.

réalisée en utilisant un modèle de Drude pour calculer la permittivité du matériau :

$$\epsilon_{\text{InAsSb}}(\omega) = \epsilon_{\infty} \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)} \right) \quad (7.2)$$

avec $\epsilon_\infty = 10.4$, $\gamma = 1 \times 10^{13} \text{ rad.s}^{-1}$ et la fréquence plasma ω_p déterminée avec les données expérimentales de Talierco *et al.* :²

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{\epsilon_\infty \epsilon_0 m_{eff}}} \quad (7.3)$$

pour un niveau de dopage de $N = 5.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, $\omega_p = 3.5847 \times 10^{14} \text{ rad.s}^{-1}$.³

Le résonateur guide d'onde résultant sera avec du GaSb comme matériau non linéaire, car il faut un bon accord de maille entre les deux semiconducteurs pour l'épitaxie. L'idée serait donc d'épitaxier successivement les deux semiconducteurs sur un substrat. On s'affranchirait ainsi des étapes 2 à 4 de la fabrication du résonateur guide d'onde décrit sur la figure 5.2. Cela nous oblige à travailler à des longueurs d'onde plus grandes qu'auparavant, et donc d'adapter les dimensions du résonateur, décrit Fig. 7.6 avec son spectre de réflectivité. Le GaSb fait partie de la même classe cristallographique que le GaAs, avec une susceptibilité plus élevée (300 pm/V). On peut donc réaliser de la DFG de la même manière, c'est-à-dire avec une pompe TE et une pompe TM, pour générer du P_z . Ici les pompes seront à 10.27 μm en TE et 11.7 μm en TM, donnant un signal à 84 μm .

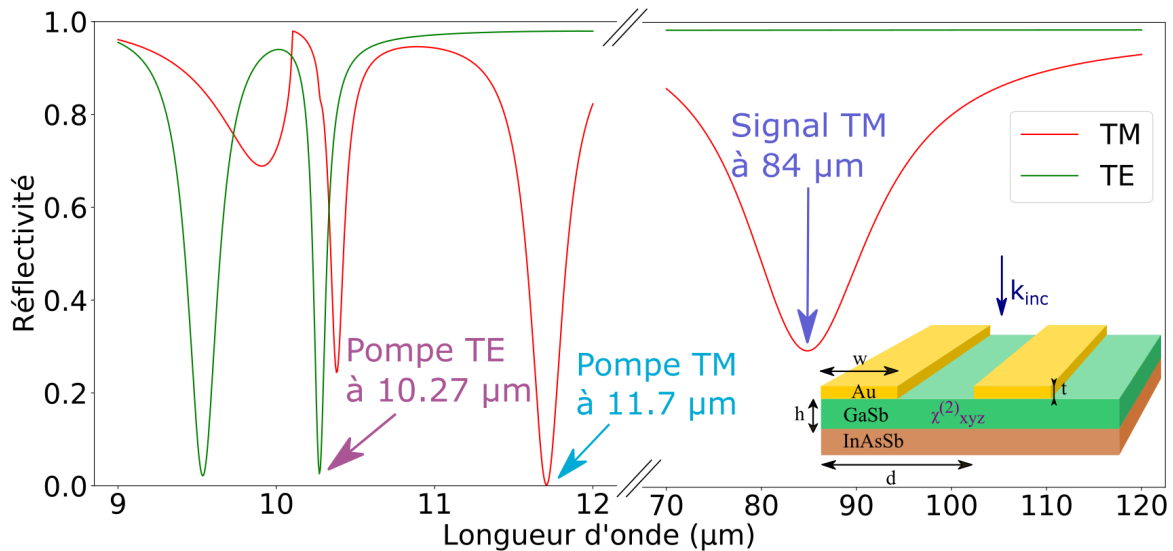


FIGURE 7.6 – Spectre de réflectivité du résonateur guide d'onde avec du GaSb en matériau non linéaire et de l'InAsSb fortement dopé en miroir. Les paramètres de la structure sont : $d = 10.1 \mu\text{m}$, $w = 7.9 \mu\text{m}$, $t = 40 \text{ nm}$, $h = 2 \mu\text{m}$.

La figure 7.7 présente les cartes des champs linéaires aux longueurs d'onde pompes et signal. On voit que la couche d'InAsSb fait bien office de miroir, concentrant les champs dans la couche de GaSb. Cependant, la concentration est légèrement moins bonne que si l'on avait gardé le miroir d'or. Pour comparer j'ai calculé la colocalisation des champs pompes dans les deux cas. Dans le cas du résonateur avec miroir d'or, les longueurs d'onde de résonance sont légèrement décalées (9.82 μm en TE et 10.57 μm en TM). Il faudrait modifier les paramètres pour optimiser l'accord de modes DFG, mais ici on cherche juste à comparer la colocalisation. J'ai donc gardé les mêmes paramètres et calculé la colocalisation aux longueurs d'onde de résonance. J'ai trouvé 11652 μm dans le cas de l'or et 11263 μm dans le cas de l'InAsSb. Le résonateur concentre donc légèrement moins les champs. On peut d'ailleurs voir sur la figure 7.7 que les champs ne sont pas centrés dans la couche de GaSb, mais décalés vers la couche d'InAsSb, ce qui n'est pas le cas lorsque l'on a un miroir d'or. On peut également calculer la dissipation dans la couche faisant office de miroir. On trouve que la dissipation est légèrement plus grande dans l'InAsSb que dans l'or ($1.3 \times 10^{-3} \text{ W}^{-1}$ contre

²Thierry TALIERCIO, Viliame Ntsame GUILLENGUI, Laurent CERUTTI, Eric TOURNIÉ et Jean-Jacques GREFFET. « Brewster "mode" in highly doped semiconductor layers: an all-optical technique to monitor doping concentration ». *Optics express* 22.20 (2014), p. 24294-24303.

³Clément MAËS, Grégory VINCENT, Fernando González-Posada FLORES, Laurent CERUTTI, Riad HAIDAR et Thierry TALIERCIO. « Infrared spectral filter based on all-semiconductor guided-mode resonance ». *Optics letters* 44.12 (2019), p. 3090-3093.

$9.11 \times 10^{-4} \text{ W}^{-1}$). En effet, malgré des pertes intrinsèques plus faibles que dans les métaux, les semiconducteurs dopés concentrent moins le champ électrique, du fait de leurs densités d'électrons et fréquences plasma plus faibles.⁴ L'efficacité non linéaire est de 6×10^{-3} , alors que si l'on garde le miroir d'or on ob-

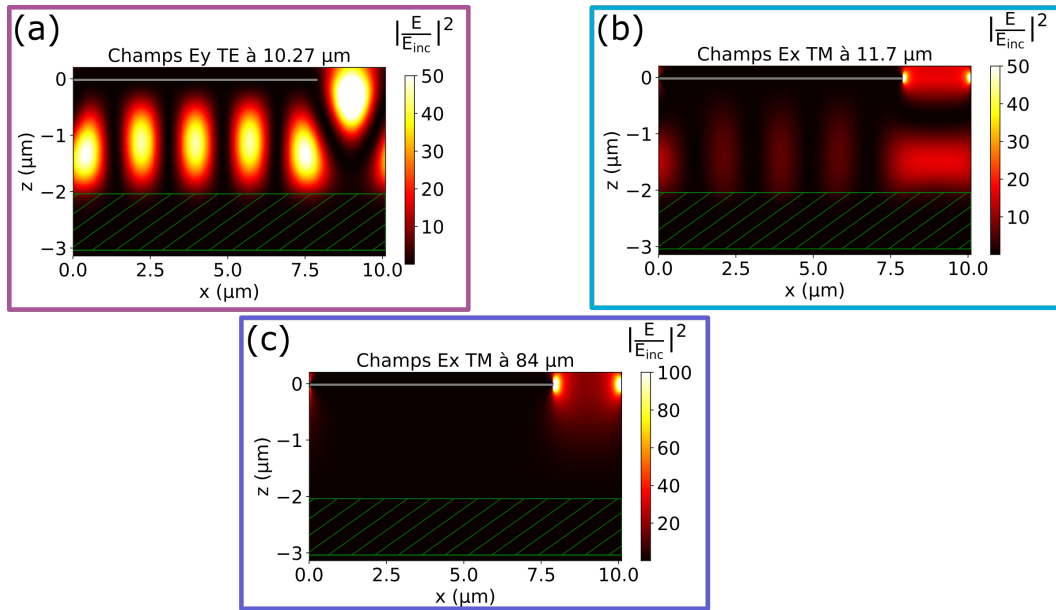


FIGURE 7.7 – Cartes de champs linéaires du guide d’onde avec GaSb et InAsSb : (a) Champs E_y TE à $10.27 \mu\text{m}$. (b) Champs E_x TM à $11.7 \mu\text{m}$. (c) Champs E_x TM à $84 \mu\text{m}$. La couche d’InAsSb est représentée en hachuré vert.

tient 1×10^{-2} . Malgré tout, l’efficacité reste notable et cela présente une piste intéressante pour simplifier le process de fabrication.

7.3 Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre

Structure	Longueurs d’onde	Colocalisation	Extraction	Efficacité	Section
Multibarreaux GaN SHG zzz	$3.2 \rightarrow 1.6$	1216	0.17	1.4×10^{-1}	7.1.1
Guide GaN SHG xxz	$3.2 \rightarrow 1.6$	6510	0.08	3.5×10^{-1}	7.1.2
Guide GaN SHG yyz	$3.2 \rightarrow 1.6$	13267	0.05	7.4×10^{-2}	7.1.3
Guide THz DFG	$10, 11.29 \rightarrow 87$	3878	0.14	5×10^{-3}	7.2.1
Guide THz DFG InAsSb/GaSb	$10.27, 11.7 \rightarrow 84$	11263	0.29	6×10^{-3}	7.2.2

TABLEAU 7.1 – Synthèse des propriétés des structures étudiées dans ce chapitre : les longueurs d’onde sont en microns, la colocalisation en μm , et l’efficacité en W^{-1} .

Une synthèse des structures vues dans ce chapitre est présentée dans le tableau 7.1. Dans la section 4.3.2 j’ai expliqué le choix de ne pas normaliser la colocalisation par l’épaisseur de la couche non linéaire. Cela a pour effet d’avoir une colocalisation des champs plus élevée lorsque la couche est plus épaisse, car les structures ont été optimisées pour créer des modes qui remplissent au mieux cette couche. La polarisation non linéaire créée est donc généralement plus importante lorsque l’épaisseur est plus élevée (colocalisation de 1216 pour le multibarreaux GaN avec une couche de 260 nm, colocalisation de 13267 pour le guide GaN yyz avec une couche de 775 nm). Cependant, l’efficacité n’est pas forcément augmentée en conséquence (voir le Guide GaN SHG yyz). En effet, l’extraction d’un champ non linéaire créé en bas d’une couche non

⁴Wen Ting Hsieh, Pin Chieh Wu, Jacob B Khurgin, Din Ping Tsai, Ning Liu et Greg Sun. « Comparative analysis of metals and alternative infrared plasmonic materials ». *ACS Photonics* 5.7 (2017), p. 2541-2548.

linéaire épaisse est moins efficace. Cela est illustré sur la figure 7.8(a), où est représentée la matrice d'extraction d'une source non linéaire créée dans la sous-couche i . Pour rappel, cette matrice dépend des matrices de réflexion aux interfaces, et du vecteur propagation Q_i^α du point source au réseau d'or (voir la section 3.1.2). De plus, ce vecteur propagation dépend de $e^{-ik_z h_i}$, il est donc plus faible pour un h_i grand. Cela donne une matrice d'extraction plus faible pour une sous-couche proche du bas de la couche non linéaire. On peut voir cela sur les figures 7.8(b) et (c) qui présentent l'extraction du champ généré dans chaque sous-couche du matériau non linéaire jusqu'à la couche du réseau (l'extraction présentée dans le tableau 7.1 est la moyenne sur les sous-couches).

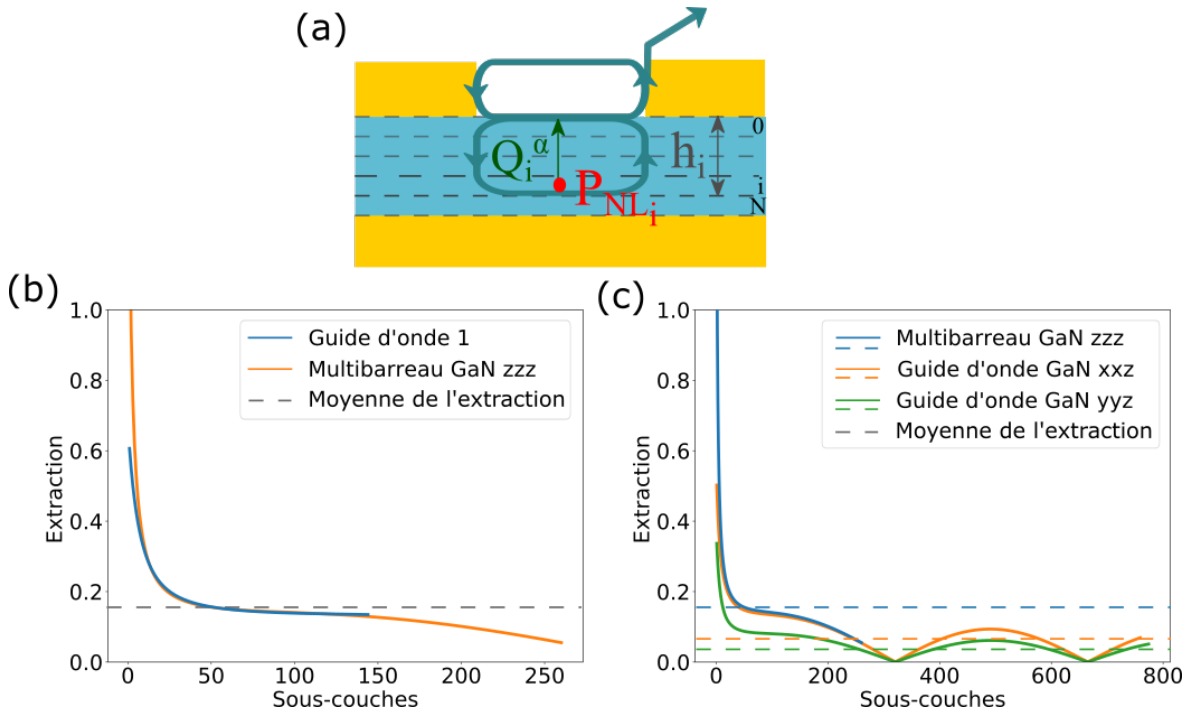


FIGURE 7.8 – Extraction de chaque sous-couche non linéaire (épaisseurs de 1 nm) à la couche du réseau (les sous-couches font 1 nm). : (a) Guide d'onde de la section 4.3 comparé au multibarreaux avec du GaN en configuration zzz , (b) Comparaison des trois configurations avec GaN. Sont tracées en pointillés les moyennes sur toutes les sous-couches.

En Fig. 7.8(b) est comparé le multibarreaux GaN en configuration zzz avec le guide d'onde GaAs présenté au chapitre 4. Ce dernier a une épaisseur de GaAs de 145 nm et la réflectivité à la longueur d'onde de résonance signal descend à 0.8. Le multibarreaux en GaN a quant à lui une réflectivité signal qui descend à 0.1. On s'attendrait donc à une meilleure extraction. Cependant, les deux structures ont des extractions moyennes égales. Cela s'explique par l'épaisseur de GaN qui est plus élevée (260 nm). En effet, si l'on regarde plus précisément l'extraction en fonction de la sous-couche de matériau non linéaire comme cela est présenté en Fig. 7.8(a), on s'aperçoit que pour les sous-couches du haut que la couche, l'extraction est meilleure pour le multibarreaux GaN, mais cette extraction diminue pour les sous-couches inférieures. Comme l'épaisseur totale est plus élevée, l'extraction descend plus bas. La moyenne d'extraction de toutes les sous-couches, présentée dans le tableau 7.1, n'est donc que de 0.17.

La figure 7.8(c) compare les trois configurations de structures avec GaN. On voit que la configuration zzz a une meilleure extraction moyenne. Cela est dû non seulement à une meilleure résonance signal, mais aussi à une épaisseur plus faible. En effet, les deux autres configurations ont des épaisseurs plus élevées (autour de 700 nm), ce qui donne une moyenne de l'extraction plus faible. Cela explique pourquoi la configuration xxz n'est que deux fois et demi plus efficace que la configuration zzz , malgré une colocalisation 5 fois plus efficace. Il ne faut cependant pas oublier que la susceptibilité non linéaire de la configuration xxz est deux fois plus faible que pour la configuration zzz . De plus, on comprend pourquoi la configuration yyz est si peu efficace malgré une excellente colocalisation.

7.4 Guide d'onde 2D

Toutes les configurations proposées précédemment sont structurées selon une dimension (axe x) et infinies dans l'autre dimension du plan (axe y). Dans cette section, nous allons voir les possibilités offertes par le passage en 2 dimensions. En effet, la nanostructuration 2D donne des degrés de liberté supplémentaires, ce qui facilite l'accordabilité. Elle permet également un meilleur confinement du champ électrique, ce qui est avantageux pour les effets non linéaires.

BMM ne permet pas de réaliser des simulations en 2D, j'ai donc utilisé le code Reticolo.⁵ Ce programme permet de simuler le comportement linéaire de nanostructures 2D, mais il ne calcule pas les effets non linéaires. Dans cette section, je vais donc présenter l'intérêt de la 2D pour l'amélioration des différents facteurs qui influent sur l'efficacité non linéaire, à savoir l'accord des résonances et la colocalisation des champs pompes. Ainsi, on peut adapter le résonateur guide d'onde générant de la DFG, étudié au chapitre

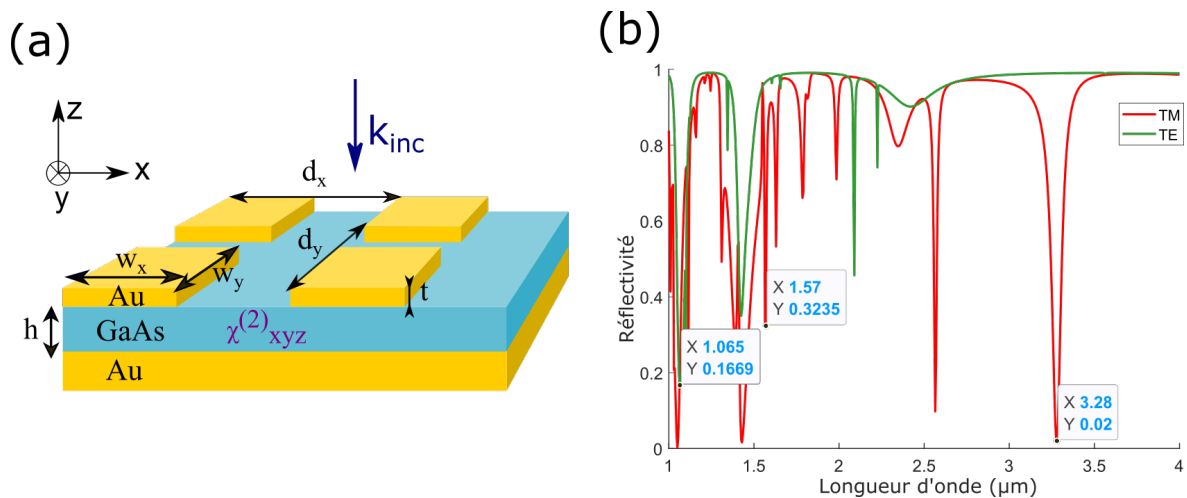


FIGURE 7.9 – Guide 2D : (a) Structure avec les paramètres : $h = 510 \mu\text{m}$, $w_x = 680 \text{ nm}$, $d_x = 1.55 \mu\text{m}$, $w_y = 850 \text{ nm}$, $d_y = 1 \mu\text{m}$, (b) Spectre de réflectivité calculé avec Reticolo : incident TM en rouge, incident TE en vert.

4, qui est composé d'une couche de GaAs encapsulée entre un miroir d'or et un réseau de barreaux d'or infinis. On va donc remplacer les barreaux d'or infinis par des plots de dimensions finies (voir Fig. 7.9(a)). Cela présente plusieurs avantages. Tout d'abord, le champ électrique est à présent confiné dans les deux dimensions, alors que dans le cas 1D il n'était pas confiné dans la dimension infinie. On s'attend donc à une exaltation du champ électrique plus forte. Le deuxième avantage est l'apparition de deux degrés de liberté supplémentaires, qui sont w_y et d_y . Cela facilite l'accord des résonances et permet d'envisager d'autres configurations.

Nous avons notamment pensé à un résonateur guide d'onde qui exalte les champs à toutes les longueurs d'onde dans la couche de GaAs. Pour rappel, le résonateur présenté au chapitre 4 exalte les champs aux longueurs d'onde suivantes : $1.064 \mu\text{m}$, $1.6 \mu\text{m}$, $3.17 \mu\text{m}$. Les champs aux plus faibles longueurs d'onde sont bien exaltés dans la couche, mais le champ à $3.17 \mu\text{m}$ est exalté sur les côtés des barreaux, avec une faible portion dans la couche de GaAs. Cela n'est pas idéal pour la génération d'effets non linéaires qui a lieu dans la couche de GaAs. Il serait donc plus avantageux d'avoir une résonance $3.17 \mu\text{m}$ de type modes guidés par exemple. Cela implique d'augmenter l'épaisseur de GaAs (de 145 nm à 510 nm). Malheureusement, cette épaisseur est trop élevée pour garder les résonances de modes guidés aux plus petites longueurs d'onde, mais l'on aura tout de même une exaltation du champ dans la couche. La figure 7.9(b) présente le spectre de réflectivité pour la structure retenue, qui a pour paramètres : $h = 510 \mu\text{m}$, $w_x = 680 \text{ nm}$, $d_x = 1.55 \mu\text{m}$, $w_y = 850 \text{ nm}$, $d_y = 1 \mu\text{m}$. On voit trois résonances aux longueurs d'onde d'intérêt, qui sont $1.065 \mu\text{m}$ en TE, et $1.57 \mu\text{m}$ et $3.28 \mu\text{m}$ en TM. Notons que la résonance à $3.28 \mu\text{m}$ est de meilleure qualité que dans le cas

⁵HUGONIN et LALANNE, « Reticolo software for grating analysis ».

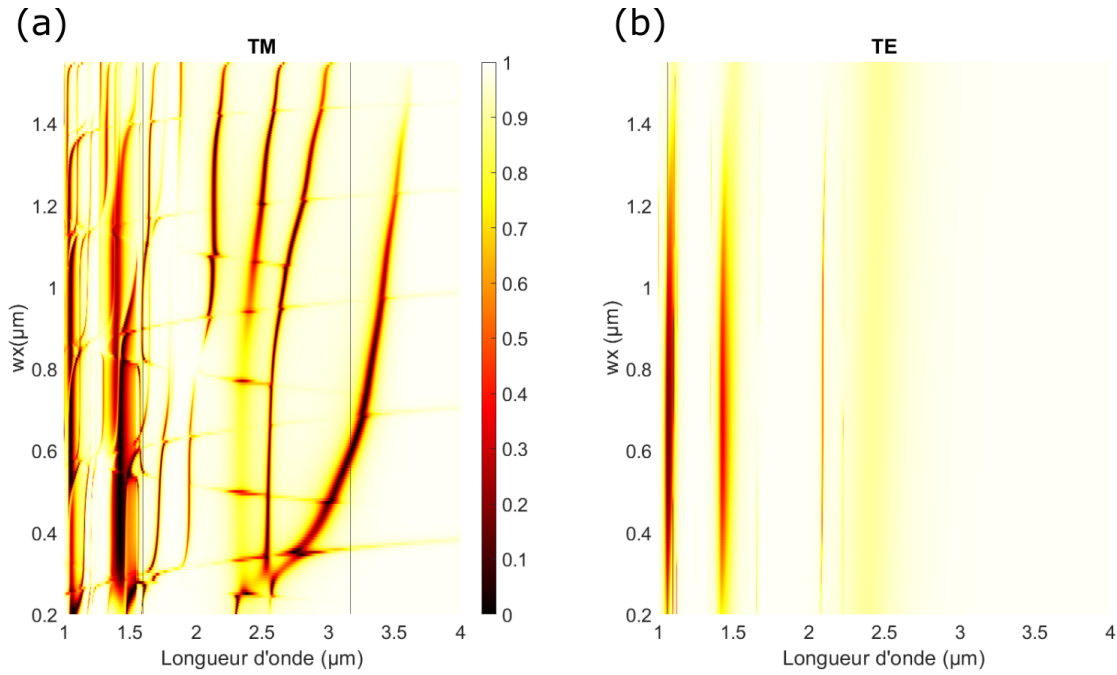


FIGURE 7.10 – Spectre de réflectivité du guide 2D en fonction de w_x : (a) TM, (b) TE. Les autres paramètres de la structure sont : $h = 510 \mu\text{m}$, $d_x = 1.55 \mu\text{m}$, $w_y = 850 \text{ nm}$, $d_y = 1 \mu\text{m}$.

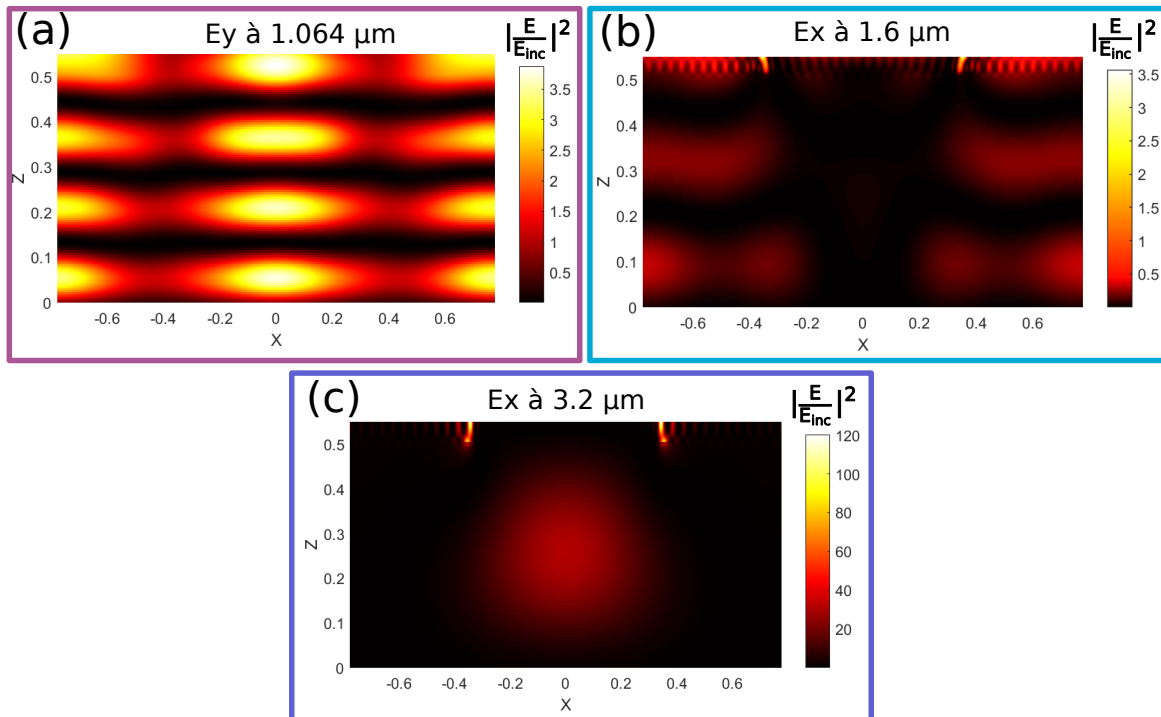


FIGURE 7.11 – Cartes de champs linéaires du guide d'onde 2D aux longueurs d'onde d'intérêt (une période dans la couche de GaAs, centrée sous le barreau d'or). Les paramètres de la structure sont : $h = 510 \mu\text{m}$, $d_x = 1.55 \mu\text{m}$, $w_x = 680 \text{ nm}$, $w_y = 850 \text{ nm}$, $d_y = 1 \mu\text{m}$.

1D.

La figure 7.10 présente le spectre de réflectivité de la structure en fonction de w_x . On voit que ce paramètre influe surtout sur les résonances TM, alors qu'en TE il ne fait que changer l'intensité. Cela permet

d'optimiser au mieux les trois résonances.

La figure 7.11 présente les cartes de champs linéaires aux longueurs d'onde pompes et signal. On voit la résonance de modes guidés à 3.2 μm . Les champs aux autres longueurs d'onde sont également exaltés.

7.5 Génération de troisième harmonique

Comme cela a été expliqué au chapitre 3, l'implémentation du calcul des effets d'ordre 3 a été initiée par Tomasz Matthia pendant son stage dans notre équipe. La génération de troisième harmonique (THG) a ainsi été implémentée dans BMM. Ce nouvel effet, bien que plus faible, ouvre de nouvelles perspectives. En effet, le GaAs possède un $\chi^{(3)}$ dont beaucoup de composantes sont non nulles. Ici on ne s'intéressera qu'aux composantes $xxxx = yyyy = zzzz$, égales à $1.4 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{V}^2$.⁶ Il existe trois autres groupes indépendants de composantes, dont on ne connaît pas la valeur. Cependant, la première est la plus intéressante, car elle permet de réaliser de la THG avec colocalisation automatique. Il y a ainsi trois configurations possibles, qui exaltent le P_x , le P_y ou le P_z . Des structures de type guide d'onde ont été étudiées, chacune étant optimisée pour un type de résonance à la longueur d'onde pompe, tout en gardant une résonance à la longueur d'onde signal. L'accord THG recherché part d'une pompe autour de 3 μm pour un signal autour de 1 μm . Tomasz Matthia a conçu trois structures exaltant les résonances Fabry Perot horizontal, Fabry Perot vertical, et modes guidés. Les efficacités de conversion sont de l'ordre de 10^{-15} W^{-2} , ce qui est 8 ordres de grandeur supérieur à une référence sans les barreaux d'or. La structure la plus efficace est celle exaltant la résonance Fabry Perot verticale.

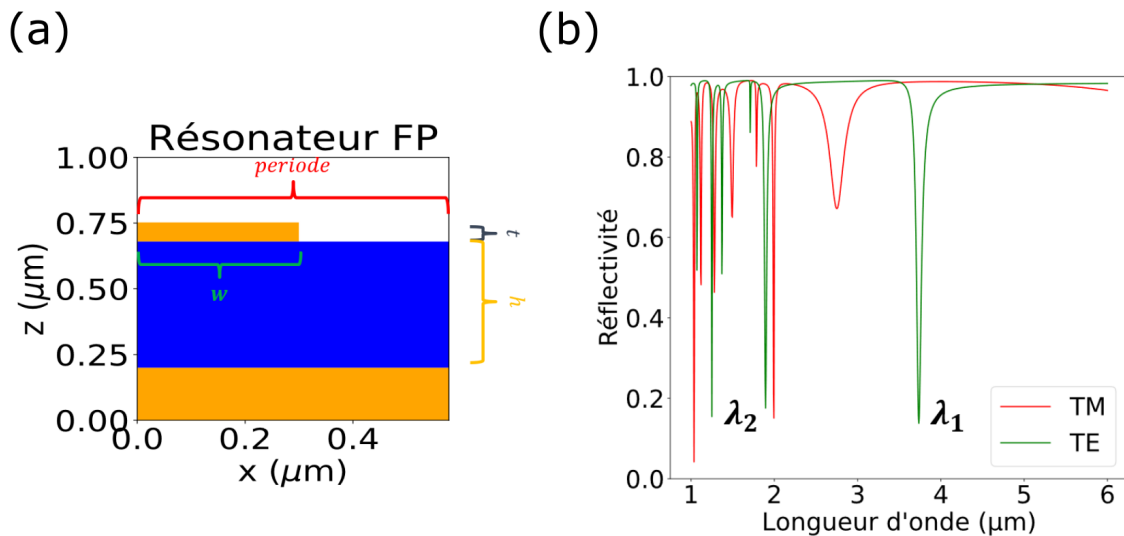


FIGURE 7.12 – (a) Structure du résonateur guide d'onde Fabry Perot vertical pour la THG. Les paramètres de la structure sont : $h = 480 \text{ nm}$, $d = 578 \text{ nm}$, $w = 300 \text{ nm}$, $t = 73 \text{ nm}$. (b) Spectre de réflectivité avec les deux résonances TE à $\lambda_1 = 3.744 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 1.248 \mu\text{m}$.

La figure 7.12(a) présente la structure du résonateur. L'épaisseur de GaAs est assez élevée pour permettre une résonance Fabry Perot à la longueur d'onde pompe. La figure 7.12(b) présente le spectre de réflectivité, avec les deux résonances TE à $\lambda_1 = 3.744 \mu\text{m}$ et $\lambda_2 = 1.248 \mu\text{m}$.

Les cartes de champs aux deux longueurs d'onde pompe et signal sont tracées sur la figure 7.13. On y voit la résonance Fabry Perot qui s'étale sur toute la couche à la longueur d'onde pompe, ce qui permet d'avoir une bonne polarisation non linéaire (colocalisation de $4400 \mu\text{m}^{-1}$, qui est ici tout simplement l'intégration dans la couche du champ pompe au cube). Le champ est également exalté à la longueur d'onde signal, ce qui assure une bonne extraction. L'efficacité de ce résonateur est de $9.13 \times 10^{-15} \text{ W}^{-2}$.

⁶BOYD, *Nonlinear Optics*.

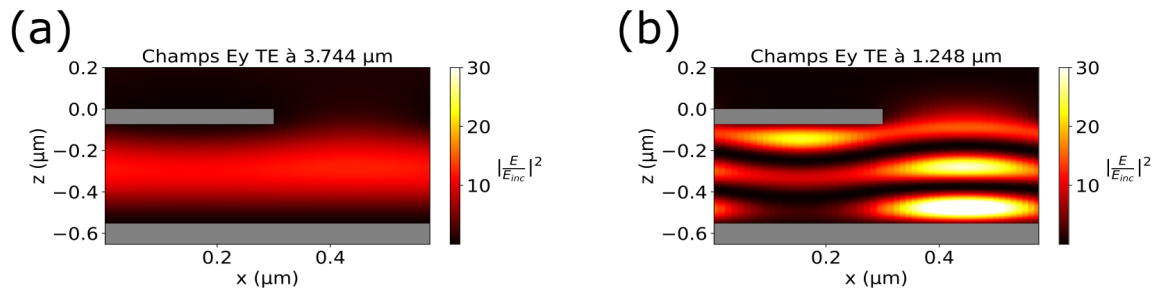


FIGURE 7.13 – Cartes de champs linéaires du guide d'onde THG aux longueurs d'onde d'intérêt : (a) Champs E_y TE à $\lambda_1 = 3.744 \mu\text{m}$, (b) Champs E_y TE à $\lambda_2 = 1.248 \mu\text{m}$. Les paramètres de la structure sont : $h = 480 \text{ nm}$, $d = 578 \text{ nm}$, $w = 300 \text{ nm}$, $t = 73 \text{ nm}$.

Conclusion

En conclusion, nous avons vu dans ce chapitre plusieurs variantes du résonateur guide d'onde présenté au chapitre 4. Nous avons d'abord vu les avantages d'utiliser du GaN comme matériau non linéaire. En effet, malgré sa susceptibilité non linéaire plus faible que celle du GaAs, la structure cristalline de ce matériau permet une bien meilleure colocalisation des champs pompe. J'ai également présenté des structures permettant de générer du THz, dont une utilisant un semiconducteur fortement dopé à la place du miroir d'or. Ces dernières structures sont prometteuses pour atteindre des longueurs d'onde ayant peu de solutions à l'heure actuelle. La synthèse de toutes ces structures a soulevé des questions concernant l'extraction, une étude plus fine est donc proposée. Par ailleurs, une ouverture sur la nanostructuration 2D a été proposée, élargissant encore les possibilités d'accordabilité. La nanostructuration 2D offre beaucoup de possibilités qui sont encore à approfondir, et l'implémentation de BMM 2D y aiderait. Enfin, l'étude du résonateur guide d'onde a été élargie à la THG, offrant de nouvelles possibilités. L'implémentation de l'effet Kerr dans BMM est également en cours, ce qui serait particulièrement intéressant pour la concentration des champs.

D'autres possibilités d'amélioration ont été étudiées mais n'ont pas été menées à bout. Il y a d'abord l'amélioration de la résonance de modes guidés en utilisant une configuration bi-atom. Emilie Sakat a conçu pendant sa thèse un résonateur guide d'onde bi-atom en transmission ayant une bien meilleure tolérance angulaire (15° contre 2 à 5°).⁷ J'ai essayé d'adapter ce concept au guide d'onde en réflexion, mais l'amélioration de la tolérance angulaire n'est pas aussi grande, et cela complique grandement l'accordabilité avec les autres résonances.

Une autre piste intéressante est d'utiliser une couche (ENZ) en ITO (décrite dans la section 2.2), qui présente de forts facteurs d'exaltation. Cependant, l'accordabilité de la longueur d'onde d'exaltation n'est pas très importante. Cette piste est discutée en annexe B.

Une autre approche pour obtenir de fortes efficacités serait de coupler nos nano-antennes à des multipuits quantique. En effet, nous avons vu dans la section 2.2 que cette approche est très prometteuse. Des simulations de Sarah Houver (en post-doctorat à l'ONERA), ont montré qu'il est possible de concevoir des hétérostructures capables de créer une susceptibilité non linéaire très élevée. Cependant, pour fonctionner efficacement dans le proche infrarouge, ces dispositifs doivent avoir une certaine épaisseur (de l'ordre du micron), qui ne serait pas applicable au résonateur guide d'onde présenté au chapitre 4. Il serait néanmoins possible d'adapter ce dispositif aux structures présentées dans ce chapitre, qui ont des épaisseurs plus grandes.

⁷SAKAT, VINCENT, GHENUCHE, BARDOU, COLLIN, PARDO, PELOUARD et HAIDAR, « Guided mode resonance in subwavelength metallodielectric free-standing grating for bandpass filtering ».

Conclusion

Pendant cette thèse j'ai exploré les possibilités d'exalter les effets non linéaires d'ordre 2 dans les nano-antennes métallo-diélectriques. J'ai conçu des résonateurs pour la génération de SHG et DFG, grâce à des simulations numériques réalisées avec une méthode modale B-Spline. J'ai ajouté à cette méthode le calcul d'une polarisation particulière, qui est orthogonale à la structure. Cela m'a permis de concevoir une nano-antenne de type guide d'onde exaltant cette polarisation pour obtenir une efficacité DFG de $0.1W/W^2$. L'étude de ce résonateur m'a permis de mieux comprendre les phénomènes physiques en jeu dans le processus non linéaire, et d'établir des règles de conception d'une nano-antenne efficace. Il est notamment important de concevoir une nano-antenne exaltant le champ électrique à la ou les longueur(s) d'onde pompe(s) et d'optimiser leur colocalisation spatiale. Il est également important d'exalter le champ à la longueur d'onde signal, car cela permet d'avoir une bonne extraction du signal généré. Un échantillon composé de plusieurs types et dimensions de résonateurs a été conçu pour générer de la SHG et de la DFG et a été fabriqué au C2N. La caractérisation linéaire, réalisée à l'ONERA, a permis de valider les propriétés résonantes de l'échantillon, et un montage non linéaire a été réalisé. La génération de SHG a ainsi été démontrée, et est en accord avec la simulation.

Par ailleurs j'ai étudié le résonateur de Helmholtz en version double cavité pour la génération de SHG. Malgré un facteur d'exaltation très important, le volume exalté est très faible, ce qui donne une polarisation non linéaire assez faible. Pour autant, l'extraction est assez bonne dans ce résonateur, ce qui donne une efficacité comparable aux autres structures étudiées, toutefois pas suffisante pour contrebalancer la difficulté technologique.

J'ai également étudié les avantages à utiliser du GaN comme matériau non linéaire, à la place du GaAs couramment utilisé. Malgré une susceptibilité plus faible, les propriétés du cristal permettent plus de possibilités d'effets, améliorant grandement la colocalisation des champs pompes. Dans le chapitre qui y est consacré j'ai présenté plusieurs possibilités d'effets. La comparaison entre les différentes configurations a montré l'importance de la colocalisation des pompes, mais également l'influence de l'épaisseur du matériau non linéaire sur l'extraction du champ généré. Enfin, j'ai étudié les possibilités de concevoir une nano-antenne générant du THz. J'ai conçu une structure générant à $90 \mu\text{m}$ avec des pompes autour de $10 \mu\text{m}$. Une version avec un semiconducteur dopé remplaçant le miroir d'or a également été conçue pour ces longueurs d'onde. Cela facilite le processus de fabrication, tout en gardant de bonnes performances.

Les pistes d'amélioration sont nombreuses. Il y a tout d'abord la possibilité d'utiliser des multipuits quantiques à la place de la couche non linéaire. Cela a déjà été fait dans la littérature et cela donne de bonnes efficacités. Le couplage des multipuits quantiques avec les nano-antennes que j'ai développées au cours de ma thèse, qui ont déjà une très bonne efficacité devrait surpasser les résultats donnés dans la

littérature.

La nanostructuration 2D pourrait également permettre d'améliorer l'efficacité. En effet, cela permet une meilleure accordabilité et un meilleur confinement du champ électrique. Pour cela les simulations linéaires sont possibles avec le code Reticolo mais pour réaliser des simulations non linéaires il faudrait implémenter BMM 2D (ce qui est en train d'être fait en linéaire par Denis Langevin, en thèse à l'ONERA).

Cela donne de belles perspectives pour la suite, qui sera prise par Tomasz Matthia, que j'ai encadré en stage M2, et continuera en thèse. Son stage a permis d'implémenter la THG dans BMM, ainsi que l'effet Kerr qui commence à donner des résultats intéressants.

Annexes

Annexe A

Synthèse des propriétés des structures présentées dans le manuscrit

Structure	Longueurs d'onde	Colocalisation	Extraction	Efficacité	Description
Guide DFG	1.064, 1.6 → 3.17	202	0.17	1.4×10^{-2}	4.3
Guide DFG	1.064, 3.17 → 1.6	296	0.28	9.8×10^{-2}	4.3.4
Multibarreaux DFG	1.064, 1.6 → 3.17	196	0.25	0.23	4.4.2
Multibarreaux SHG	3.2 → 1.6	0.08	0.26	10^{-8}	4.4.3
Helmholtz SHG	11.4 → 5.66	138	0.37	8×10^{-3}	6.2.3
Multibarreaux GaN SHG zzz	3.2 → 1.6	1216	0.17	1.4×10^{-1}	7.1.1
Guide GaN SHG xxz	3.2 → 1.6	6510	0.08	3.5×10^{-1}	7.1.2
Guide GaN SHG yyz	3.2 → 1.6	13267	0.05	7.4×10^{-2}	7.1.3
Guide THz DFG	10, 11.29 → 87	3878	0.14	5×10^{-3}	7.2.1
Guide THz DFG InAsSb/GaSb	10.27, 11.7 → 84	11263	0.29	6×10^{-3}	7.2.2

TABLEAU A.1 – Synthèse des propriétés des structures étudiées dans le manuscrit : les longueurs d'onde sont en microns, la colocalisation en μm^{-1} , et l'efficacité en W^{-1} .

Annexe

B

Guide d'onde ENZ

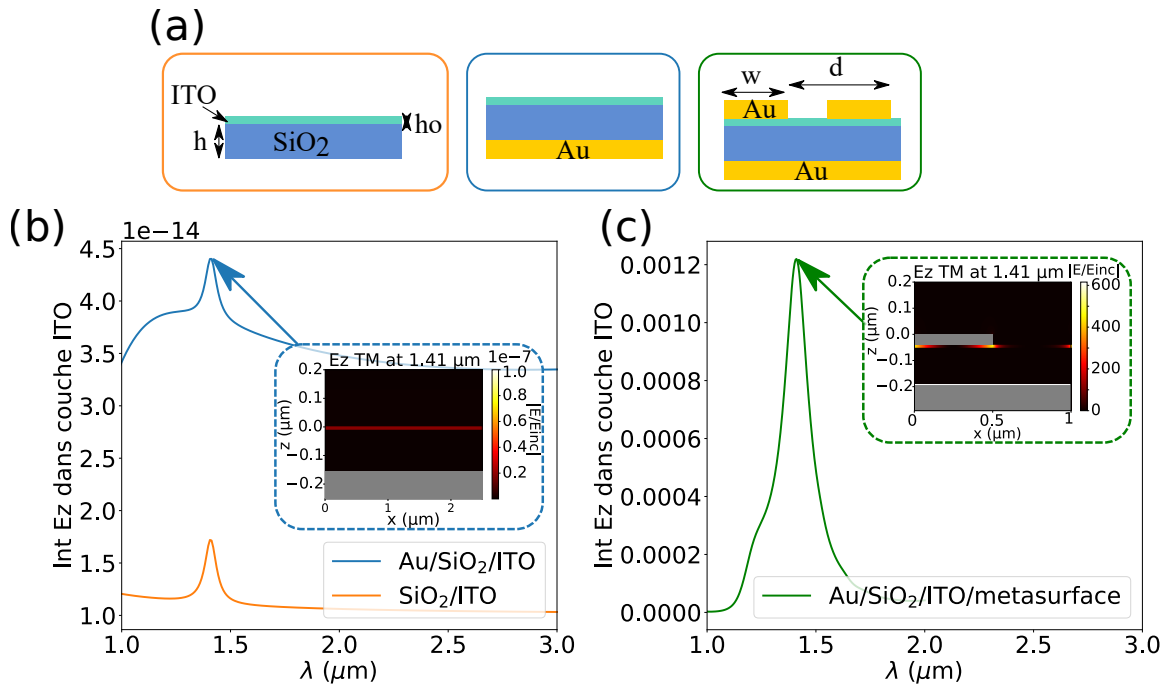


FIGURE B.1 – Guide d'onde avec couche ENZ : (a) Schéma des trois situations étudiées : couche d'ITO sur un substrat de SiO₂, ajout d'un miroir d'or, ajout des barreaux d'or sur le dessus. (b) Intégration du champ E_z dans la couche d'ITO en fonction de la longueur d'onde, pour les deux premières situations (sans métasurface). Carte de champs à la résonance à 1.41 μm. (c) Intégration du champ E_z dans la couche d'ITO en fonction de la longueur d'onde, pour la situation avec métasurface. Carte de champs à la résonance à 1.41 μm. Les paramètres sont : $h = 140$ nm, $h_o = 12$ nm, $w = 500$ nm, $d = 1$ μm.

Cette annexe discute de la possibilité d'ajouter une couche ENZ dans le résonateur guide d'onde, évoquée au chapitre 7. En effet, nous avons vu dans la section section 2.2, qu'une couche très fine d'oxyde d'indium étain (ITO) pouvait atteindre une permittivité proche de zéro pour une certaine longueur d'onde. Cela a pour conséquence d'exalter le champ E_z dans cette fine couche. Il a été démontré que l'ajout d'une métasurface permettait d'amplifier le phénomène.¹ La figure B.1 illustre cela. En effet, on y voit que la couche d'ITO sur du SiO₂ permet une exaltation du champ à 1.41 μm, que l'on peut améliorer en ajoutant un miroir d'or en dessous de l'empilement de couches. De surcroît, l'ajout d'une métasurface sur le dessus de la structure permet d'améliorer l'intégration du champ dans la couche de onze ordres de grandeur, toujours à la même longueur d'onde. Le facteur d'exaltation maximal dans la couche est de 600, ce qui est assez élevé en comparaison aux autres structures vues précédemment. L'équipe de Dass *et al.* a exploité ce phénomène pour générer de la SHG. Cependant, l'exaltation du champ n'apparaît qu'à la longueur d'onde pompe. Pour plus d'efficacité, il faudrait également exalter le champ à la longueur d'onde signal. Pour créer une deuxième résonance, il faut jouer sur les paramètres géométriques. La période du réseau n'a aucun effet. La figure B.2 montre l'influence de la largeur des barreaux. On remarque qu'il y a toujours la résonance à 1.41 μm quel que soit la largeur, mais il y a aussi des résonances supplémentaires qui divergent de

¹DASS, KWON, VANGALA, SMITH, CLEARY, GUO, ALÛ et HENDRICKSON, « Gap Plasmon Enhanced Second Harmonic Generation in Epsilon-Near-Zero Nanolayers ».

la principale. Cependant, il est difficile d'obtenir des résonances à des longueurs d'ondes assez éloignées pour réaliser des effets non linéaires (deuxième résonance à $2.82 \mu\text{m}$ pour la SHG).

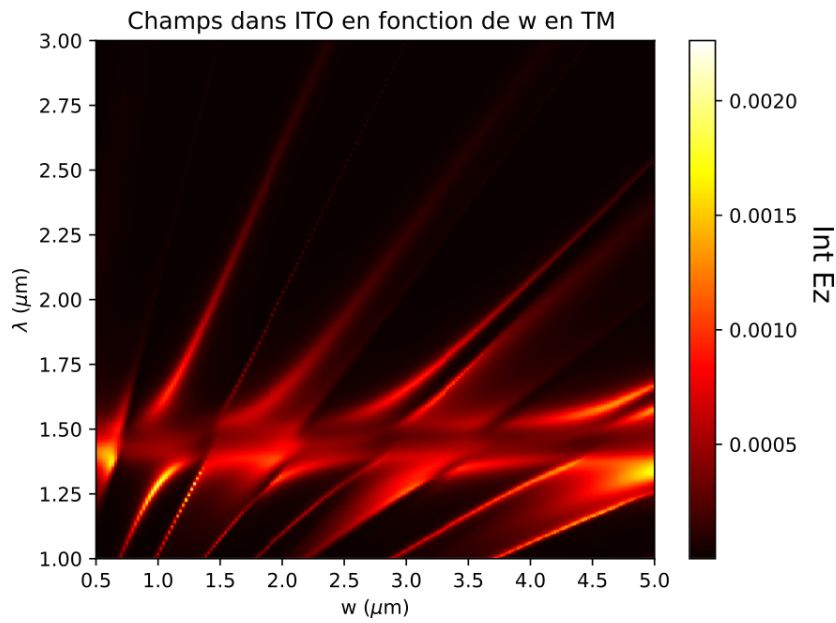


FIGURE B.2 – Intégration du champ E_z dans la couche d'ITO en fonction de w et de la longueur d'onde.

Bibliographie

- ALAM, M Zahirul, Israel DE LEON et Robert W BOYD. « Large optical nonlinearity of indium tin oxide in its epsilon-near-zero region ». *Science* 352.6287 (2016), p. 795-797 (cf. p. 20).
- ARMSTRONG, J. A., N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING et Peter S. PERSHAN. « Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric ». *Physical Review* 127 (6 sept. 1962), p. 1918-1939. DOI : [10.1103/PhysRev.127.1918](https://doi.org/10.1103/PhysRev.127.1918) (cf. p. 5).
- BOMZON, Ze'ev, Vladimir KLEINER et Erez HASMAN. « Pancharatnam–Berry phase in space-variant polarization-state manipulations with subwavelength gratings ». *Optics letters* 26.18 (2001), p. 1424-1426 (cf. p. 7).
- BOUCHON, Patrick, Fabrice PARDO, Riad HAIDAR et Jean-Luc PELOUARD. « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation ». *Journal of the Optical Society of America A* 27.4 (2010), p. 696-702 (cf. p. 25, 32).
- BOUCHON, Patrick, Fabrice PARDO, Riad HAIDAR, Grégory VINCENT et Jean-Luc PELOUARD. « Reduced scattering-matrix algorithm for high-density plasmonic structures ». *Optics Letters* 35.19 (2010), p. 3222-3224 (cf. p. 25).
- BOYD, Robert W. *Nonlinear Optics*. 2008 (cf. p. 11, 15, 17, 72, 97).
- BUTET, Jérémy, Benjamin GALLINET, Krishnan THYAGARAJAN et Olivier JF MARTIN. « Second-harmonic generation from periodic arrays of arbitrary shape plasmonic nanostructures: a surface integral approach ». *Journal of the Optical Society of America B* 30.11 (2013), p. 2970-2979 (cf. p. 25).
- BUTET, Jérémy et Olivier JF MARTIN. « Manipulating the optical bistability in a nonlinear plasmonic nanoantenna array with a reflecting surface ». *Plasmonics* 10.1 (2015), p. 203-209 (cf. p. 21).
- CAMPIONE, Salvatore, Alexander BENZ, Michael B SINCLAIR, Filippo CAPOLINO et Igal BRENER. « Second harmonic generation from metamaterials strongly coupled to intersubband transitions in quantum wells ». *Applied Physics Letters* 104.13 (2014), p. 131104 (cf. p. 21).
- CELEBRANO, Michele et al. « Mode matching in multiresonant plasmonic nanoantennas for enhanced second harmonic generation ». *Nature Nanotechnology* 10.5 (mai 2015), p. 412-417. DOI : [10.1038/nnano.2015.69](https://doi.org/10.1038/nnano.2015.69) (cf. p. 19).
- CHEN, Pai-Yen, Christos ARGYROPOULOS et Andrea ALÙ. « Enhanced nonlinearities using plasmonic nanoantennas ». *Nanophotonics* 1.3-4 (2012), p. 221-233 (cf. p. 20).
- CHEVALIER, Paul, Patrick BOUCHON, Jean-Jacques GREFFET, Jean-Luc PELOUARD, Riad HAIDAR et Fabrice PARDO. « Giant field enhancement in electromagnetic Helmholtz nanoantenna ». *Physical Review B* 90.19 (2014), p. 195412 (cf. p. 79).
- CHEVALIER, Paul, Patrick BOUCHON, Riad HAIDAR et Fabrice PARDO. « Optical helmholtz resonators ». *Applied Physics Letters* 105.7 (2014), p. 071110 (cf. p. 1, 79, 82).

- COX, Maurice G. « The numerical evaluation of B-splines ». *IMA Journal of Applied Mathematics* 10.2 (1972), p. 134-149 (cf. p. 26).
- DASS, Chandriker Kavir, Hoyeong KWON, Shivashankar VANGALA, Evan SMITH, Justin W CLEARY, Junpeng GUO, Andrea ALÙ et Joshua R HENDRICKSON. « Gap Plasmon Enhanced Second Harmonic Generation in Epsilon-Near-Zero Nanolayers ». *ACS Photonics* (2019) (cf. p. 20, 105).
- DE BOOR, Carl. « On calculating with B-splines ». *Journal of Approximation theory* 6.1 (1972), p. 50-62 (cf. p. 26).
- DE CEGLIA, Domenico, Guisepe D'AGUANNO, Nadia MATTIUCCI, Maria Antonietta VINCENTI et Michael SCALORA. « Enhanced second-harmonic generation from resonant GaAs gratings ». *Optics Letters* 36.5 (2011), p. 704-706 (cf. p. 19, 33).
- FAN, Wenjun, Shuang ZHANG, Kevin J MALLOY, SRJ BRUECK, Nicolae C PANOIU et Richard M OSGOOD. « Second harmonic generation from patterned GaAs inside a subwavelength metallic hole array ». *Optics Express* 14.21 (2006), p. 9570-9575 (cf. p. 20).
- FEJER, Martin M, GA MAGEL, Dieter H JUNDT et Robert L BYER. « Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances ». *IEEE Journal of Quantum Electronics* 28.11 (1992), p. 2631-2654 (cf. p. 15).
- FENG, Aosong, Zejie YU et Xiankai SUN. « Giant Enhancement of Nonlinear Optical Processes With Split-Ring Resonators for THz Applications ». *IEEE Photonics Technology Letters* 31.21 (2019), p. 1681-1684 (cf. p. 20).
- FIX, Baptiste, Julien JAECK, Patrick BOUCHON, Sébastien HÉRON, Benjamin VEST et Riad HAIDAR. « High-quality-factor double Fabry-Perot plasmonic nanoresonator ». *Optics Letters* 42.24 (2017), p. 5062-5065 (cf. p. 52).
- FRANKEN, Peter, Alan E HILL, CW PETERS et Gabriel WEINREICH. « Generation of optical harmonics ». *Physical Review Letters* 7.4 (1961), p. 118 (cf. p. 5).
- GENEVET, Patrice, Jean-Philippe TETIENNE, Evangelos GATZOGIANNIS, Romain BLANCHARD, Mikhail A KATS, Marlan O SCULLY et Federico CAPASSO. « Large enhancement of nonlinear optical phenomena by plasmonic nanocavity gratings ». *Nano letters* 10.12 (2010), p. 4880-4883 (cf. p. 21).
- GRANET, Gérard. « Efficient implementation of B-spline modal method for lamellar gratings ». *Journal of the Optical Society of America A* 31.2 (2014), p. 332-337 (cf. p. 33).
- GROMOVYI, Maksym, Julien BRAULT, Aimeric COURVILLE, Stéphanie RENNESSON, Fabrice SEMOND, Guy FEUILLET, Pascal BALDI, Philippe BOUCAUD, Jean-Yves DUBOZ et Marc P DE MICHELI. « Efficient second harmonic generation in low-loss planar GaN waveguides ». *Optics Express* 25.19 (2017), p. 23035-23044 (cf. p. 19).
- HENTSCHEL, Mario, Tobias UTIKAL, Harald GIESSEN et Markus LIPPITZ. « Quantitative modeling of the third harmonic emission spectrum of plasmonic nanoantennas ». *Nano letters* 12.7 (2012), p. 3778-3782 (cf. p. 21).
- HÉRON, Sébastien. « Nanostructures pour l'exaltation d'effets non linéaires ». Thèse de doct. Université Paris-Saclay, 2016 (cf. p. 1, 16, 37, 43, 61, 79, 82).
- HÉRON, Sébastien, Patrick BOUCHON et Riad HAIDAR. « Mode matching in second-order-susceptibility metal-dielectric structures ». *Physical Review A* 94.3 (2016), p. 033831 (cf. p. 20).
- HÉRON, Sébastien, Fabrice PARDO, Patrick BOUCHON, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAIDAR. « Modal method for second harmonic generation in nanostructures ». *Journal of the Optical Society of America B* 32.2 (2015), p. 275-280 (cf. p. 25, 30, 32).
- HSIEH, Wen Ting, Pin Chieh WU, Jacob B KHURGIN, Din Ping TSAI, Ning LIU et Greg SUN. « Comparative analysis of metals and alternative infrared plasmonic materials ». *ACS Photonics* 5.7 (2017), p. 2541-2548 (cf. p. 93).
- HUGONIN, Jean-Paul et Philippe LALANNE. « Reticolo software for grating analysis ». *Institut d'Optique, Orsay, France* (2005) (cf. p. 34, 95).

- HUSU, Hannu, Roope SIKANEN, Jouni MAKITALO, Joonas LEHTOLAHTI, Janne LAUKKANEN, Markku KUITTINEN et Martti KAURANEN. « Metamaterials with tailored nonlinear optical response ». *Nano Letters* 12.2 (2012), p. 673-677 (cf. p. 19).
- KAURANEN, Martti et Anatoly V ZAYATS. « Nonlinear plasmonics ». *Nature Photonics* 6.11 (2012), p. 737 (cf. p. 18).
- KEREN-ZUR, Shay, Lior MICHAELI, Haim SUCHOWSKI et Tal ELLENBOGEN. « Shaping light with nonlinear metasurfaces ». *Advances in Optics and Photonics* 10.1 (2018), p. 309-353 (cf. p. 18).
- KOECHLIN, Charlie, Patrick BOUCHON, Fabrice PARDO, Julien JAECK, Xavier LAFOSSE, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAÏDAR. « Photon sorting in plasmonic multiresonators ». *Applied Physics Letters* 99 (2011), p. 241104 (cf. p. 1, 41).
- KRASNOK, Alexander, Mykhailo TYMCHENKO et Andrea ALU. « Nonlinear metasurfaces: a paradigm shift in nonlinear optics ». *Materials Today* 21.1 (2018), p. 8-21 (cf. p. 18).
- KUZNETSOV, Arseniy I, Andrey E MIROSHNICHENKO, Mark L BRONGERSMA, Yuri S KIVSHAR et Boris LUK'YANCHUK. « Optically resonant dielectric nanostructures ». *Science* 354.6314 (2016) (cf. p. 8).
- LALANNE, Philippe et G Michael MORRIS. « Highly improved convergence of the coupled-wave method for TM polarization ». *Journal of Optical Society A* 13.4 (1996), p. 779-784 (cf. p. 25).
- LAROCHE, Thierry, Fadi Issam BAIDA et Daniel VAN LABEKE. « Three-dimensional finite-difference time-domain study of enhanced second-harmonic generation at the end of a apertureless scanning near-field optical microscope metal tip ». *Journal of the Optical Society of America B* 22.5 (2005), p. 1045-1051 (cf. p. 25).
- LEE, Jongwon, Mykhailo TYMCHENKO, Christos ARGYROPOULOS, Pai-Yen CHEN, Feng LU, Frederic DEMMERLE, Gerhard BOEHM, Markus-Christian AMANN, Andrea ALU et Mikhail A BELKIN. « Giant nonlinear response from plasmonic metasurfaces coupled to intersubband transitions ». *Nature* 511.7507 (2014), p. 65 (cf. p. 21).
- LÉVESQUE, Quentin, Mathilde MAKHSIYAN, Patrick BOUCHON, Fabrice PARDO, Julien JAECK, Nathalie BARDOU, Christophe DUPUIS, Riad HAÏDAR et Jean-Luc PELOUARD. « Plasmonic planar antenna for wideband and efficient linear polarization conversion ». *Applied Physics Letters* 104.11 (2014), p. 111105 (cf. p. 1).
- LEWIS, Gilbert N, David LIPKIN et Theodore T MAGEL. « Reversible photochemical processes in rigid media. A study of the phosphorescent state ». *Journal of the American Chemical Society* 63.11 (1941), p. 3005-3018 (cf. p. 5).
- LI, Lifeng. « Use of Fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures ». *Journal of Optical Society A* 13.9 (1996), p. 1870-1876 (cf. p. 25).
- LI, Lifeng et Charles W. HAGGANS. « Convergence of the coupled-wave method for metallic lamellar diffraction gratings ». *Journal of the Optical Society of America A* 10.6 (1993), p. 1184-1189 (cf. p. 27).
- LIN, Dianmin, Pengyu FAN, Erez HASMAN et Mark L BRONGERSMA. « Dielectric gradient metasurface optical elements ». *Science* 345.6194 (2014), p. 298-302 (cf. p. 7).
- LIU, Sheng et al. « Resonantly Enhanced Second-Harmonic Generation Using III-V Semiconductor All-Dielectric Metasurfaces ». *Nano Letters* 16.9 (2016), p. 5426-5432. DOI : [10.1021/acs.nanolett.6b01816](https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.6b01816). eprint : <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.6b01816> (cf. p. 19).
- LIU, Yingnan, Jongwon LEE, Stephen MARCH, Nishant NOOKALA, Daniele PALAFERRI, John F KLEM, Seth R BANK, Igal BRENER et Mikhail A BELKIN. « Difference-Frequency Generation in Polaritonic Intersubband Nonlinear Metasurfaces ». *Advanced Optical Materials* 6.20 (2018), p. 1800681 (cf. p. 21, 50, 72).
- MAËS, Clément, Grégory VINCENT, Fernando González-Posada FLORES, Laurent CERUTTI, Riad HAÏDAR et Thierry TALIERCIO. « Infrared spectral filter based on all-semiconductor guided-mode resonance ». *Optics letters* 44.12 (2019), p. 3090-3093 (cf. p. 92).
- MAKHSIYAN, Mathilde. « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux ». Thèse de doct. Paris Saclay, 2017 (cf. p. 9, 40).
- MAKHSIYAN, Mathilde, Patrick BOUCHON, Julien JAECK, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAÏDAR. « Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit ». *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251103 (cf. p. 1).

- MÄKITALO, Jouni, Saku SUURINIEMI et Martti KAURANEN. « Boundary element method for surface nonlinear optics of nanoparticles ». *Optics Express* 19.23 (2011), p. 23386-23399 (cf. p. 25).
- MARINICA, Dana-Codruta, AG BORISOV et SV SHABANOV. « Second harmonic generation from arrays of sub-wavelength cylinders ». *Physical Review B* 76.8 (2007), p. 085311 (cf. p. 25).
- MOLONEY, Jerome V, Joe M YARBOROUGH, Mahmoud FALLAHI, Maik SCHELLER, Stephan W KOCH et Martin KOCH. « Compact, high-power, room-temperature, narrow-line terahertz source ». *SPIE Newsroom* (2011), p. 2-4 (cf. p. 7).
- MUEHLSCHLEGEL, Peter, H-J EISLER, Olivier JF MARTIN, Bert HECHT et DW POHL. « Resonant optical antennas ». *Science* 308.5728 (2005), p. 1607-1609 (cf. p. 9).
- NIESLER, FBP, N FETH, Stefan LINDEN, Jens NIEGEMANN, J GIESELER, K BUSCH et M WEGENER. « Second-harmonic generation from split-ring resonators on a GaAs substrate ». *Optics Letters* 34.13 (2009), p. 1997-1999 (cf. p. 20).
- PALIK, Edward D. *Handbook of optical constants of solids*. T. 3. Academic, 1998 (cf. p. 39).
- PANOIU, Nicolae C, Wei E.I. SHA, Danguyan Y LEI et Guang-Can LI. « Nonlinear optics in plasmonic nanostructures ». *Journal of Optics* 20.8 (2018), p. 083001 (cf. p. 18).
- PARDO, Fabrice, Patrick BOUCHON, Riad HAIDAR et Jean-Luc PELOUARD. « Light funneling mechanism explained by magnetoelectric interference ». *Physical review letters* 107.9 (2011), p. 093902 (cf. p. 8).
- PENDRY, John B, AJ HOLDEN, WJ STEWART et I YOUNGS. « Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures ». *Physical review letters* 76.25 (1996), p. 4773 (cf. p. 7).
- PORTIER, Benjamin, Benjamin VEST, Fabrice PARDO, Nicolas PÉRÉ-LAPERNE, Emilie STEVELER, Julien JAECK, Christophe DUPUIS, Nathalie BARDOU, Aristide LEMAITRE, Emmanuel ROSENCHER et al. « Resonant metallic nanostructure for enhanced two-photon absorption in a thin GaAs pin diode ». *Applied Physics Letters* 105.1 (2014), p. 011108 (cf. p. 37).
- RENAUD, François, Antoine MONMAYRANT, Stéphane CALVEZ, Olivier GAUTHIER-LAFAYE, Anne-Laure FEHREMBACH et Evgeny POPOV. « Second-harmonic-generation enhancement in cavity resonator integrated grating filters ». *Optics letters* 44.21 (2019), p. 5198-5201 (cf. p. 19).
- ROCCO, Davide et al. « Tuning the second-harmonic generation in AlGaAs nanodimers via non-radiative state optimization ». *Photonics Research* 6.5 (mai 2018), B6-B12. DOI : [10.1364/PRJ.6.0000B6](https://doi.org/10.1364/PRJ.6.0000B6) (cf. p. 19).
- ROPPO, Vito, Crina COJOCARU, Fabrice RAINERI, Guiseppe D'AGUANNO, Jose TRULL, Yacine HALIOUA, R RAJ, Isabelle SAGNES, R VILASECA et Michael SCALORA. « Field localization and enhancement of phase-locked second-and third-order harmonic generation in absorbing semiconductor cavities ». *Physical Review A* 80.4 (2009), p. 043834 (cf. p. 21).
- ROSENCHER, Emmanuel, Andrea FIORE, Borge VINTER, V BERGER, Ph BOIS et J NAGLE. « Quantum engineering of optical nonlinearities ». *Science* 271.5246 (1996), p. 168-173 (cf. p. 21).
- SAKAT, Emilie, Grégory VINCENT, Petru GHENUCHE, Nathalie BARDOU, Stéphane COLLIN, Fabrice PARDO, Jean-Luc PELOUARD et Riad HAIDAR. « Guided mode resonance in subwavelength metallodielectric free-standing grating for bandpass filtering ». *Optics Letters* 36.16 (2011), p. 3054-3056 (cf. p. 1, 9, 37, 98).
- SANFORD, Norman A, Aalbert V DAVYDOV, Denis V TSVETKOV, AV DMITRIEV, Stacia KELLER, UK MISHRA, Steven P DENBAARS, SS PARK, JY HAN et RJ MOLNAR. « Measurement of second order susceptibilities of GaN and AlGaN ». *Journal of Applied Physics* 97.5 (2005), p. 053512 (cf. p. 17, 87).
- SCALORA, Michael, Maria Antonietta VINCENTI, Domenico DE CEGLIA, Vito ROPPO, Marco CENTINI, Neset AKOZBEK et Mark J BLOEMER. « Second-and third-harmonic generation in metal-based structures ». *Physical Review A* 82.4 (2010), p. 043828 (cf. p. 20).
- SCHURIG, David, Jack J MOCK, BJ JUSTICE, Steven A CUMMER, John B PENDRY, Anthony F STARR et David R SMITH. « Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies ». *Science* 314.5801 (2006), p. 977-980 (cf. p. 7).
- SEGAL, Nadav, Shay KEREN-ZUR, Netta HENDLER et Tal ELLENBOGEN. « Controlling light with metamaterial-based nonlinear photonic crystals ». *Nature Photonics* 9.3 (2015), p. 180 (cf. p. 19).

- SKAULI, T, Paulina S KUO, Konstantin L VODOPYANOV, TJ PINGUET, Ofer LEVI, LA EYRES, James S HARRIS, MM FEJER, B GERARD, L BECOUARN et al. « Improved dispersion relations for GaAs and applications to nonlinear optics ». *Journal of Applied Physics* 94.10 (2003), p. 6447-6455 (cf. p. 39, 62).
- SKAULI, T. et al. « Measurement of the nonlinear coefficient of orientation-patterned GaAs and demonstration of highly efficient second-harmonic generation ». *Opt. Lett.* 27.8 (avr. 2012), p. 628-630. DOI : 10.1364/OL.27.000628 (cf. p. 16, 38).
- TALIERCIO, Thierry, Vilianne Ntsame GUILENGUI, Laurent CERUTTI, Eric TOURNIÉ et Jean-Jacques GREFFET. « Brewster “mode” in highly doped semiconductor layers: an all-optical technique to monitor doping concentration ». *Optics express* 22.20 (2014), p. 24294-24303 (cf. p. 92).
- VABISHCHEVICH, Polina P, Sheng LIU, Michael B SINCLAIR, Gordon A KEELER, Gregory M PEAKE et Igal BRENER. « Enhanced second-harmonic generation using broken symmetry III–V semiconductor fano metasurfaces ». *ACS Photonics* 5.5 (2018), p. 1685-1690 (cf. p. 19).
- VALEV, Ventsislav K, Nick SMISDOM, Alejandro V SILHANEK, Ben DE CLERCQ, W GILLIJNS, Marcel AMELOOT, VV MOSHCHALCOV et Thierry VERBIEST. « Plasmonic ratchet wheels: switching circular dichroism by arranging chiral nanostructures ». *Nano Letters* 9.11 (2009), p. 3945-3948 (cf. p. 19).
- VESELAGO, Victor Georgievich. « The Electrodynamics of Substances with Simultaneously Negative Values of ϵ and μ ». *Physics-Uspekhi* 10.4 (1968), p. 509-514 (cf. p. 7).
- WALZ, Michael, Thomas ZEBROWSKI, Jens KÜCHENMEISTER et Kurt BUSCH. « AB-Spline Modal Method in Comparison to the Fourier Modal Method ». *AIP Conference Proceedings*. T. 1398. 1. American Institute of Physics. 2011, p. 177-179 (cf. p. 34).
- WANG, Fu Xiang, Francisco J RODRIGUEZ, Willem M ALBERS, Risto AHORINTA, JE SIPE et Martti KAURANEN. « Surface and bulk contributions to the second-order nonlinear optical response of a gold film ». *Physical Review B* 80.23 (2009), p. 233402 (cf. p. 19, 38).
- WEI, Chaoyang, Shijie LIU, Degang DENG, Jian SHEN, Jianda SHAO et Zhengxiu FAN. « Electric field enhancement in guided-mode resonance filters ». *Optics Letters* 31.9 (2006), p. 1223-1225 (cf. p. 43).

Titre : Exaltation d'effets non linéaires dans des métasurfaces à multi-résonances accordées

Mots clés : optique non linéaire, nanoantennes, plasmonique, infrarouge

Résumé : Les nano-antennes sont des composants nanostructurés capables de concentrer la lumière dans des volumes sub-longueur d'onde, exaltant le champ électrique selon plusieurs ordres de grandeur. Cela est particulièrement intéressant pour la génération d'effets non linéaires, qui dépendent des puissances du champ électrique incident. En effet, les effets non linéaires d'ordre 2, qui permettent les phénomènes de conversion de fréquence, comme la génération de second harmonique (SHG), ou la différence de fréquence (DFG), dépendent du carré du champ électrique. Ainsi, si l'on inclut un cristal non linéaire dans une nano-antenne, on peut exalter significativement ces effets. L'objectif de cette thèse est donc de concevoir des nano-antennes permettant de générer efficacement des effets non linéaires d'ordre 2. De tels dispositifs pourraient être appliqués à la

création de nouvelles sources pour la spectroscopie infrarouge.

Le travail de thèse va de la modélisation électromagnétique des effets non linéaires dans les nanostructures à la démonstration expérimentale. La modélisation de polarisation non linéaire générée suivant l'axe optique a été développée en s'appuyant sur une méthode modale B-Spline pour les calculs linéaires. Ce modèle a permis de simuler les effets non linéaires liés à cette polarisation, d'affiner la compréhension des phénomènes physiques dans les nanostructures multi-résonantes, et d'optimiser une structure ayant une efficacité de $0.1W/W^2$ en différence de fréquence dans l'infrarouge. La conception d'un échantillon a permis de valider les propriétés résonantes, ainsi qu'une démonstration expérimentale de génération de second harmonique.

Title : Exaltation of nonlinear effects in metasurfaces with accorded multi-resonances

Keywords : nonlinear optics, nano-antennas, plasmonics, infrared

Abstract : Nano-antennas are nanostructured components capable of concentrating light in sub-wavelength volumes, exalting the electric field by several orders of magnitude. This is particularly interesting for the generation of nonlinear effects, which depend on the powers of the incident electric field. Actually, the second order non-linear effects, which allow frequency conversion phenomena, such as second harmonic generation (SHG), or difference frequency generation (DFG), depend on the square of the electric field. Thus, if we include a nonlinear crystal in a nano-antenna, we can significantly enhance these effects. The objective of this thesis is thus to design nano-antennas that can efficiently generate second order nonlinear effects. Such devices could be applied to the creation of new sources for infrared spectro-

scopy.

The thesis work ranges from electromagnetic modelling of nonlinear effects in nanostructures to experimental demonstration. The modelling of nonlinear polarization generated along the optical axis has been developed using a B-Spline modal method for linear calculations. This model has allowed to simulate the nonlinear effects related to this polarization, to refine the understanding of physical phenomena in multi-resonant nanostructures, and to optimize a structure with an efficiency of $0.1W/W^2$ in difference frequency generation in the infrared. The design of a sample allowed the validation of the resonant properties, as well as an experimental demonstration of second harmonic generation.