

Verrouillage de modes passif de lasers à cascade quantique moyen infrarouge intégrant du graphène Amine Outafat

▶ To cite this version:

Amine Outafat. Verrouillage de modes passif de lasers à cascade quantique moyen infrarouge intégrant du graphène. Electronique. Université Gustave Eiffel, 2022. Français. NNT: 2022UEFL2052 . tel-04043986

HAL Id: tel-04043986 https://theses.hal.science/tel-04043986v1

Submitted on 24 Mar 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



École Doctorale Mathématiques, Sciences et Technologies de

l'Information et de la Communication

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'Université Gustave Eiffel

Spécialité : Electronique, Optronique et Systèmes

présenté par :

Amine OUTAFAT

Verrouillage de modes passif de lasers à cascade quantique moyen infrarouge intégrant du graphène

Soutenance prévue le 06 juillet 2022 devant le jury composé de :

Professeur, Univ. Franche Comté, Femto-ST
Directeur de recherche, LPENS, CNRS
Professeur, Univ. Gustave Eiffel, Esycom
Professeur, Univ. Paris-Saclay, C2N
Maître de conférences HDR, Sorbone Univ., Geeps
Professeure, Le Cnam, Esycom
Professeure, Univ. Gustave Eiffel, Esycom
Maître de conférences, Le Cnam, Esycom

Rapporteur Rapporteur Examinateur Examinateur Directrice de thèse Co-directrice de thèse Co-encadrant

Table des matières

Introduction

1	Tec	hnique	es de verrouillage de modes des lasers à cascade quantique	5
	1.1	Introd	luction	6
	1.2	Les ap	oplications dans le moyen infrarouge	7
		1.2.1	Spectroscopie moyen infrarouge	7
		1.2.2	Communication en espace libre	7
		1.2.3	Sécurité et défense	8
	1.3	Source	es lasers dans le moyen infrarouge	9
		1.3.1	Lasers à cascade quantique	0
		1.3.2	Structures de laser à cascade quantique	3
		1.3.3	Zone d'émission	3
		1.3.4	Zone d'injection	6
	1.4	Fabric	cation de lasers à cascade quantique	7
	1.5	Princi	pe du verrouillage de modes	9
		1.5.1	Principe général	9
		1.5.2	Absorbant saturable	4
			1.5.2.1 Profondeur de modulation	4
			1.5.2.2 Pertes non-saturables	5
			1.5.2.3 temps de relaxation	5
			1.5.2.4 Intensité de saturation	6
			1.5.2.5 Fluence de saturation	6

1

		1.5.3	Modèles de l'absorption saturable	27
		1.5.4	Absorbant saturable rapide	27
		1.5.5	Absorbant saturable à semiconducteur	28
		1.5.6	Structures miroirs - SESAM	30
		1.5.7	Graphène comme absorbant saturable	31
		1.5.8	Effets non-linéaires	34
			1.5.8.1 Effet Kerr	34
			1.5.8.2 Dispersion de la vitesse de groupe	38
			1.5.8.3 Transparence auto-induite	40
			1.5.8.4 Instabilité RNGH (Risken-Nummedal-Graham-Haken)	42
			1.5.8.5 Spatial hole burning	43
	1.6	Verrou	uillage de modes dans les QCLs	43
		1.6.1	Verrouillage de modes actif	44
		1.6.2	Verrouillage de modes passif	47
		1.6.3	Verrouillage de modes hybride	52
	1.7	Étude	e proposée	52
	1.8	Concl	usion	53
2	Mo	délisat	ion de la dynamique des QCLs avec les équations de Maxwell	-
	Blo	ch		54
	2.1	Équat	ions de Bloch	55
		2.1.1	Hamiltonien et interaction d'énergie dans un atome $\ . \ . \ . \ .$	55
		2.1.2	Matrice densité	58
	2.2	Equat	ions de Maxwell	64
	2.3	Equat	ions de Maxwell-Bloch	66
	2.4	Modé	lisation numérique des équations Maxwell-Bloch	67
		2.4.1	Méthode des différences finies dans le domaine temporel	68
			2.4.1.1 Principe de la méthode	68
			2.4.1.2 Condition de stabilité	70

		2.4.1.3 Conditions aux limites absorbantes
		2.4.2 Discrétisation des équations de Maxwell-Bloch
	2.5	Implémentation du code FDTD
		2.5.1 Outil d'implémentation
		2.5.2 Résultats de simulation
	2.6	Conclusion
3	Ver	ouillage de modes de QCLs moyen infrarouge 78
	3.1	Introduction
	3.2	Verrouillage de modes actif du QCL
		3.2.1 Structure simulée
		3.2.2 Mise en équation
		3.2.3 Résultats obtenus 86
	3.3	Verrouillage de modes passif de QCLs avec un absorbant saturable 93
		3.3.1 Équation de Maxwell-Bloch avec un absorbant saturable 94
		3.3.2 Résultats de simulation
		3.3.3 Verrouillage de modes hybride
	3.4	$Conclusion \dots \dots$
4	Str	ctures proposées pour le verrouillage de modes de QCL moyen
	infr	rouge 104
	4.1	Transparence auto-induite (SIT)
		4.1.1 Equations de Maxwell-Bloch
		4.1.2 Discrétisation temporelle des équations de Maxwell-Bloch 109
		4.1.3 Résultats de simulation
		4.1.4 Verrouillage de modes hybride
	4.2	Verrouillage de modes passif de QCLs à base de graphène
		4.2.1 Modélisation numérique du graphène
		4.2.2 Discrétisation des équations

	4.2.3	Résultats de simulation	124	
4.3	3 Miroir	absorbant saturable à base de graphène	127	
	4.3.1	Structure du miroir	127	
	4.3.2	Résultats de simulation	128	
	4.3.3	Méthode de Maloney pour le graphène	131	
	4.3.4	Influence de l'emplacement de la couche du graphène	134	
	4.3.5	QCL avec une transition verticale	136	
4.4	4 Amélio	pration du verrouillage de modes actif par l'utilisation du graphène	<mark>e</mark> 137	
4.	5 Conclu	usion	140	
Conc	clusion e	t perspectives	142	
Liste	Liste des publications 14			
Annexes 14				
A F	Propr	iétés des impulsions	148	
вА	B Approximation de l'enveloppe à varia-			
t	ion le	ente	150	
с S	truct	ture du QCL intégrant le SIT	152	
р Л	Aéth o	ode de Newton-Raphson	154	
εΝ	/léth o	ode du point fixe	155	
FF	abrio	cation du GSAM	156	
Résu	mé		158	
Abst	ract		159	

Liste des figures

1.1	Spectre électromagnétique (Lumenistics, 2012)	6
1.2	Spectre d'absorption des molécules dans le moyen infrarouge [10]. \ldots	7
1.3	Infrastructures de communication optique en espace libre $[11]$	8
1.4	Système de contre-mesure optique.	9
1.5	Différents lasers émettent dans l'infrarouge moyen $[16]$	10
1.6	Schéma simplifié de puits quantiques dans une bande de conduction	11
1.7	Laser à cascade quantique : structure et périodes	13
1.8	Diagramme schématique de zone d'émission à (a) puits quantique, (b)	
	super-réseau et (c) transition Bound-to-Continuum	15
1.9	Zone d'injection.	16
1.10	Structure de bandes de la région active [31]	17
1.11	Étapes de fabrication de lasers à cascade quantique [37]	19
1.12	Intensité des impulsions en fonction des modes longitudinaux en phase.	20
1.13	Peigne de fréquence et phase des modes longitudinaux [38]	21
1.14	Structure de la cavité laser pour le verrouillage de modes [38]	22
1.15	Variation des pertes pour le verrouillage de modes actif et passif $[38]$.	23
1.16	Mécanismes présents dans le verrouillage de modes passif	24
1.17	Saturation de la transmission d'un absorbant saturable [46]. \ldots .	25
1.18	Diagram de dispersion d'énergie dans un semiconducteur	29
1.19	Effet de la lentille Kerr sur le profil spatial du faisceau [38]	30
1.20	Structure miroir absorbant saturable à semiconducteur (SESAM)	31

1.21	Structure de la bande interdite du graphène [58]	32
1.22	Transmission du graphène à la longueur d'onde 1500 nm [60]	34
1.23	(a) Effet Kerr transverse sur une impulsion et (b) variation temporelle	
	de la fréquence [66]	36
1.24	Effet de la lentille Kerr sur le profil spatial du faisceau [38]	37
1.25	Propagation d'une impulsion dans un milieu dispersif [66]. \ldots \ldots	38
1.26	Propagation d'une impulsion dans un milieu dispersif	39
1.27	Schéma d'une structure résonante à deux niveaux dans un milieu (a) à	
	gain et (b) absorbant [75] \ldots	40
1.28	Champ électrique et inversion de population dans le milieu (a) à gain et	
	(b) absorbant [78]	41
1.29	Structure QCL à deux sections (© D. Darson CNRS/ENS)	45
1.30	Hétérostructure $Al_{0.48}In_{0.52}As/Ga_{0.47}In_{0.53}As$ du QCL. Les épaisseurs	
	sont données en n m et le dopage en cm $^{-3}$ [91]	45
1.31	QCL MIR à cavité externe. BS : séparation de faisceau, MCT : détecteur,	
	DG : réseau de diffraction, L : lentille asphérique, M : Miroir [93]	47
1.32	Seuil de l'instabilité laser en fonction du coefficient d'absorption saturable	
	[87]	48
1.33	Spectre d'émission mesuré d'un QCl en guide d'onde $ridge$ émettant à	
	$\lambda=8\;\mu{\rm m}$ pour différents taux de pompage et une largeur de (a) 10 $\mu{\rm m}$	
	à 200 K et (b) 15 μ m à 300 K [87]	49
1.34	Schéma synoptique du QCL avec les régions de gain et d'absorption [75].	51
1.35	Structure de verrouillage de modes de QCL à deux sections	53
2.1	Etats d'énergie d'un atome à 2 niveaux	56
2.2	Discrétisassion en temps et espace des équations de Maxwell	69
2.3	Méthode explicite, implicite et semi-implicite.	70
2.4	Déplacement de ce flux sur un temps Δt est sur une distance v Δt	71
2.5	Discrétisation temporelle des équations de Maxwell-Bloch avec la méthode	
	de couplage (a) fort et (b) faible	73

2.6	Configuration de la structure simulée pour valider le code développé.	74
2.7	Résultats de simulation pour une impulsion (a) π , (b) 2π et (c) 4π . En	
	bleu le champ électrique et en rouge l'inversion de population pris entre	
	les positions 25 μ m et 55 μ m de la cavité	76
3.1	Configuration de la structure du laser pour le verrouillage de modes actif.	80
3.2	Dispositif expérimental pour l'autocorrélation du second ordre par inter-	
	férométrie de Michelson.	81
3.3	Photocourant obtenu par autocorrélation interférométrique utilisant un	
	QWIP à deux photons [114], pour une seule impulsion générée lors d'un	
	aller-retour.	82
3.4	Bande d'énergie de QWIP à deux photons [114]	82
3.5	IAC simulé pour $a_m = 5$, $L = 2.6$ mm, $L_a = 240 \ \mu \text{m et}$ (a) $a_p = 1, 1$, (b)	
	$a_p = 1,45$ et (c) $a_p = 1,61$	87
3.6	IAC simulé pour $a_p = 1, 1, L = 2.6$ mm, $L_a = 240 \ \mu \text{m}$ et a_m de (a) 3,5	
	et (b) 0,5	87
3.7	Variation du plancher de l'IAC pour (a) a_p variable et $a_m = 5$ et (b) a_m	
	variable et $a_p = 1, 1, \ldots, \ldots$	88
3.8	Résultats de simulation du champ électrique (gauche) et un train d'impul-	
	sions dans une fenêtre temporelle de 5 aller-retour (droite) pour $a_p = 1, 1,$	
	$a_m = 5$ et (a, b) $L_a = 120 \ \mu m$, (c, d) $L_a = 240 \ \mu m$ et (e, f) $L_a = 300 \ \mu m$.	89
3.9	Résultats de simulation pour $a_p = 1, 1, a_m = 5$ et $T_1 = 5$ ps du champ	
	électrique (a) après 600 aller-retour et (b) fenêtre temporelle des cinq	
	dernières impulsions en régime établi	90
3.10	Résultat de simulation pour $a_p=1,1,a_m=5,T_1=5\;ps$, $L=1,5\;mm$	
	et $L_a=240~\mu{\rm m}$ du profil de champ électrique (a) après 600 aller-retour	
	et (b) une fenêtre temporelle des cinq dernières impulsions en régime	
	établi	91

3.11 Résultat de simulation pour $a_p = 1, 1, a_m = 5, T_1 = 5$ ps, L = 1 mm et et $L_a = 240 \ \mu \text{m}$ du profil de champ électrique (a) après 600 aller-retour et (b) une fenêtre temporelle des cinq dernières impulsions en régime 91 3.12 Résultat de simulation pour $a_p=1, 61,\, a_m=5,\, T_1=5$ ps, L=1mm et $L_a=240~\mu{\rm m}$ (a) profil de champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant des cinq dernières impulsions en régime établi. 923.13 Structure de la cavité laser avec un absorbant saturable. 93 3.14 Résultat de simulation pour $I_g = 1, 7 I_{g,min}$ et $I_a = 0, 3 I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 96 3.15 Résultat de simulation pour $I_g = 1, 7 I_{g,min}$ et $I_a = 0, 7 I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 97 3.16 Résultat de simulation pour $I_g = 1, 7 I_{g,min}$ et $I_a = 0, 9 I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 97 3.17 Résultat de simulation pour $I_g = 1,7 I_{g,min}$ et $I_a = I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) fenêtre temporelle des trois premières impulsions. 98 3.18 Structure du laser utilisée pour le verrouillage de modes hybride. . . . 98 3.19 Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0$, 7 et $a_p = 1, 1$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 99 3.20 Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0,7$ et $a_p = 1,6$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 100 3.21 Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0$, 7 et $a_p = 2$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 100 3.22 Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0$, 7 et $a_p = 3$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions. 100 3.23 Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0, 3$ et $a_p = 1, 1$ (a) profil de champ électrique complet et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq 101

3.24	Résultat de simulation pour $a_{p,a} = 0, 7, a_p = 1, 6$ et $a_m = 3, 5$ (a) profil du champ électrique total et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq	
	impulsions.	102
3.25	Résultat de simulation pour $a_{p,a} = 0, 7, a_p = 1, 6$ et $a_m = 0, 5$ (a) profil du champ électrique total et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq	
	impulsions	102
3.26	Résultat de simulation pour $a_{p,a} = 0, 7, a_p = 1, 1$ et $a_m = 0, 5, \ldots$	102
4.1	Configuration de la structure du laser pour la transparence auto-induite (SIT)	105
4.2	Limites de stabilité de l'absorption normalisée fonction du gain normalisé	100
	pour le cas idéal ($\Delta_{0g}=1$ et $\Delta_{0a}=-1$)	108
4.3	Forme de l'impulsion initiale pour la structure SIT.	112
4.4	Résultat de simulation pour $\bar{g}_n = 2, 5$, $\bar{a}_n = 2$ et (a)-(b) $\gamma = 0$ m/V ² , (c)-(d) $\gamma = 1,9 \ 10^{-11}$ m/V ² et (e)-(f) $\gamma = 10^{-11}$ m/V ² . Profil du champ	
	électrique (gauche) et zoom sur une impulsion (droite).	113
4.5	Champ électrique maximum et durée de l'impulsion en fonction de γ	
	pour $\bar{g}_n = 2,5$ et $\bar{a}_n = 2,\ldots,\ldots,\ldots,\ldots,\ldots$	114
4.6	Champ maximal et durée d'impulsion en fonction de γ pour $\bar{g}_n = 3, 5$ et	
	$\bar{a}_n = 4, 2, \ldots, \ldots, \ldots, \ldots, \ldots, \ldots, \ldots, \ldots, \ldots$	115
4.7	Résultat de simulation pour $\bar{g}_n = 3,5$ et \bar{a}_n égale à (a) 2,4 et (b) 6,1	116
4.8	Structure laser pour un verrouillage de modes hybride à l'aide d'un	
	absorbant saturable enveloppant les couches de gain.	116
4.9	Résultats de simulation pour $a_m = 5$ et \bar{g}_n égal à (a)-(b) 1,6, (c)-(d) 3 et	
	(e)-(f) 5. Profil du champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle	
	contenant cinq impulsions (droite).	118
4.10	Résultats de simulation pour $a_m = 0, 5$ et \bar{g}_n égal à (a)-(b) 1,6 et (c)-(d) 3.	
	Profil du champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant	
	cinq impulsions (droite).	119
4.11	Transmission sur différentes couches de graphène.	121

4.12	Transmittance de 5 couches de graphène dans le moyen infrarouge [131].	121
4.13	Structure du laser pour le verrouillage de modes passif à base de graphène	125
4.14	Résultats de simulation du verrouillage de modes passif utilisant le gra-	
	phène comme absorbant saturable pour $a_p = 1,61$ selon deux méthodes	
	de modélisation	126
4.15	Résultats de simulation du verrouillage de mode passif utilisant le gra-	
	phène comme absorbant saturable pour $a_p = 2$ selon deux méthodes de	
	modélisation.	126
4.16	Configuration de la structure du laser pour le verrouillage de modes	
	passif à base de GSAM.	127
4.17	Miroir à réseau de Bragg intégrant le graphène $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{4 n_{SiO_2}}$. Champ	
	électrique et indice de réfraction.	128
4.18	Résultats de simulation pour (a)-(b) $a_p = 1, 1$ et (c)-(d) $a_p = 1, 6$.	
	Profil du champ électrique (gauche) et fenêtre temporelle contenant cinq	
	impulsions (droite)	129
4.19	Résultat de simulation pour a_p égal à (a) 2 et (b) 2.5. Profil de champ	
	électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions	
	(droite)	130
4.20	Schéma équivalent de la couche de graphène utilisant la méthode de	
	Maloney	131
4.21	Résultat de simulation pour a_p égal à (a) 1,6, (b) 2 et (c) 3. Profil	
	de champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq	
	impulsions (droite).	133
4.22	Miroir à réseau de Bragg intégrant le graphène pour $L_{SiO_2} = \frac{\lambda_n}{2}$. Champ	
	électrique et indice de réfraction.	135
4.23	Résultat de simulation du verrouillage de modes passif $a_p=1,6$ en	
	fonction de l'épaisseur de la couche SiO_2 de (a) $\frac{\lambda_n}{8}$ et (b) $\frac{\lambda_n}{2}$	135
4.24	Résultat de simulation pour $a_p = 1.1$ et $T_1 = 5$ ps (a) profil de champ	
	électrique complet et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq périodes	
	d'un aller-retour.	136

4.25	Résultat de simulation pour $a_p = 1.1$, $T_1 = 5 \ ps$ et L=2 mm (a) profil	
	de champ électrique total et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq	
	périodes d'un aller-retour.	137
4.26	Configuration de la structure du laser pour le verrouillage de mode actif	
	avec le graphène.	138
4.27	Résultat de simulation pour $a_m = 5$ et a_p de (a)-(b) 1,1, (c)-(d) 1,6 et	
	(e)-(f) 3,5. Profil du champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle	
	contenant cinq impulsions (droite).	139
4.28	Résultat de simulation pour $a_m = 0,5$ et $a_p = 1,6$ (a) profil de champ	
	électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions	140
A.1	Relation de Fourier pour les impulsions Gaussienne et Secant Hyperbolique.	149
B.1	Impulsion gaussienne et son enveloppe.	151
C.1	Configuration de la structure du laser pour la transparence auto-induite	
	(SIT). Les séquences des épaisseurs en \mathring{A} sont : 42 , 34, 9 , 33, 12 , 30,	
	13 , 28, 16 , 28, 41 , 27, 18 , 62, 14 , 58, 28 , 42, 12 , 40, 13 , 37, 13 , 34,	
	16, 34, 34, 9, 31, 50, 5, 84. Les nombres en gras sont les matériaux	
	$In_{0.52}Al_{0.48}As$ des barrières de potentiel et les autres sont $In_{0.53}Ga_{0.47}As$	
	puits quantiques [78]	153
F.1	Etapes de fabrication du GSAM.	157

Liste des tableaux

2.1	Paramètres physiques et géométriques utilisés en simulation	75
3.1	Paramètres physiques utilisés en simulation selon la configuration de la	
	figure(3.1)	85
3.2	Paramètres de simulation utilisés	95
4.1	Paramètres physiques utilisés en simulation.	111
4.2	Caractéristiques des impulsions obtenues	114
4.3	Paramètres physiques du graphène dans le moyen infrarouge	124
A 1	Paramètres physiques utilisés en simulation	149

Introduction

Le moyen infrarouge est le spectre électromagnétique situé dans la plage des longueurs d'onde entre 2,5 et 20 μ m. Dans cette fenêtre spectrale, diverses applications sont exploitées telles que la communication en espace libre, la spectroscopie, la télédétection dans les domaines civil et défense. Cet intérêt est dû d'une part à la transparence de l'atmosphère dans cette gamme de longueur d'onde favorisant une distance de communication élevée. D'autre part, diverses substances liquides (H_2O , éthanol, acétone, etc.) et gaz $(CO_2, CO, CH_4, etc.)$ possèdent des résonances fondamentales ce qui se traduit par une signature d'absorption caractérisée à ces longueurs d'onde. La génération du rayonnement dans le moyen infrarouge peut être réalisée avec différentes sources. Nous pouvons cités les lasers à semiconducteur dont la première démonstration remonte à l'année 1963 à la longueur d'onde 3,2 μ m et les lasers à émission de surface à cavité verticale (VCSEL). Ces sources ont l'inconvénient de fonctionner à des températures critiques ce qui nécessite l'utilisation d'un système de refroidissement et des stabilisateurs de puissance. D'autre part, ils ne sont pas large-bande et la fréquence d'émission est limitée par la largeur de la bande interdite du matériau utilisé. Une autre source qui émet dans le moyen infrarouge est le laser à cascade quantique (QCL). C'est une source très prometteuse parce qu'elle présente un temps de réponse très rapide par rapport aux autres lasers en raison de la courte durée de vie des électrons à l'état excité. Le fonctionnement à température ambiante est possible en fonction de la structure de la zone d'émission. L'inconvénient réside dans le courant de seuil qui peut être élevé en raison du temps de relaxation très court.

Le QCL génère des photons grâce à une transition intra-bande entre deux états énergétiques se situant dans la bande de conduction ou la bande de valence. Ces transitions sont obtenues par ingénierie des structures à puits quantiques en centrale technologique. L'histoire du QCL a commencé par l'idée proposée par Kazarinov et Suris [1] en 1971. Ensuite, la première réalisation d'un QCL émettant dans le domaine de l'infrarouge moyen à une longueur d'onde de 4, 2 μ m a été démontrée en 1994 [2]. Depuis lors, plusieurs travaux ont été menés pour améliorer les performances des QCLs et devenir aujourd'hui l'une des sources de lumière compacte la plus importante émettant dans le domaine de l'infrarouge moyen, proche et lointain et dans le domaine terahertz (THz).

La génération des impulsions brèves est nécessaire dans pour la spectroscopie moléculaire et la détection des substances nocives. Le verrouillage de modes est une technique adaptée aux structures QCL mais qui présente de grands défis d'optimisation et d'amélioration. Cela est dû au temps de recouvrement de gain rapide, de l'ordre de la picoseconde pour une structure à transition radiative verticale, comparé au temps d'un aller-retour de l'onde dans la cavité laser qui est de l'ordre de 20 à 60 ps pour une cavité de 1 à 3 mm de longueur. Ainsi, le gain peut saturer avant un aller-retour de l'impulsion dans la cavité laser ce qui peut induire la formation d'un mode continu ou la génération de plusieurs impulsions par aller-retour. La seule méthode efficace de verrouillage de modes dans la gamme de l'infrarouge moyen est jusqu'à présent la modulation de gain par injection active [3]. Avec cette technique, la cavité laser est divisée en deux sections dont une section courte est appliqué un signal radiofréquence (RF) et dans le reste de la section assure un milieu à gain sous polarisation continue. Le verrouillage de modes passif avec les techniques conventionnelles reste à démontrer pour la génération des impulsions ultra-brèves.

L'objectif de cette thèse porte sur l'étude de faisabilité du verrouillage de modes passif des QCLs moyen infrarouge en intégrant un absorbant saturable. Les QCLs ont un temps de relaxation rapide ce qui rend le verrouillage de modes avec des absorbants saturables semiconducteurs non efficace. Une solution proposée dans cette thèse réside dans l'utilisation des matériaux 2D ayant des propriétés équivalentes à un absorbant saturable rapide car leur temps de relaxation (retour à l'équilibre après absorption) est faible. L'absorbant visé est le graphène monocouche qui a été utilisé dans le verrouillage de modes de lasers à fibre optique, des lasers semiconducteurs et des QCLs THz. Cette étude est menée uniquement en simulation avec la mise en œuvre de la méthode des différences finies dans le domaine temporel (FDTD) pour déterminer la dynamique de l'interaction d'une impulsion optique avec un milieu non-linéaire. Cette interaction est décrite avec les équations de Maxwell-Bloch permettant de déterminer l'évolution de la propagation du champ électromagnétique d'un faisceau laser dans un milieu non-linéaire comme celui d'un laser. Le milieu amplificateur devient non-linéaire lorsque l'amplitude du champ optique augmente. La prise en compte des propriétés physiques de la couche de graphène, ayant une épaisseur à l'échelle atomique, avec les méthodes numériques adaptées est nécessaire dans l'analyse de la dynamique du verrouillage de modes des QCLs.

La thèse est composée de 4 chapitres. Nous commencerons par une description de quelques applications dans le moyen infrarouge et nous donnerons quelques sources lasers émettant dans ce domaine spectral. Ensuite, nous rappellerons le principe de fonctionnement des lasers à cascade quantique. La fin du chapitre sera réservée aux différentes techniques de verrouillage de modes pour la génération des impulsions ultra brèves et nous donnerons les méthodes appliquées aux QCLs.

Le deuxième chapitre sera consacré à la modélisation du QCL avec le modèle d'un atome à deux niveaux utilisant les équations de Maxwell-Bloch. Cette étude sera basée essentiellement sur les travaux de Ziolkowski *et al.* [4]. Cette étape permet de valider l'implémentation de la méthode FDTD de l'interaction du champ électromagnétique avec le milieu à gain de nature non-linéaire.

Le troisième chapitre décrira les résultats de simulation du verrouillage de modes du QCL à deux sections. Nous commencerons par la méthode de verrouillage de modes actif basé sur la structure étudiée par Wang *et al.* [3]-[5]. Nous observerons l'effet de trous dans le profil spatial de gain connu sous le nom SHB (Spatial Hole Burning). Ensuite, nous décrirons une méthode de verrouillage de modes passif dans une cavité à une section proposée par Talukder [6]. Dans cette structure, les couches de l'absorbant saturable et le milieu amplificateur sont entrelacés. Enfin, nous combinerons les deux méthodes pour simuler le verrouillage de modes hybride. Nous décrirons les résultats obtenus pour le verrouillage de modes avec des taux de pompage élevé grâce à l'effet de l'absorbant saturable qui favorise l'existence des fortes intensités et absorbe les faibles

intensités.

Le dernier chapitre exposera les solutions que nous apportons pour verrouillage de modes passif du QCL moyen infrarouge notamment à l'aide de l'utilisation d'une couche de graphène comme absorbant saturable. Dans un premier temps, nous présenterons d'abord une structure simplifiée du verrouillage de modes passif basé sur l'effet de la transparence auto-induite. Cette étude sera réalisée dans l'objectif de remplacer l'effet de la transparence auto-induite par l'absorbant saturable d'une couche de graphène. Ensuite, nous décrirons l'effet de l'intégration d'une couche de graphème au niveau de la facette du QCL jouant le rôle d'un absorbant saturable. Comme l'épaisseur de la couche de graphène est de 0.33 nm, nous présenterons les méthodes de simulation choisies pour cette modélisation combinée à une résolution par la méthode FDTD. Nous terminerons ce chapitre par les résultats obtenus avec un miroir de forte réflectivité intégrant le graphène qui joue le rôle d'une structure d'absorbant saturable.

A la fin de ces chapitres, nous donnerons une conclusion générale de ce travail et présenterons quelques perspectives.

Chapitre 1

Techniques de verrouillage de modes des lasers à cascade quantique

Dans ce chapitre, nous présenterons les différentes applications dans le moyen infrarouge et les différentes sources de lasers couvrant ce domaine spectral. Ensuite, nous décrierons brièvement le principe de fonctionnement des lasers à cascade quantique. La fin du chapitre sera consacrée aux techniques de verrouillage de modes appliquées à ces lasers afin d'obtenir des impulsions lumineuses ultracourtes.

1.1 Introduction

Le spectre électromagnétique infrarouge a été découvert par l'astronome britannique Sir William Herschel en 1800 [7]. Dans une expérience visant à mesurer les températures de différentes couleurs du spectre visible, il a placé des thermomètres sur le trajet de la lumière dans chaque couleur. Il a remarqué une augmentation de la température du bleu au rouge et il a mesuré des températures plus chaudes au delà de l'extrémité du spectre visible. Ce n'est qu'un siècle plus tard que le physicien allemand Max Planck proposa un modèle pour le rayonnement du corps noir donnant naissance à la mécanique quantique.

Le rayonnement infrarouge est situé dans le domaine des longueurs d'onde supérieures à 700 nm entre le spectre visible et le spectre des micro-ondes. Il s'étend de 0,7 μ m à 500 μ m (figure 1.1) et n'est pas perceptible par l'œil humain. Il se divise en trois sous domaines à savoir l'infrarouge proche qui s'étend de 0,7 à 2,5 μ m, l'infrarouge moyen dans l'intervalle 2,5 – 20 μ m et qui peut être subdivisé en deux régions, de 2,5 – 8 μ m et la région des empreintes digitales de (8 – 20 μ m), et l'infrarouge lointain 20 – 500 μ m. Les applications dans la fenêtre spectrale de l'infrarouge sont nombreuses comme par exemple les télécommunications optiques à 800, 1310 et 1550 nm dans le proche infrarouge, la spectroscopie dans le moyen infrarouge et l'astronomie dans le lointain infrarouge.



FIGURE 1.1 – Spectre électromagnétique (Lumenistics, 2012)

1.2 Les applications dans le moyen infrarouge

Le spectre du moyen infrarouge est dans la gamme des longueurs d'onde comprises entre 2,5 et 20 μ m. Cette fenêtre spectrale offre diverses applications et nous pouvons en citer trois importantes.

1.2.1 Spectroscopie moyen infrarouge

Le moyen infrarouge est l'une des fenêtres spectrales qui présente un fort intérêt pour la spectroscopie moléculaire. Son principe consiste en l'étude de l'absorption et/ou de l'émission de la lumière par la matière en fonction de la longueur d'onde du rayonnement. L'exemple représenté sur la figure 1.2 décrit la signature d'absorption de quelques molécules dans la fenêtre spectrale 2 - 11 μ m. La détection de gaz comme le méthane CH₄, le monoxyde de carbone CO, l'acétylène C₂H₂ et le dioxyde de carbone CO₂ est très exploitée avec des sources QCLs [8]. Une autre utilisation est dans le domaine biomédical comme la mesure de la concentration cutanée de glucose, le niveau de glycémie dans le sang et le liquide interstitiel dans la peau [9].



FIGURE 1.2 – Spectre d'absorption des molécules dans le moyen infrarouge [10].

1.2.2 Communication en espace libre

Le système de communication optique en espace libre est une technique de communication sans fil qui utilise la lumière pour transmettre des données. Il s'est développé pour répondre au besoin de la croissance des systèmes de communication à haut débit comme les systèmes de télécommunications, la visioconférence et les réseaux informatiques. Ce type de communication utilise la gamme du moyen infrarouge parce que l'atmosphère est transparente à ces longueurs d'onde puisque les hydrométéores n'absorbent pas les ondes électromagnétiques dans cette gamme de longueur d'ondes entre 3 à 5 μ m et 8 à 10 μ m. La transmission des données est de 10 à 100 fois plus élevée avec seulement 1% de la zone d'ouverture des émetteurs par rapport à un système de communication radiofréquence garantissant une transmission très directive [11]. La figure 1.3 décrit les différentes potentialités de systèmes de communication en espace libre à savoir terrestre, terre-satellite, satellite-objet volant, etc.



FIGURE 1.3 – Infrastructures de communication optique en espace libre [11]

1.2.3 Sécurité et défense

Le spectre infrarouge est l'un des spectres qui intéresse les chercheurs dans le domaine de la sécurité et défense. Dans la gamme du moyen infrarouge, de nombreuses applications ont émergé comme la détection d'un lancement de missiles grâce à des détecteurs de rayonnement infrarouge ce qui permettra d'alerter les pilotes d'une potentielle menace [12]. Un autre exemple concerne un système de contre-mesure optique décrit sur la figure 1.4 dont le principe consiste à utiliser un laser pour aveugler le guidage laser des missiles.



FIGURE 1.4 – Système de contre-mesure optique.

1.3 Sources lasers dans le moyen infrarouge

Une source laser est basée sur le principe de l'émission stimulée pour laquelle l'émission de photons est induite par relaxation des électrons entre deux transitions énergétiques dans une cavité. Ce principe a été introduit par Einstein en 1917. Le premier laser a été démontré expérimentalement par Theodore Maiman en 1960 [13]. La première démonstration d'un laser moyen infrarouge a était réalisée en 1963. Il consistait en une source basée sur une jonction PN et émettant à 3,1 μ m mais qui fonctionnent uniquement à des températures cryogéniques. Depuis lors, le laser moyen infrarouge à fait un progrès considérable. La figure 1.5 montre les différents types de laser fonctionnant dans ce domaine spectral. Les lasers à gaz comme le laser CO_2 ou CO sont des sources typiques dans le moyen infrarouge mais leur longueur d'onde d'émission est fixe. Ces sources lasers sont utilisées dans les applications industrielles tels que la découpe et le soudage. Historiquement, c'est la technique de l'accord de phase par biréfringence (BPM, Birefringent Phase-Matching) qui a été la plus efficace. Mais depuis les années 90, c'est la technique de l'accord de phase (QPM, Quasi-Phase Matching) qui a permis d'obtenir des rendements de conversion plus élevée. L'intérêt aussi de cette technique est la possibilité de l'accordabilité en longueur d'onde. Ainsi, les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) et les sources de différences de fréquence (DFS) ont eu un considérable gain d'intérêt. Ces dernières années, le progrès technologique a permis de concevoir des sources lasers à base d'une succession de puits quantiques. Les principales caractéristiques se résument en trois points suivants :

- fonctionnement à température ambiante;
- longueur d'onde d'émission largement accordable;
- puissance optique d'émission très élevée.

Cependant, la grande faiblesse de ces sources réside dans la difficulté de réaliser un verrouillage de modes avec les méthodes classiques à cause du faible recouvrement temporel de gain [14], [15].



FIGURE 1.5 – Différents lasers émettent dans l'infrarouge moyen [16]

1.3.1 Lasers à cascade quantique

Le laser à cascade quantique ou en anglais Quantum Cascade Laser (QCL), est un dispositif unipolaire dans lequel les transitions radiatives se font dans la même bande d'énergie entre deux niveaux quantiques comme indiqué sur la figure 1.6 dans la bande de conduction. Ces transitions sont dites intrabandes contrairement aux transitions interbandes qui ont lieu entre les électrons de la bande de conduction et les trous de la bande de valence d'un matériau semiconducteur. Ces transitions intrabandes sont obtenues par ingénierie des matériaux. Un QCL est formé par une alternance de puits quantiques formant une région active et de puits quantiques formant une région d'injection. Cela permet d'avoir une grande flexibilité en longueur d'onde d'émission

sur une large plage, avec la possibilité de fixer la fréquence d'émission sans changer les matériaux semiconducteurs mais simplement en modifiant les largeurs des puits quantiques, et par conséquent, l'écart d'énergie entre les états électroniques. Ainsi, les performances des QCLs sont moins sensibles aux changements de température que les lasers interbandes les rendant insensible à l'effet Auger [2]. Les transitions radiatives, fixant la durée de vie des porteurs, sont très rapides comparées aux lasers à semiconducteurs, ce qui limite considérablement le gain pour une puissance de pompage donnée [16].



FIGURE 1.6 – Schéma simplifié de puits quantiques dans une bande de conduction.

Les premiers travaux sur la transition intrabandes ont été publiés en 1971 par Kazarinov et Suris [1] dans lequel les hétérostructures sont alignées sous l'effet d'un champ électrique dans un super réseau de telle sorte que l'état fondamental d'un puits quantique est situé juste en dessous de l'état excité du puits quantique suivant. Cependant, les limitations technologiques en microélectronique à cette époque n'ont pas permis une réalisation et démonstration expérimentale. Le laser à cascade quantique n'a été réalisé que 23 ans plus tard en 1994 au sein du laboratoire Bell [17]. Il est composé de 25 régions actives couplées avec des régions d'injection. Cette structure a été réalisée avec la technique d'épitaxie par jets moléculaires (MBE : Molecular Beam Epitaxy) [18] avec les matériaux Al_{0.48}In_{0.52}As/In_{0.53}Ga_{0.47}As/InP. Les caractéristiques de ce QCL sont : une longueur d'onde d'émission de 4,2 μ m, un fonctionnement en mode pulsé à une température maximale de 90 K, une puissance optique supérieure à 8 mW et une efficacité inférieure à 0,15 %. La région active consiste en une succession de 3 puits

quantiques dans lesquels la transition laser se produit entre les deux états d'énergie supérieurs (3 et 2) et le faible écart d'énergie entre l'état énergétique 2 et l'état 1 permet l'injection rapide des électrons vers la période suivante. Le fonctionnement en onde continue à des températures allant jusqu'à 320 K a été réalisé en 1996 à la longueur d'onde de 5.2 μ m [19]. Un an plus tard, le fonctionnement monomode a été obtenu par un QCL à rétroaction répartie (Distributed Feedback QCL) à des longueurs d'onde de 5.2 μ m et 8 μ m avec une puissance optique de 60 mW à 300 K [20]. En 1998, Sirtori et al. réalisaient un QCL basé sur les matériaux $Al_{0.33}Ga_{0.67}As/GaAs$ fonctionnant à des températures entre 77 K et 140 K [21]. La longueur d'onde d'émission est de 9.4 μ m et la puissance optique crête est supérieure à 70 mW. Cette combinaison de matériaux permet d'obtenir une hétérostructure de meilleure qualité cristalline et une mobilité des électrons élevée qui atteint rapidement des performances comparables à celle obtenue avec un matériau massif de très bonne qualité. Dans la même année, Faist *et al.* ont également démontré une structure de QCL émettant à des longueurs d'onde courtes (3,4 μ m) en utilisant une structure InGaAs/AlInAs sur InP [22]. Le premier QCL émettant à des longueurs d'onde supérieures à 20 μ m a été démontré en 2001 [23] en mode pulsé jusqu'à une température de 140 K et une puissance optique crête de quelques milliwatts. En 2002, un QCL fonctionnant en régime pulsé et continu à température ambiante et émettant à 9,1 μ m a été démontré [24].

Ces dernières années, le QCL a observé une amélioration considérable dans la gamme du moyen infrarouge. Désormais, le fonctionnement à température ambiante est possible soit en régime pulsé ou continu avec une efficacité de conversion atteignant des valeurs très élevées comme par exemple une valeur de 29.3% en mode pulsé et 22% en mode continu avec une puissance de sortie de 5.6 W [25]. Les sources QCLs monomodes à spectre étroit ont été aussi développées permettant d'ouvrir l'accès à des mesures spectrales de précision des signatures d'absorption des espèces chimiques et molécules dans le moyen infrarouge. Contrairement aux lasers classiques à cavité Fabry-Pérot, les QCLs peuvent avoir un spectre monomode et un spectre multimode en fonction des propriétés non linéaires présentées par le guide et le matériau utilisé. Nous reviendrons sur ces propriétés dans les sections suivantes.

1.3.2 Structures de laser à cascade quantique

Un puits quantique est constitué d'une succession de couches de matériaux semiconducteurs très fines. L'association de plusieurs puits quantiques en cascade, par l'intermédiaire d'un réseau de transition, permet de réaliser un laser à cascade quantique [26]. Le schéma synoptique des puits quantiques et de la structure du QCL sont représentés sur la figure 1.7. La mise en cascade permet de recycler les électrons d'une zone d'émission à une autre. Dans ce cas, un électron pourra émettre autant de photons que le nombre de zones d'émission. La transition laser se fait au niveau de la zone d'émission et les électrons sont injectés dans d'autres zones d'émission à travers les zones d'injection.

Chaque période du laser est composée d'une région d'émission (ou active) et d'une région de transport (injection). Chacune de ces régions comporte des puits quantiques mis en cascade. Pour le QCL inventé par Faist *et al.* en 1994, la structure laser se composait de 25 périodes avec le système de matériaux en AlInAs/GaInAs [17].



FIGURE 1.7 – Laser à cascade quantique : structure et périodes.

1.3.3 Zone d'émission

La zone d'émission se compose d'un ou plusieurs puits quantiques dans lequel ou lesquels se produisent des transitions radiatives [27]. C'est dans cette région que les électrons, injectés de la zone d'injection précédente sur le niveau excité sont désexcités par émission radiative sur le niveau inférieur. Diverses structures de la zone d'émission ont été développées : puits quantique, super-réseau et transition Bound-to-Continuum [26].

• Zone d'émission à puits quantique

La zone d'émission à puits quantique est basée sur un système à trois niveaux d'énergie de transition radiative verticale. Elle est composée de trois puits quantiques asymétriques, voire seulement deux, permettant de fournir ces trois niveaux d'énergie $(E_1, E_2 \text{ et } E_3)$ comme représenté sur la figure 1.8.a. Les transitions radiatives sont situées entre les deux niveaux E_3 et E_2 et ce sont les largeurs du premier et du second puits quantiques qui déterminent la longueur d'onde. La transition des électrons du niveau E_2 au niveau E_1 est déterminée également par l'épaisseur de ces deux couches. Ainsi, le nombre de configurations possibles est relativement réduit car cette transition doit rester en résonance avec un photon longitudinal. Le temps de relaxation non radiative τ_{21} est faible devant le taux de relaxation radiative τ_{32} . L'inversion de population est réalisée dans cette structure avec une valeur faible induisant un gain non optimal. Il s'agit de la structure qui a été utilisée pour la fabrication du premier QCL [17].

Afin d'améliorer les performances des QCLs et notamment leur comportement en température, des régions actives présentant deux phonons optiques résonants ont été proposées. La population thermique du niveau bas de la transition est considérablement diminuée. Cela est réalisé à l'aide de super-réseau de puits quantiques qui pourrait être classés en deux catégories.

Zone d'émission à super-réseau à gradient

La conception du super-réseau à gradient (chirped superlattice) est basée sur une succession de puits quantiques de plus en plus larges. Ce qui permet de compenser les effets du champ électrique favorisant l'obtention d'une mini-bande aplatie. Les transitions radiatives se font entre des bandes d'énergie séparées par un mini gap comme représenté sur la figure 1.8.b. La fréquence du laser est donc déterminée par la hauteur du mini gap. L'inversion de population est très efficace, les électrons injectés près du bas de la mini-bande supérieure effectuent une transition radiative rapide vers le haut de la mini-bande inférieure. Avec cette technique, le gain du QCL est élevé car l'élément de matrice dipolaire est très grand et grâce à la relaxation non radiative rapide dans la mini-bande inférieure et ce même à haute température. Dans [28], Scamarcio a réalisé le premier QCL basé sur une zone d'émission à super-réseau émettant à 8 μ m avec une puissance de 0,8 W à 80 K et 0,2 W à 200 K, l'élément de la matrice dipolaire est égal à 3,6 nm.

• Zone d'émission à transition Bound-to-Continuum

Dans cette seconde structure Bound-to-Continuum ou liée-continuum, une mini-bande formée par un super-réseau est utilisée pour dépeupler le niveau inférieur de la transition radiative. Par contre, contrairement à la zone d'émission du super-réseau à gradient, la fonction d'onde de l'électron du niveau d'énergie supérieur est localisée dans les premiers puits. Cela est obtenu par l'insertion d'un puits quantique étroit en début de la région active. Le couplage entre le niveau de l'injecteur et le niveau supérieur de la transition optique est efficace. Cette région a été développée par Faist *et al.* en 2001 [29] et est décrite sur la figure 1.8.c. Cette dernière est largement exploitée dans la réalisation du QCL fonctionnant en régime continu et à forte puissance optique [30].



FIGURE 1.8 – Diagramme schématique de zone d'émission à (a) puits quantique, (b) super-réseau et (c) transition Bound-to-Continuum.

1.3.4 Zone d'injection

Cette zone permet l'acheminement des électrons, en présentant des niveaux d'énergie nécessaires, d'une région d'émission à la région suivante. Elle se présente comme une barrière de potentiel pour injecter les électrons vers la zone d'émission suivante et une barrière d'extraction des électrons depuis la région d'émission précédente. La figure 1.9 illustre un exemple de la zone d'injection ou injecteur.



FIGURE 1.9 – Zone d'injection.

Pour aligner les bandes d'énergie des différentes périodes et permettre le déplacement des électrons entre les différentes régions d'émission, un champ électrique est appliqué à la structure. Lorsque l'alignement est atteint au courant de seuil, l'émission laser se met en place. La figure 1.10 donne un exemple d'une région active et d'une région de transport selon la structure de Bound-to-Continuum. Les fonctions d'onde des électrons sont représentées sous un champ électrique de 33 $\left[\frac{kV}{cm}\right]$ à une température de 303 K [31].



FIGURE 1.10 – Structure de bandes de la région active [31].

1.4 Fabrication de lasers à cascade quantique

Le laser à cascade quantique consiste en une succession de couches quantiques ultra fines. La fabrication du premier QCL a été réalisée avec la méthode d'épitaxie par jets moléculaires (MBE, Molecular Beam Epitaxy) en raison de la limitation technologique de l'époque [17], [32]. La méthode MBE est une technique utilisée pour la croissance des couches minces de divers matériaux quantiques semiconducteurs, métaux ou isolants par des dépôts physiques. La première démonstration de cette technique a été réalisée en 1975 par Cho [33]. Dans une chambre MBE, la vitesse d'épitaxie est généralement entre 0,5 et 1 μ m par heure [34]. Une autre technique de croissance plus rapide brevetée en 1993 est la méthode de dépôt organo-métallique chimique en phase vapeur (MOCVD, Metalo-Organic Chemical vapor) [35]. Cette technique permet de synthétiser des couches minces de matériaux complexes avec un contrôle très maîtrisé de la vitesse de croissance et la qualité cristalline. Son principe repose sur l'utilisation d'une micro-vanne à commande électronique pour le transport d'espèces chimiques sous forme gazeuse. Les éléments nécessaires à la croissance sont transportées par des précurseurs constitués d'organo-métalliques ou d'hydrures. Ces précurseurs sont dilués dans un gaz vecteur, du dihydrogène purifié H_2 , afin d'être transportés vers le réacteur où la croissance CVD a lieu sur un substrat chauffé. Cette méthode possède un taux de dépôt de l'ordre de 5 μ m par heure [36]. La MOCVD n'utilise pas une chambre d'ultravide à haute pression nécessitant un bâti particulier capable de supporter de fortes contraintes mécaniques. Elle offre également la possibilité de faire croître plusieurs substrats en même temps. En 2003, Rober *et al.* réalisent un QCL avec la technique MOCVD [35].

La figure 1.11 illustre les principales étapes de fabrication de QCLs de type *Ridge* waveguide [37]. Dans cet exemple, la croissance de la région active sur un substrat InP dopé n est réalisée par MBE afin d'obtenir une qualité cristalline de la région active de très bonne qualité. Cette première étape de fabrication est décrite en (a). Les autres couches de revêtements et isolantes sont réalisées avec la méthode MOCVD. L'échantillon est donc transféré vers le bâti MOCVD pour faire croître une couche de revêtement en InP dopé n (b) qui jouera le rôle de guidage de lumière. Une couche de SiO_2 est ensuite déposée pour les étapes de gravures (c) par dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD, Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition). La délimitation du guide en vue de la gravure est ensuite réalisée grâce à une couche de photorésine mince et une photolithographie ultra violet. La structuration des guides d'ondes laser est donc définie dans (d). Le motif est transféré sur la couche SiO_2 avec l'utilisation de la graveur ionique (RIE, Reactive Ion Etching) par l'alliage chimique de Ar/CHF_3 (e). Une étape de nettoyage de résidus est réalisée (f) avec le procédé de plasma O_2 . L'étape de gravure de la couche de revêtement dans (g) suivie par la gravure de la région active (h) sont réalisées avec des techniques adaptées. L'obtention des flancs verticaux du guide est recherchée. Une fois l'étape de gravure terminée, on procède à l'étape de suppression de la couche de masque par gravure HF et ensuite une couche d'isolation est ajoutée par PECVD (i). Cette couche est importante et permet de diminuer les pertes dans cette configuration. Les matériaux utilisés sont le SiO_2 ou SiNen fonction de la longueur d'onde. La lithographie optique et la gravure ionique réactive sont utilisées afin de réaliser une ouverture dans la couche isolante au niveau du guide (j). Un contact ohmique est déposé sur l'ouverture par la technique de lift-off (k). Il s'agit de la combinaison Ti/Pt/Au avec des épaisseurs 5 nm/40 nm/100 nm. Des plots d'or sont ensuite déposés au dessus de la structure (m). Enfin, le substrat est réduit à

150 μ m d'épaisseur par polissage mécanique afin de réduire la résistance thermique et cette étape se termine par le dépôt d'un contact ohmique sur la face arrière (n).



FIGURE 1.11 – Étapes de fabrication de lasers à cascade quantique [37].

1.5 Principe du verrouillage de modes

1.5.1 Principe général

La génération des impulsions ultra-courtes est basée sur le confinement de l'énergie dans une cavité dans une région spatialement petite. Ce fonctionnement est induit à partir d'un matériau absorbant saturable passif qui permet de bloquer/libérer rapidement l'énergie circulant dans une cavité laser. Deux modes de fonctionnement sont exploités :

 Mode déclenché ou Q-Switching : stockage et libération rapide de l'énergie dans la cavité. La durée des impulsions est généralement supérieure à 1 ns. Blocage ou verrouillage de modes : synchroniser plusieurs modes longitudinaux de la cavité laser. Les impulsions générées ont une durée inférieures à 100 ps voire de la femtoseconde.

Le verrouillage de modes est une technique qui requiert certaine forme de la modulation d'amplitude appliquée au rayonnement laser. En mode CW, les impulsions sont très courtes comparées au taux de répétition déterminé par la longueur de la cavité (de quelques MHz à quelques centaines de GHz). Typiquement, c'est la modulation des pertes intracavité qui est exploitée afin de collecter la puissance laser en forme d'impulsions très courtes et de forte intensité autour du minimum de la modulation des pertes avec une période égale au temps d'un aller/retour dans la cavité ($T_R = 2L/v_g$) où L est la longueur de la cavité et v_g est la vitesse de groupe. Ainsi, les modes longitudinaux de la source laser à travers cette modulation sont corrélés en phase. Plus le nombre de modes longitudinaux en phase est élevé et plus l'intensité des impulsions générées est importante. La figure 1.12 décrit ce principe basé sur les interférences constructives où l'intensité des impulsions augmente en fonction du nombre de modes en phase.



FIGURE 1.12 – Intensité des impulsions en fonction des modes longitudinaux en phase.

Dans le domaine fréquentiel, le verrouillage de modes se traduit par un peigne de fréquence verrouillé en phase avec un écart constant entre chaque composante et égale à l'inverse de la période des impulsions. La largeur spectrale de l'enveloppe de ce peigne de fréquence est inversement proportionnelle à la durée de l'impulsion. La figure 1.13 représente un peigne de fréquences dont la phase est identique pour l'ensemble des modes. De ce spectre, on peut comprendre d'une manière simple que l'énergie d'une émission large bande d'un mode longitudinal, décrite par l'enveloppe sur la figure, est transférée sur les modes adjacents par la modulation des pertes. Cette modulation est adaptée à la fréquence d'un aller/retour de la cavité. Le résultat est un peigne de fréquence avec des modes longitudinaux verrouillés en phase formant une impulsion courte dans le domaine temporel.



FIGURE 1.13 – Peigne de fréquence et phase des modes longitudinaux [38].

Afin d'obtenir un train d'impulsions courtes dans un laser, il est nécessaire de varier les pertes ou un autre paramètre physique par l'intermédiaire d'un contrôle externe [39]. La structure du laser est représenté sur la figure 1.14. Par contre, il est aussi possible que les modes se verrouillent par eux-mêmes pour former des impulsions, ce qui est appelé self-pulsing [40]. La première technique de verrouillage de modes de laser a été proposée dans les années 1960. Depuis, un net progrès a été obtenu sur ces dernières grâce au développement des procédés technologiques. Le verrouillage de modes se décline en deux catégories à savoir le verrouillage actif et passif. Il peut y avoir aussi une modulation du gain de la cavité laser par un autre laser impulsion et créer une inversion de population dans un temps court.

Pour le verrouillage de mode actif, un signal électrique est appliqué à un modulateur permettant de contrôler ses pertes. Typiquement, les modulateurs à effets acoustooptiques [41] ou électro-optiques [42] sont utilisés pour contrôler périodiquement les pertes dans la cavité. Lorsque le signal appliqué est sinusoïdal (RF) de période égale au temps d'un aller-retour dans la cavité laser, les pertes du modulateur sont modulées avec



FIGURE 1.14 – Structure de la cavité laser pour le verrouillage de modes [38].

la même période. A l'état stationnaire, la saturation du gain supporte, ainsi que le gain net autour du minimum de la modulation des pertes, rendant les largeurs d'impulsions plus courtes que la durée d'un aller/retour dans la cavité. La figure 1.15 illustre ce principe de génération d'impulsions. Lorsque le gain saturé dans la cavité est supérieur aux pertes, une impulsion est générée dont sa durée est inversement proportionnelle à la largeur du spectre du gain. Le taux de répétition des impulsions est imposé par la longueur de la cavité.

Pour le verrouillage de modes passif, un absorbant saturable est utilisé pour produire une auto-modulation de l'amplitude de la lumière dans la cavité laser. Un tel absorbant induit des pertes aux faibles radiations lasers qui sont relativement élevées pour les faibles intensités mais significativement faibles pour les fortes intensités. Ainsi, une impulsion courte induit une modulation des pertes de l'absorbant parce que la forte intensité du pic de l'impulsion sature l'absorbant plus fortement que les faibles intensités de l'impulsion (l'intensité des ailes). Certains absorbants saturables peuvent moduler les pertes intracavité plus rapidement qu'un modulateur électro-optique et permettent d'obtenir des impulsions ultracourte. La figure 1.15 décrit un exemple dans lequel les pertes sont auto-modulées et avec le gain qui reste constant.

Les mécanismes du verrouillage de mode passif se déclinent en trois principaux modèles :

 absorbant saturable lent et une saturation dynamique du gain [43]. La dynamique du gain est causée par l'impulsion et ensuite récupère sa valeur initiale avant la


FIGURE 1.15 – Variation des pertes pour le verrouillage de modes actif et passif [38].

prochaine impulsion.

- absorbant saturable rapide sans saturation dynamique du gain [44].
- absorbant saturable lent sans saturation dynamique du gain [45].

Dans les deux premiers modèles, une fenêtre d'un gain net très courte permet la génération et le maintien de l'impulsion. Sur la figure 1.16.a, le gain net est formé par la combinaison de la saturation de l'absorbant et du gain. L'absorbant sature et revient plus rapidement que le gain à sa valeur initiale. Le temps de récupération (ou recover time) de l'absorbant peut être plus lent que la largeur de l'impulsion générée. Dans les lasers solides, ce cas de figure ne peut pas se produire vue que le temps de relaxation des porteurs à l'état excité est de l'ordre du μ s au ms. Ainsi, la dynamique de la saturation de gain ne peut pas se mettre en place contrairement à un laser semiconducteur. Ce type de laser est plus favorable à une utilisation d'un absorbant saturable rapide qui s'apparente au verrouillage de modes avec l'effet de la lentille de Kerr. Le mécanisme de la figure 1.16.b décrit un absorbant saturable dit rapide pour lequel la saturation de l'absorption revient rapidement à son état initial et le la dynamique de la saturation

du gain est absente. Pour le mécanisme de la figure 1.16.c, un absorbant saturable lent peut être utilisé avec un milieu dont le gain net reste ouvert après la génération de l'impulsion courte. C'est un mécanisme présent avec une structure appelée miroir à semiconducteur ou SESAM (SEmiconductor Saturable Absorber Mirror). La génération d'une impulsion ultra-courte est due à l'absence d'une action de l'absorbant pour la mise en forme du front arrière de l'impulsion et on s'attend aussi à ce que le gain net déstabilise cette dernière.



FIGURE 1.16 – Mécanismes présents dans le verrouillage de modes passif.

1.5.2 Absorbant saturable

Un matériau absorbant saturable introduit des pertes optiques par absorption ce qui fait croître la transmission par saturation lorsqu'il est traversé par un rayonnement lumineux d'intensité suffisante. La figure 1.17 représente la courbe en transmission après normalisation des coefficients de Fresnel. Les propriétés les plus importantes sont décrites ci-dessous.

1.5.2.1 Profondeur de modulation

C'est la variation maximale de la transmission interne notée ΔT et exprimée en %. Cette transmission est débarrassée des pertes par réflexion de Fresnel sur les faces de l'échantillon et des pertes non-saturables. La profondeur de modulation exprime aussi



FIGURE 1.17 – Saturation de la transmission d'un absorbant saturable [46].

la variation maximale des pertes optiques et s'écrit :

$$\Delta T = 1e^{-\alpha_s l} \tag{1.1}$$

avec α_s le coefficient d'absorption du matériau à faible signal et l l'épaisseur du matériau.

1.5.2.2 Pertes non-saturables

Ce sont les pertes qui ne peuvent pas être saturées qui conduisent à un coefficient d'absorption linéaire noté α_{ns} (en cm^{-1}). Ces pertes peuvent se traduire en une entité en % en fonction de l'épaisseur de l'échantillon (α_{ns} l). La saturation des pertes sont dues à divers processus comme la diffusion, l'absorption dans l'état excité, l'absorption à deux photons, etc.

1.5.2.3 temps de relaxation

C'est le retour à l'équilibre de l'excitation électronique après le passage d'une impulsion. On parle aussi du temps de recombinaison qui doit être très court pour produire des impulsions ultra-courtes. Parfois, les impulsions sont plus courtes que le temps de relaxation dont la durée est déterminée par les dimensions de la cavité. Ainsi, à ce temps de relaxation se fait la référence la notion *d'absorbant lent ou rapide* comparé à la durée de l'impulsion. Un même matériau peut être considéré soit rapide ou lent par rapport à la durée de l'impulsion.

1.5.2.4 Intensité de saturation

L'intensité de saturation représente l'intensité nécessaire à la réduction de l'absorption interne, donc du coefficient d'absorption, à la moitié de sa valeur en régime non-saturé. L'intensité peut s'exprimer sous la forme :

$$I_{sat} = \frac{hc}{\lambda \,\sigma_{sa} \,\tau_A} \tag{1.2}$$

avec *h* la constante de Planck, λ la longueur d'onde optique, τ_A le temps de relaxation et σ_{sa} la section efficace de la transition électronique à la longueur d'onde optique. La relation entre les pertes optiques (hors pertes saturables) et la section efficace s'écrit $\alpha_s = \sigma_{sa} n_i$ où n_i est la densité de porteurs concernés par cette transition.

1.5.2.5 Fluence de saturation

La fluence est l'énergie optique par unité de surface $[J/cm^2]$ nécessaire à la réduction de l'absorption d'une quantité équivalent à 1/e de la profondeur de modulation. En d'autre terme, la transmission est augmentée de 37% de la profondeur de modulation. L'approximation de la fluence pour une profondeur de modulation n'excédant pas 15% est donnée par :

$$F_{p,sat} = \frac{hc}{\lambda \,\sigma_{sa}} \tag{1.3}$$

L'énergie de saturation est donnée par le produit de la fluence et l'aire moyenne du faisceau lumineux au niveau de l'absorbant saturable :

$$E_{p,sat} = F_{p,sat} A_{sa} \tag{1.4}$$

avec A_{sa} l'aire moyenne du faisceau lumineux traversant l'échantillon.

1.5.3 Modèles de l'absorption saturable

Les caractéristiques d'un absorbant saturable peut être déterminées expérimentalement. Le temps de relaxation et les pertes par absorption dans l'état excité sont déterminés par des techniques de type pompe-sonde. Pour l'absorption (ou transmission), la profondeur de modulation et les pertes non saturables sont déterminées par la technique de transmission/absorption différentielle ou la technique dite Z-scan.

La saturation de l'absorbant peut être décrite suivant l'équation différentielle suivante [47]

$$\frac{d\alpha(t)}{dt} = -\frac{\alpha(t) - \alpha_s}{\tau_A} - \frac{\alpha(t) P(t)}{E_{sat}}$$
(1.5)

où $\alpha(t)$ est le coefficient des pertes de l'amplitude saturable qui n'inclut pas les pertes non-saturables, P(t) est la puissance incidente sur l'absorbant. Cependant, cette expression devient non précise pour les fortes puissances à cause des autres effets nonlinéaires qui accompagnent l'absorption saturable comme l'absorption à deux photons, l'absorption des porteurs libres et des effet thermiques [48]. Il devient possible que l'absorbant dans ces conditions de fonctionnement est proche d'un dommage. Ainsi, il est souvent conseillé de se limiter à 3 à 5 fois la fluence de saturation.

1.5.4 Absorbant saturable rapide

Dans le cas d'un absorbant saturable rapide, le temps du retour des porteurs à l'équilibre est plus rapide que la durée de l'impulsion. En prenant $\tau_p \gg \tau_A$, on peut supposer que l'absorption instantanée suit l'absorption en fonction de la puissance P(t). L'équation 1.5 est réduite à :

$$0 = -\frac{\alpha(t) - \alpha_s}{\tau_A} - \frac{\alpha(t) P(t)}{E_{sat}}$$
(1.6)

La saturation de l'absorbant saturable s'écrit :

$$\alpha(t) = \frac{\alpha_s}{1 + \frac{I(t)}{I_{sat}}} \tag{1.7}$$

avec $P_{sat} = \frac{E_{sat}}{\tau_A}$ et le rapport de puissance est remplacé par le rapport des intensités. En régime linéaire, on peut approximer l'équation en posant $\gamma_A = \frac{\alpha_s}{I_{sat}}$ à :

$$\alpha(t) \approx \alpha_s - \gamma_A I(t) \tag{1.8}$$

Enfin, si le milieu absorbant présente des pertes non-saturable, le coefficient d'absorption s'écrit :

$$\alpha(t) = \frac{\alpha_s}{1 + \frac{I(t)}{I_{sat}}} + \alpha_{ns} \tag{1.9}$$

1.5.5 Absorbant saturable à semiconducteur

La structure électronique des semiconducteurs donne lieu à une forte interaction entre les porteurs excités (paires électrons-trous) sur des échelles de temps ultra-rapide. La dynamique de cette interaction est complexe et amène à différents régimes de temps dans l'évolution de cette interaction. Ces différents temps sont illustrés sur la figure 1.18 qui décrit le diagramme de dispersion de l'énergie d'un matériaux massif (type III-V). L'excitation optique avec une impulsion laser ultra-courte prépare le semiconducteur dans le régime cohérent décrit par le temps I. Dans ce régime, il existe une relation de phase bien définie entre les porteurs excités et le champ électrique de l'impulsion laser d'une part et d'autre part entre les porteurs excités eux-mêmes. Cette dernière donne lieu à la polarisation macroscopique prédite par la densité du moment dipolaire. L'amplitude et l'affaiblissement de cette polarisation donnent une information sur les propriétés du semiconducteur en régime cohérent. L'affaiblissement de la polarisation est dû aux processus de diffusion électron-électron et électron-phonon. Cela est décrit par un temps de relaxation transversal (dephasing time).

Après la perte de la cohérence, la dynamique des électrons-trous avec le retour à l'équilibre se fait suivant les temps II-IV :

— Les populations initiales des porteurs ne suivent pas la distribution de Fermi-Dirac après l'excitation. Une redistribution de l'énergie se met en place avec une thermalisation des porteurs. Cela se fait suivant le temps II décrit sur la figure pour les électrons et dont la collision est entre électron-électron. Le temps de thermalisation déterminé expérimentalement est d'environ 100 fs et dépend de



FIGURE 1.18 – Diagram de dispersion d'énergie dans un semiconducteur.

la concentration des porteurs, de leur type et de l'excès de l'énergie des photons absorbées par rapport à l'énergie du gap.

- Les électrons échangent ensuite l'énergie avec le réseau cristallin si leur énergie est plus importante. La thermalisation avec le réseau se fait par émission de phonons. Dans l'exemple de la figure précédente, les porteurs possèdent une énergie supérieure à celle du réseau et le processus de thermalisation est décrit par le temps III. Ce temps est de l'ordre du picoseconde à quelques 10^{ne} de picosecondes.
- La dernière étape est le retour à l'équilibre thermodynamique du semiconducteur excité par le processus de recombinaison des paires électron-trou. Cette recombinaison est montrée par la transition IV. Dans un semiconducteur de bonne qualité, cette recombinaison est radiative avec un temps de l'ordre d'une centaine de picosecondes.

Un autre processus rapide de la transition radiative est obtenu en présence des niveaux de pièges profonds. La transition vers ces niveaux peut se faire en sub-picosecondes ce qui permet d'avoir un retour plus rapide à l'équilibre.

Les différents régimes de temps de la dynamique des porteurs se chevauchent rendant la

description de la dynamique complexe. Cela induit à une auto-modulation de l'amplitude de l'absorption saturable du semiconducteur comme est montré sur la figure 1.19. Après l'absorption, la thermalisation est rapide (~ 100 fs) et la recombinaison par plus lente (~ 100 ps) mais peut être diminuée par l'implantation ionique des niveaux de pièges. Pour les applications de génération d'impulsion ultra-courte, l'absorbant saturable requiert un temps de retour à l'équilibre du picoseconde ou sub-picosecondes [49].



FIGURE 1.19 – Effet de la lentille Kerr sur le profil spatial du faisceau [38].

1.5.6 Structures miroirs - SESAM

Les structures à miroir absorbant saturable sont les dispositifs les plus utilisés pour le blocage de modes de la plupart des lasers à solide et à fibre [50]. Ces dispositifs sont des réseaux de Bragg à base d'empilement de couches minces d'indice de réfraction n_h et n_l alternativement haut et bas. Ce miroir recouvre un absorbant saturable et absorbe l'intensité laser de faible intensité à l'exception des pertes non-saturables lorsque l'intensité est suffisamment intense. C'est le matériau absorbant qui permet de réaliser cette fonctionnalité. Dans la filière GaAs, le réseau peut être formé par les empilements AlAs/GaAs avec un absorbant en InGaAs ou par les empilements AlGaAs/AlAs avec un absorbant en GaAs. L'exemple de la figure 1.20 illustre une configuration avec le second empilement qui peut s'étaler sur 25 périodes [51]. Sur cette figure est représentée deux types de structures : une dite résonante et une autre non-résonante. La différence entre ces deux structures réside dans l'ajout d'une couche $\frac{\lambda}{4n}$ afin de présenter une réflectivité constante dans la bande passante du réseau de Bragg. L'avantage avec une structure résonante est que l'intensité du champ électrique est plus élevée au niveau de l'absorbant. L'inconvénient des structures SESAM est leur utilisation dans une gamme spectrale bien précise, généralement en dessous de 1000 nm.



resonant SESAM:

FIGURE 1.20 – Structure miroir absorbant saturable à semiconducteur (SESAM).

1.5.7 Graphène comme absorbant saturable

Le graphène est un matériau monocristallin bidimensionnel qui se présente sous la forme d'une association d'hexagones de carbone [52]-[53]. Il est l'élément de base de feuilles de graphite qui sont les empilements de monocouches de graphène. La structure du graphène peut être vue comme un réseau cristallin triangulaire. Il est caractérisé par sa conductivité thermique extrêmement élevée qui peut atteindre 5,3 [kW.m⁻¹.K⁻¹]. C'est certes intéressant pour la diffusion de la chaleur et notamment dans les systèmes

lasers à impulsion brève de forte puissance moyenne. La structure de ses bandes d'énergie ne présente pas sous la forme de parabole mais sous la forme de deux cônes inversés comme est décrit sur la figure 1.21. Les bandes d'énergie se touchent à leurs extrémités et forment *les cônes de Dirac*. Cette structure électronique particulière confère au graphène des propriétés optiques très originales. La dispersion linéaire des états électroniques implique la possibilité de création des paires électron-trou en résonance avec n'importe quelle excitation optique. La relaxation de ces porteurs photo-générés s'effectue à l'intérieur de chaque bande par collision entre les porteurs (électron-électron et troutrou) et émission de phonons en un temps de l'ordre de 10 à 150 fs. Cela va induire un effet de goulot au niveau des bandes qui bloque tout processus d'absorption lorsque l'intensité de l'excitation croît. Ce processus est connu sous le nom de *blocage de Pauli* dans lequel deux porteurs ne peuvent occupée le même état électronique.

Le retour à l'équilibre se manifeste par le processus de recombinaison électron-trou en un temps inférieur à la picoseconde ce qui induit un effet de saturation à cause du mécanisme de blocage de l'absorption. Cette saturation rapide est mise à profit pour générer des impulsions ultra-brèves femtoseconde à n'importe quelle longueur d'onde. Le graphène a été utilisé comme absorbant saturable pour les lasers à fibre [54]-[55] et les lasers solides [56]-[57].



FIGURE 1.21 – Structure de la bande interdite du graphène [58].

L'absorption optique des couches de graphène dont l'épaisseur est d'environ 0.27 nm est proportionnelle au nombre de couches. La séparation entre les couches est d'environ 0.335 nm. La transmission est donnée par [59] :

$$T = (1+0, 5\pi \ \alpha_{FS})^{-2} \approx 1 - \pi \alpha_{FS}$$
(1.10)

avec $\alpha_{FS} = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0\hbar c} = \frac{1}{137}$ constant atomique dite *structure fine*.

L'absorption est donc égal à $1 - \pi \alpha_{FS} = 97,7\%$ ce qui représente une valeur très élevée. Pour une couche de silicium d'épaisseur identique, l'absorption est de 0,03 % à la longueur d'onde de 500 nm.

Pour un empilement de N couches de graphène sur un substrat de transmission T_s , la transmission totale est :

$$T \approx T_s \left(1 - N\pi \alpha_{FS}\right)^N \approx T_s \left(1 - N\pi \alpha_{FS}\right) \tag{1.11}$$

La transmission du graphène monocouche et multicouche mesurée à la longueur d'onde 1550 nm est représentée sur la figure 1.22. Le graphène monocouche, synthétisé avec différentes méthodes de fabrication, présente une profondeur de modulation de 65,9%, une intensité de saturation de 0,53 MW.cm⁻² et des pertes non-saturées de 3,2%. Pour 1-4 couches de graphène, le taux de modulation est de 42,7% et l'intensité de saturation de 0,77 MW.cm⁻². L'intensité de saturation augmente à 1,09 MW.cm⁻² pour 4-8 couches qui s'explique par les défauts induits par les pertes non-saturables et la diffusion.

L'absorption optique du graphène monocouche ou multicouche est indépendante de la longueur d'onde. Le profil de la transmission reste plat de l'infrarouge au moyen-infrarouge $0, 7 - 12 \ \mu m$ [61].

La fabrication du graphène peut être réalisée avec différentes techniques comme :

- Exfoliation micromécanique ou en phase liquide LPE (Liquid-Phase-Exfoliation) [62] : technique très simple avec un coût très faible.
- Ablation laser ou PLD pour pulsed laser deposition.
- Dépôt chimique en phase vapeur ou CVD chemical vapor deposition à partir



FIGURE 1.22 – Transmission du graphène à la longueur d'onde 1500 nm [60].

d'un gaz carboné comme le méthane ou l'éthylène.

Concernant l'intégration du graphène dans une cavité laser, différentes techniques ont été utilisées appropriées à un dépôt de couche mince. Le dépôt se fait sur un substrat transparent qui est ensuite inséré dans la cavité perpendiculairement à l'axe du laser. Le dépôt peut être mis directement sur le milieu à gain ou sur l'une des facettes du laser.

1.5.8 Effets non-linéaires

1.5.8.1 Effet Kerr

L'effet Kerr consiste en une variation localisée du troisième ordre de l'indice de réfraction d'un milieu sous l'effet du champ électrique de fortes intensités. La polarisation ne suit pas une variation proportionnelle avec le champ électrique. La variation de l'indice de réfraction est proportionnelle à l'intensité de la lumière appliquée suivant l'expression (1.12). Cet effet est extrêmement rapide avec un temps de réponse de quelques femtosecondes et est mieux observé dans les matériaux appelés milieux Kerr comme les cristaux et les verres [63]. Observées en 1991 pour le verrouillage de mode d'un laser Ti : saphir [64]. C'est une technique efficace qui a permis d'obtenir des impulsions de 60 fs de largeur. C'est d'ailleurs la technique qui permet d'obtenir des largeurs faibles lorsqu'elle est combinée avec des méthodes de compensation de dispersion à l'aide de miroirs spécifiques à réseau de Bragg [65]. La réponse ultra-rapide et la grande bande passante des non-linéarités Kerr sont très attractives pour le processus de verrouillage de mode ne nécessite pas d'absorbant saturable visible. Cependant, le processus de verrouillage de modes ne démarre pas seul et un alignement critique de la cavité laser est requis pour la génération d'impulsions stables. Ainsi, la cavité laser est optimisée pour avoir un meilleur effet Kerr au détriment d'une meilleure efficacité et puissance de sortie.

$$n(I) = n_0 + n_2 I \tag{1.12}$$

où n_0 est l'indice de réfraction linéaire du milieu, n_2 est l'indice de réfraction non linéaire et I est l'intensité lumineuse. L'effet Kerr dépend de l'intensité et se présente sous un mode longitudinal et un mode transverse.

L'effet Kerr longitudinal retarde le centre de l'impulsion optique tout au long de l'axe produisant un décalage vers le rouge (grande longueur d'onde) de la partie avant de l'impulsion et vers le bleu (petite longueur d'onde) de la partie arrière. En d'autre terme, l'indice de réfraction est plus élevé dans le bleu que dans le rouge et on parle de dispersion positive. Les composantes spectrales vont se propager à des vitesses différentes, accumulant chacune une phase différente. L'impulsion va avoir tendance à s'élargir à la traversée de ce milieu dans la cavité et l'impulsion va accumuler de la dispersion de vitesse de groupe (ou GVD, Group Velocity Dispersion) à chaque aller et retour. La partie *rouge* de l'impulsion sera en retard par rapport à la partie *bleue* et ce qui provoque une dérive de la fréquence (chirp).

L'effet Kerr longitudinal dans le domaine temporel se présente par une auto-modulation de phase (SPM, Self-Phase Modulation) comme est décrit sur la figure 1.23b. La variation de l'indice de réfraction dépendant du temps ce qui fait que l'effet Kerr agit également sur le comportement temporel de l'impulsion. En effet, la fréquence instantanée $\omega(t) = \frac{\delta \phi(t)}{\delta t}$ est proportionnelle à la variation de l'intensité $\frac{\delta I(t)}{\delta t}$ à travers la variation de l'indice de réfraction. Cela va entraîner un changement d'indice instantané par effet Kerr et donc une variation de la phase. D'un autre coté, autour du maximum de l'intensité de l'impulsion, la fréquence varie linéairement et l'auto-modulation de phase se comporte comme un chirp effectif de même signe que celui de n_2 . Une illustration est décrite sur la figure 1.23b. Dans le cas où le signe de n_2 est négatif, l'excursion de la fréquence $\delta \omega = \omega_{max} - \omega_{min}$ conduit à un enrichissement du spectre de part la génération de nouvelles fréquences dépendantes du temps (dérive de fréquence).



FIGURE 1.23 - (a) Effet Kerr transverse sur une impulsion et (b) variation temporelle de la fréquence [66].

L'effet Kerr longitudinal peut être utilisé pour produire un phénomène identique à celui d'un absorbant saturable. Pour le réaliser, l'auto-modulation de phase non-linéaire est transférée en une non-linéarité effective d'amplitude. Des cavités couplées sont nécessaires pour la production de cet effet.

L'effet Kerr transverse retarde le centre et la partie la plus intense de l'impulsion et agit comme une lentille, ce qui donne le nom de lentille de Kerr [67]. Il produit aussi un effet similaire à celui d'un absorbant saturable. Afin d'illustrer l'effet de lentille Kerr, la figure 1.24 schématise la modification du profil spatial d'un faisceau lumineux en fonction de l'intensité du faisceau.



FIGURE 1.24 – Effet de la lentille Kerr sur le profil spatial du faisceau [38].

Un rayonnement de faible intensité pénétrant le milieu avec un angle θ_e , aura un angle de divergence θ_s au lieu de l'angle formé par les traits discontinus. Par contre, pour une forte intensité et une variation positive de n_2 (signe positif) alors le milieu se comporte comme une lentille convergente qui modifie le profil spatial de l'onde. Ainsi, les fortes intensités sont focalisées d'une manière plus importante. Combiné à une ouverture intracavité (fente) comme décrit sur la figure, cet effet présente moins de pertes aux fortes intensités et forme un absorbant saturable rapide effectif. Les ondes continues, qui auront un chemin direct, seront fortement atténuées par cette fente. Cependant, un effet similaire peut être obtenu sans fente quand la lentille Kerr permet d'améliorer le recouvrement du mode laser avec le profil de pompage dans le milieu à gain [68]. Aussi, l'effet de lentille Kerr est plus avantageux pour le mode impulsionnel quand le laser fonctionne proche de la limite de la stabilité. Cependant, l'effet Kerr transverse couple totalement le processus de verrouillage de modes avec le mode de la cavité laser. En revanche, l'utilisation de l'effet Kerr longitudinal seul dans le verrouillage de modes découple ce processus de verrouillage du mode laser. Cela permet une conception optimale de la cavité pour mettre à l'échelle le laser à des puissances plus élevées et à des taux de répétition d'impulsions plus élevés sans être contraint par la lentille Kerr.

1.5.8.2 Dispersion de la vitesse de groupe

Comme nous venons de le décrire, la dispersion de la vitesse de groupe où GVD dépend de la longueur d'onde. La GVD est définie comme la dérivée de la vitesse de groupe inverse par rapport à la fréquence donnée par $\text{GVD} = \frac{\partial}{\partial \omega} \left(\frac{1}{v_g}\right) == \frac{\partial k}{\partial \omega} \left(\frac{\partial k}{\partial \omega}\right) = \left(\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}\right)$. La GVD provoque un élargissement de l'impulsion et une modification de ses caractéristiques temporelles à cause de la variation des vitesses de déplacement de différentes composantes de fréquence de l'impulsion. La figure 1.25 illustre cet effet sur impulsion traversant un milieu de longueur L. Ainsi, la génération des impulsions lumineuses ultra brèves est fortement compromise d'autant plus qu'elles sont plus sensibles à l'effet de GVD.



FIGURE 1.25 – Propagation d'une impulsion dans un milieu dispersif [66].

Le champ électrique est relié à la variation de la phase $\Phi(\omega) = k_n(\omega)n(\omega)L$ par la relation suivante :

$$\phi(\omega) = \phi_0 + (\omega - \omega_0) \left[\frac{d\phi(\omega)}{d\omega} \right]_{\omega_0} + \frac{1}{2} (\omega - \omega_0)^2 \left[\frac{d^2 \phi(\omega)}{d\omega^2} \right]_{\omega_0}$$
(1.13)

Le premier terme de la phase représente la phase absolue qui donne un retard de phase, le second concerne le temps de propagation de groupe ou le retard de groupe donné par $\tau_g(\omega) = \left[\frac{d\phi(\omega)}{d\omega}\right]$. Le dernier terme représente la dispersion du temps de groupe. L'effet sur la propagation d'une impulsion très brèves est décrit sur la figure 1.26 où l'impulsion s'élargit pour une dispersion positive. La durée de l'impulsion après élargissement en fonction de la largeur initiale est :

$$\tau = \tau_p \sqrt{1 + \left(\frac{4\ln 2}{\tau_p^2} \frac{d^2 \phi(\omega)}{d\omega^2}\right)^2}$$
(1.14)



FIGURE 1.26 – Propagation d'une impulsion dans un milieu dispersif.

Pour diminuer cet effet, il faut introduire des composants optiques tel qu'un prisme intracavité qui fournissent une GVD réglable et de signe opposé à celui présenté par le milieu intracavité [69]. Un exemple est donné dans [70] où l'effet de GVD dans un laser solide (Ti : Saphir) est compensé par des lignes à retard constituées de séquences à deux ou quatre prismes. Avec un prisme, le chemin de la couleur "bleue" est plus rapide que le chemin de la couleur "rouge" ce qui permet de compenser la GVD. Il est aussi possible d'utiliser un réseau de dispersion ou les guides d'ondes eux-mêmes.

1.5.8.3 Transparence auto-induite

La transparence auto-induite (SIT) est un effet optique non-linéaire dans lequel une impulsion étroite ayant une énergie supérieure à une valeur critique, de largeur τ_p inférieure au temps de relaxation longitudinal, peut traverser un milieu optique comme s'il était transparent. Par contre, en dessous de cette énergie critique, l'impulsion est absorbée [71] [72]. Le SIT conditionne la forme de l'impulsion avec un profil de type secant-hyperbolique avec une énergie et largeur bien définies. Ces impulsions sont connues sous le nom d'impulsion 2π . Kozlov [73] a souligné l'importance d'inclure un milieu absorbant, dans laquelle une impulsion 2π interagit avec le milieu absorbant, et une impulsion π avec le milieu amplificateur. La figure 1.27 décrit la nature des transitions dans un milieu à gain avec une transition radiative du niveau excité 2g au niveau fondamental 1g et dans un milieu absorbant d'impulsion 2π avec une absorption du niveau 1a vers le niveau 2a et une émission radiative de 2a vers 1a. Le flux des électrons est aussi reporté sur cette figure afin d'illustrer le transport électronique. Cette combinaison d'un milieu à gain et un milieu absorbant a été validée expérimentalement par Arkhipov [74] dans ces travaux sur le verrouillage de modes d'un laser Ti :saphir avec une cellule au rubidium intracavité comme milieu absorbant. Cet absorbant joue le rôle d'un absorbant saturable qui permet de supprimer la formation des ondes continues et l'instabilité Risken-Nummedal-Graham-Haken (RNGH).



FIGURE 1.27 – Schéma d'une structure résonante à deux niveaux dans un milieu (a) à gain et (b) absorbant [75]

La théorie des milieux résonants à deux niveaux précise que l'impulsion π ou 2π jouent un rôle très important [76]. L'impulsion π est une impulsion dont l'énergie permet exactement d'inverser la population du milieu à deux niveaux d'énergie qu'ils

soient initialement inversés ou non. Dans le cas où ces niveaux sont inversés, l'impulsion est amplifiée comme montré sur la figure 1.28.a et dans le second cas l'impulsion est complètement absorbé. La fréquence de l'impulsion est approximativement égale à la moitié de la fréquence de Rabi (cette fréquence sera définie dans le prochain chapitre). La période de Rabi représente le temps pour inverser complètement une population initiale à l'état fondamental et le retour à l'équilibre de cette population de l'état excité). Si la durée de l'impulsion est supérieure au temps requis pour inverser complètement la population du niveau supérieur au niveau inférieur alors ce milieu amplifie une partie de l'impulsion et absorbe le reste. Dans ce cas de figure 1.28.b, l'impulsion est réduite. Dans le cas où l'impulsion est plus courte alors cette dernière est allongée. Ainsi, ce type d'impulsion peut induire l'effet de SIT sous les conditions décrites dans [77].



FIGURE 1.28 – Champ électrique et inversion de population dans le milieu (a) à gain et (b) absorbant [78].

Cependant, ces impulsions ne sont pas compatibles avec le verrouillage de modes pour la simple raison qu'il n'y a aucune garantie que les ondes continues ne se forment pas et la génération de plusieurs impulsions par période de la cavité. L'impulsion 2π est donc plus adaptée afin de s'affranchir de cette instabilité. Cela est réalisé en combinant un milieu à gain avec une impulsion 2π et un milieu absorbant avec une impulsion π . Une impulsion 2π avec une énergie suffisante vient inverser la population d'un milieu à deux niveaux, initialement non inversé, et ensuite la remettre à son état initial en une durée d'environ égale à la période de la fréquence de Rabi. Cela est décrit sur la figure 1.28.b. C'est cette propriété qui rend la propagation de l'impulsion dans un tel milieu sans pertes en la réduisant ou en l'élargissant en fonction de sa durée initiale. Ainsi, le milieu absorbant agit comme un milieu à pertes saturables dans le cas d'un dispositif à verrouillage de modes classique supprimant l'existence des ondes continues.

1.5.8.4 Instabilité RNGH (Risken-Nummedal-Graham-Haken)

Un mécanisme cohérent fondamental qui peut déstabiliser le fonctionnement d'un laser multimode a été mis en évidence par quatre scientifiques Risken et Nummedal [79]-[80] et Graham et Haken [81] ce qui a donné le nom à l'instabilité RNGH. Cette instabilité est présente aussi dans les sources lasers monomodes dont les premières observations ont été constatées. Un tel phénomène cohérent ne peut être observé que si la polarisation P est entraînée plus rapidement ou voire du même ordre de grandeur que le temps de cohérence T_2 . Elle est liée aussi à l'excitation d'oscillations couplées et rapides de la polarisation et l'inversion de population Δ [82].

L'instabilité RNGH se manifeste par l'apparition d'un spectre optique divisé en deux groupes de modes avec une séparation entre les deux maximum de la bande égale à la fréquence de Rabi. Ce phénomène se produit lorsqu'un seuil est atteint et qui décrit par le second niveau seuil du laser. En dessous de ce seuil, le mode optique est intégralement contrôlé par la cavité laser et au-delà c'est la polarisation macroscopique ou cohérence du milieu qui a un rôle majeur sur le champ électrique optique dans la cavité laser.

L'instabilité RNGH a été initialement observé dans une cavité résonante externe ayant un gain homogène. Dans ce type de cavité unidirectionnel, ce type d'observation n'était pas prévisible et les équations de continuité ne prédisait pas ce phénomène mais nécessite de considérer la polarisation du milieu. Mais à forte puissance d'émission, les fluctuations de la puissance peuvent devenir instables. Le fort champ dans la cavité modifie le profil de gain de telle sorte que les composantes du champ désaccordent la fréquence laser en imprégnant une modification du profil de gain. Ce couplage paramétrique du champ électrique fort qui donne la formation à cette double bande latérale de gain est intrinsèque à tous les lasers. Le seuil de l'instabilité a été estimé à environ 9 fois le seuil laser pour que l'instabilité multimode apparaisse. Par contre, d'autres expériences sur des lasers à colorant ont révélé un seuil d'instabilité de 1,2 fois le seuil laser [83]. La fréquence de séparation entre les deux lobes principales du spectre multimode était proche de la fréquence de Rabi et il augmentent avec le pompage (sachant que la fréquence de Rabi est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique dans la cavité). D'autres travaux ont décrit la formation d'une auto-pulsation dans l'émission laser à fibre dopé Er^{3+} [84] et Nd :YAG [85] attribué à un verrouillage de modes. Néanmoins, ces démonstration, ainsi que d'autres, restaient fragiles, à cause des conditions de fonctionnement proche du premier seuil du laser.

1.5.8.5 Spatial hole burning

Le spatial hole burning est un mécanisme physique qui permet de basculer un laser d'un régime monomode en un régime multimode. Cet effet est observable dans une cavité de type Fabry Perot lié à une contre propagation de faisceaux lasers formant des ondes stationnaires. Ces ondes impriment un profil particulier dans l'inversion de population tout au long de la cavité ce qui provoque une saturation de gain durant un aller-retour de l'impulsion en raison du temps de relaxation rapide du gain. Le fonctionnement monomode devient plus difficile à atteindre à cause de cette saturation du gain induisant un fonction en mode continu ou la génération de plusieurs impulsions par un aller-retour.

1.6 Verrouillage de modes dans les QCLs

Pour les QCLs, la génération d'un train d'impulsions reste un grand défi à cause de la faible durée de vie des porteurs dans l'état excité devant le temps de propagation d'un aller-retour des photons dans la cavité ce qui induit un très faible recouvrement temporel de gain [86]. Les techniques de verrouillage de modes passif conventionnelles ne permettent pas la formation d'impulsions brèves de hautes intensités. En effet, si le temps de recouvrement du gain est plus long que le temps d'un aller-retour dans la cavité laser, dans ce cas une impulsion qui se propage sature le gain ce qui évitera la formation d'autres impulsions. Si le temps de recouvrement est court comparé au temps d'un aller-retour dans la cavité, de multiples impulsions peuvent se propager espacées par le temps de recouvrement du gain. Si, par contre, le temps de recouvrement de gain est très court par rapport à la durée de l'impulsion, le gain agit instantanément sur l'intensité de l'impulsion. Dans ce cas, le maximum de l'intensité de l'impulsion sature le gain et les ailes de l'impulsion ayant une plus intensité rencontre plus de gain parce que la saturation n'est pas assurée. Ce qui induit à l'élargissement de l'impulsion et la suppression des fluctuations de l'intensité (pic de l'intensité). Le verrouillage de modes est ainsi supprimé ce qui favorise un fonctionnement en mode continu (CM) et c'est la situation qui est prédominante dans les QCLs.

A l'heure actuelle, le verrouillage de modes actif est la technique la plus efficace pour les QCLs moyen infrarouge. Le verrouillage de modes passif reste difficile à obtenir avec ces techniques conventionnelles. Cependant, il peut être réalisé en exploitant des effets non-linéaires des matériaux utilisés tels que l'effet de lentille Kerr et la transparence auto-induite [87]. Ces effets sont des cas limites de l'absorption saturable. L'utilisation d'un absorbant saturable conventionnel tel qu'un miroir semiconducteur absorbant saturable n'est pas possible car il sature lentement. Une solution a été proposée dans la gamme de THz en combinant le graphène avec un SESAM [88]. La dernière méthode de verrouillage de modes est une méthode hybride qui combine les deux méthodes.

1.6.1 Verrouillage de modes actif

L'une des méthodes utilisées pour générer des impulsions lumineuses courtes est le verrouillage en modes actif. Dans [49], le verrouillage de modes actif est obtenu par la technique de modulation du gain en imposant au courant une modulation sinusoïdale de fréquence égale à la fréquence de résonance de la cavité laser. L'injection de ce signal permet de moduler les pertes et ainsi de synchroniser les phase des modes longitudinaux. Il est aussi possible d'injecter un signal optique externe [89] ce qui nécessite un réseau d'injection.

Pour l'injection électrique, la cavité laser est comme dans le cas des lasers à semiconducteur, divisée en deux sections de dimensions très contrastées. Une section courte utilisée comme un modulateur électro-optique [3] et une section plus longue assurant le gain laser. La configuration est décrite sur la figure 1.29 dans laquelle une séparation métallique est présente entre les deux sections. En pratique, la section courte est entre 120 à 260 μ m et la section longue d'environ 2 à 3 mm.

Le verrouillage de modes actif est sensible à l'effet de SHB à cause du temps de



FIGURE 1.29 – Structure QCL à deux sections (© D. Darson CNRS/ENS).

recouvrement de gain. Cet effet est dû à la formation des ondes stationnaires dans la cavité laser dans laquelle les ventres et noeuds formés induisent des vallées dans le profil spatial de gain. L'émission stimulée à ces endroits n'est pas assurée [90]. Il est nécessaire d'avoir un QCL avec un temps de recouvrement de gain équivalent au temps d'un aller-retour dans la cavité. Pour cela, un QCL avec une transition diagonale a été favorisé pour cette démonstration. Wang *et al.* [3], ont étudié un tel laser pour le verrouillage de modes actif. La structure utilisé est similaire à celle décrite dans [91] à l'exception de quelques ajustements dans les épaisseurs de la zone active. Cette dernière est décrite sur la figure suivante :



FIGURE 1.30 – Hétérostructure $Al_{0.48}In_{0.52}As/Ga_{0.47}In_{0.53}As$ du QCL. Les épaisseurs sont données en nm et le dopage en cm⁻³ [91].

Plusieurs travaux sur le verrouillage de modes actif ont été réalisés. Nous citons celui

de Wang *et al.* [3] dans lequel une structure à transition diagonale a été développée. Le QCL possède une topologie type *ridge waveguide* de longueur 2,6 mm, la section courte a été estimée entre 120 et 160 μ m. La largeur du ruban du guide est de 16 μ m et 12 μ m, un courant de seuil de 310

mathrmmA et une longueur d'onde d'émission de 6, 2 μ m. En polarisant la structure avec un taux de pompge de 1,1 avec une application d'un signal RF autour de 17,8 GHz, le spectre du QCL est multimode. Afin d'assurer la présence d'une seule impulsion par un aller-retour, une mesure d'autocorrélation interférométrique du second ordre a été utilisée [92]. Cette mesure est basée sur un interferromètre Michelson et un photodétecteur à deux photons QWIP (Quantum Well Infrared Photodetector). Les résultats montrent une sensibilité au courant d'injection et à l'amplitude du signal RF appliqué. Ces conditions sont aussi dépendantes de la largeur du guide du QCL. Nous reviendrons sur ces résultats dans le chapitre 3.

Dans [93], un QCL à cavité externe a été utilisé pour la génération d'impulsions ultra-brèves. Le QCL est de 4,5 mm de long, le guide est enterré ou *buried* waveguide, de largeur 9 μ m et ayant des couches anti-reflet sur les deux facettes. La longueur d'onde d'émission est de 5,25 μ m et la longueur total de la cavité laser est de 3,8 m. Le QCL a été modulé avec une fréquence de 80,7 MHz ou avec une fréquence harmonique jusqu'à environ 403 MHz. Il a été montré une génération d'impulsions isolées avec un taux de pompage allant de 1,01 à 1,7 fois le courant de seuil. Cependant, la limitation expérimentale a permis de mesurer des largeurs des impulsions de 3 – 4 ns au lieu de 75 ps. Les puissances crêtes sont de quelques centaines de Watts. Le réseau de diffraction permet de varier la longueur d'onde centrale sauf que la réponse spectrale n'est pas uniforme. Etant donné que la cavité est bidirectionnel, l'effet de SHB apparaît au delà d'un pompage de 1,7 fois le courant de seuil.



FIGURE 1.31 – QCL MIR à cavité externe. BS : séparation de faisceau, MCT : détecteur, DG : réseau de diffraction, L : lentille asphérique, M : Miroir [93]

1.6.2 Verrouillage de modes passif

Le verrouillage de modes passif [94] dans les QCLs exploite les propriétés non linéaires de la cavité comme la transparence auto-induite, l'effet Kerr ou éventuellement l'utilisation d'un absorbant saturable qui fait varier les pertes du résonateur en fonction de l'intensité lumineuse qui le traverse. Il est aussi possible que le rôle de l'absorbant saturable réside dans le renforcement des effets non linéaires [49], [44].

L'absorbant saturable est un matériau opaque qui permet d'absorber les faibles intensités lumineuses et laisser les fortes intensités se propager [49]-[95]. Le verrouillage de modes passif des lasers ayant un temps de relaxation rapide comme le cas du QCL est difficile à réaliser avec des absorbants saturables conventionnels comme le SESAM. Des solutions ont été proposées comme l'utilisation du graphène, MoS_2 ou d'autres matériaux de réseau cristallin hexagonal 2D dans les QCLs THz.

Dans [86] et [87], les auteurs ont clairement expliqué l'effet de l'instabilité RNGH dans les QCLs Fabry-Pérot sur le verrouillage de modes. Cette observation a été visualisée sur les structures de type guide d'onde *ridge* et une hétérostructure de type *buried*. Le seuil de l'instabilité RNGH est ramené de 9 à 1,1 fois le seuil laser. Le rôle du spatial hole burning dans la diminution de ce seuil a été discuté dans ces travaux. Cependant, la modification spatial de la population n'était pas le seul effet responsable de ces observations mais une autre explication mentionne la présence d'un effet d'absorbant saturable, causé par l'effet de lentille Kerr assez important dans le cas d'un guide *ridge* étroit dans lequel le recouvrement du profil de mode interagit avec le contact métallique. Par contre, la production d'un effet d'absorbant saturable dans le cas d'un guide *buried* ne devrait pas être significative. Une mesure d'autocorrélation interférométrique d'ordre 2 a révélé la génération d'une impulsion par aller-retour. Nous reviendrons sur ces résultats dans le chapitre 3.



FIGURE 1.32 – Seuil de l'instabilité laser en fonction du coefficient d'absorption saturable [87].

L'instabilité RNGH a été observée dans d'autres QCLs comme ceux décrits [96], [82] et [97]. Par contre, un autre modèle expliquant la valeur faible du seuil de l'instabilité sans la considération de l'absorption saturable a été présenté dans [98]. La conclusion porte sur une combinaison de la cohérence et la formation d'un réseau de population au sein de la cavité Fabry-Perot. Cette combinaison est par contre étroitement liée à la longueur de cavité. L'effet RNGH intervient par intermittence dans une cavité longue et est systématiquement présent dans une courte cavité typiquement de 100 μm ou inférieure. La différence avec les résultats du modèle précédent dans lequel le coefficient d'absorption saturable est le principale responsable du faible seuil de l'instabilité RNGH concerne l'introduction de l'effet lié à l'onde stationnaire dans la cavité et la formation d'un réseau de population. D'autre part, la diffusion de la cohérence est prise en compte. Ces résultats montrent aussi une diminution du seuil de l'instabilité en fonction de ces paramètres.

La figure 1.33 montre les résultats de mesure du spectre d'émission de QCLs émettant à 8 μ m mettant en évidence l'instabilité RNGH en présence d'un milieu ayant une absorption saturable. Il est clairement montré que l'effet multimode est plus important avec une largeur de cavité de 10 μ m comme est illustré sur la figure 1.33.a. L'écart entre les deux centres des bandes latérales du spectre augmente en fonction du courant d'injection. Ceci est décrit par la fréquence de Rabi qui augmente avec le champ électrique. Pour une largeur de 15 μ m, l'effet RNGH n'est pas significatif et la séparation du spectre n'a pas lieu.



FIGURE 1.33 – Spectre d'émission mesuré d'un QCl en guide d'onde *ridge* émettant à $\lambda = 8 \ \mu m$ pour différents taux de pompage et une largeur de (a) 10 $\ \mu m$ à 200 K et (b) 15 $\ \mu m$ à 300 K [87].

L'effet Kerr dans le QCL peut être attribué au gain net dans la structure lorsque les pertes des miroirs sont compensées après une fois que le seuil laser atteint. La forte intensité dans la cavité induit un autofocus du mode transverse induisant à une augmentation du gain net dans le guide. Le confinement optique au niveau du guide permet une diminution des pertes par propagation. Lorsque l'intensité dans la cavité est élevée, l'effet de lentille Kerr est conséquent ce qui forme un absorbant saturable dépendant de l'intensité. Dans [87], le terme n_2 de l'expression 1.12 a été estimé à $2 \ 10^{-8} \ cm^2.W^{-1}$ dans une hétérostructure *buried*. La raison d'une telle valeur dans les QCLs réside dans la contribution des états de zone d'injection dans les parties réelle et imaginaire de χ^3 . Cela a permis de déterminer un coefficient d'absorption saturable entre 2 10^{-9} à 1,1 10^{-9} cm.V⁻² pour des largeurs de la région active de 3 à 10 μ m. Pour le guide d'onde *ridge*, les pertes sur les parois latérales avec le contact métallique induisent un renforcement de l'absorption saturable. Ce qui peut expliquer l'absence de l'effet du spatial hole burning dans ces structures.

La dispersion de la vitesse de groupe a été aussi analysée en présence de l'absorption non linéaire dans [99]. La GVD provient également des transitions inter sous-bandes des QCLs. La mesure de la GVD a été reportée dans [100] des QCLs moven infrarouge. Une technique de conversion rapide a été utilisée en mesurant la dépendance en longueur d'onde du retard de propagation de l'impulsion générée. Les résultats obtenus avec un QCL en InGaAs/InAlAs émettant à 5 μ m ont montré une valeur de GVD du coefficient $\beta_2\approx -4,6~10^{-6}~{\rm ps}^2.\mu{\rm m}^{-1}.$ En reprenant ces valeurs et la même structure que celle utilisée pour l'étude du RNGH [87], ces travaux ont montré que la présence de la GVD altère l'influence de l'absorbant saturable sur la stabilité du champ électrique. Une augmentation du coefficient d'absorption saturable peut conduire à une meilleure stabilité de l'amplitude lorsque la GVD est présente. Inversement, un coefficient d'absorption saturable fort augmente l'instabilité en abaissant le seuil d'instabilité lorsque la GVD est absent. Ainsi, avec un coefficient d'absorption saturable fort, l'influence de la GVD est faible. Le taux de pompage a un effet également sur la stabilité de l'amplitude du champ électrique en présence de la GVD. Pour un faible taux d'injection, la GVD tend à déstabiliser la stabilité de l'amplitude contrairement à un taux d'injection fort où l'absorbant saturable supprime l'effet de la GVD.

Un autre effet non linéaire exploité dans le verrouillage de modes des QCLs moyen infrarouge concerne le self-induced transparency. Le temps de relaxation rapide du QCL le place en position favorable à l'exploitation de cet effet [78]. Dans ces travaux, l'effet du SIT a été analysé dans un QCL moyen infrarouge en présence de l'effet non linéaire d'absorption saturable et la dispersion de vitesse de groupe. Comme dans le cas de l'effet RNGH, l'amplitude de l'impulsion et sa largeur sont fortement affectées par la présence de ces deux effets. Par contre, afin d'obtenir l'effet de la transparence auto-induite dans les QCLs, il est nécessaire d'avoir une structure de gain spécifique. Sur la figure 1.34 est décrit une configuration avec un entrelacement entre une région de gain et une région d'absorption. Cette structure contient une période d'absorption pour 4 périodes de gain ce qui correspond au cas d'une densité des électrons dans la région de gain de 4 fois supérieure la densité des électrons dans l'absorbant. L'épaisseur de la période de l'absorbant est de deux fois l'épaisseur de la période du gain qui est une condition nécessaire pour obtenir l'effet de la transparence auto-induite. Nous revenons sur cette condition au chapitre 3. Un exemple des couches de gain et d'absorption et leur épaisseur est donné en annexe A.



FIGURE 1.34 – Schéma synoptique du QCL avec les régions de gain et d'absorption [75].

Le QCL avec l'effet de la transparence auto-induite ne peut pas auto-démarrer et nécessite d'injecter une impulsion de type sécant hyperbolique de largeur $T_p < T_2$ [4] ou une injection d'un signal RF. En effet, la transparence auto-induite se manifeste sous des conditions spécifiques d'amplitude et de largeur ce qui rend son intérêt pratique moins attractif. Mais récemment dans [101], une étude sur l'auto-démarrage du laser a été décrit sur une configuration à deux sections. Une section à gain et une autre d'absorption saturable dans une cavité en anneau. Les conditions suivantes sont énoncées :

D'un autre coté, l'effet de la GVD est significatif sur le verrouillage de modes des QCLs. Dans [78] est décrit que la largeur de l'impulsion est affectée par la valeur du coefficient de dispersion β_2 . L'intensité lumineuse maximale obtenue est de 43 fs de largeur avec $|\beta_2| = 0 \text{ ps}^2/\text{m}$ et augmente jusqu'à 432 fs lorsque la valeur de $|\beta_2| = 80 \text{ ps}^2/\text{m}$. Cela s'accompagne par une diminution de l'intensité lumineuse d'un facteur 10.

1.6.3 Verrouillage de modes hybride

Le verrouillage de modes hybride est la combinaison des deux techniques de verrouillage de modes actif et passif [102]-[103]. Le verrouillage de modes actif génère des impulsions plus larges que le verrouillage de modes passif, il nécessite un modulateur optique pour varier les pertes dans la cavité laser avec généralement une puissance importante limitant ainsi l'efficacité. Dans le verrouillage de modes passif, un absorbant saturable est utilisé à la place du modulateur optique et les impulsions sont généralement plus courtes. Le verrouillage de modes hybride utilise à la fois une modulation de gain et de l'absorption saturable simultanément. Il est ainsi possible d'obtenir des impulsions isolées, d'énergie relativement élevée et plus stable [104].

1.7 Étude proposée

L'objectif principale de cette thèse concerne l'étude de faisabilité du verrouillage de modes passif de QCLs moyen infrarouge en intégrant une couche de graphène comme absorbant saturable. La configuration classique à deux sections représentée sur la figure 1.35 n'est pas compatible avec les propriétés physiques du QCL pour un verrouillage de modes passifs. L'idée ici est de placer le graphène à l'emplacement de la section d'absorbant saturable polarisée généralement en inverse.

Les propriétés optiques et électriques du graphène l'ont propulsé comme le matériau le plus intéressant à étudier dans le domaine du verrouillage de modes de différents types de sources radiatives. Son utilisation comme absorbant saturable dans les QCLs moyen infrarouge à transition verticale reste à démontrer car le temps de relaxation des porteurs à l'état excité est très rapide contrairement aux lasers à semiconducteurs conventionnels. L'étude que nous proposons est dans cette perspective afin de déterminer les leviers sur les paramètres physiques et les intensités du champ optique au sein d'une cavité laser. L'avantage du graphène est qu'il présente une faible intensité de saturation comparé aux autres absorbants saturables. Il est toutefois nécessaire d'évaluer l'intensité du champ électrique pour pouvoir utiliser le graphène. Pou cela, nous avons modélisé le QCL avec l'approximation de l'atome à deux niveaux et l'interaction onde-matière déterminée avec les équations de Maxwell-Bloch. La résolution de ces équations est réalisée avec la méthode FDTD et l'intégration d'une couche de graphène reste le point principal à considérer.



FIGURE 1.35 – Structure de verrouillage de modes de QCL à deux sections.

A cet objectif principal, nous avons repris le verrouillage de modes passif avec l'effet SIT et nous avons proposé une architecture simplifiée.

1.8 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons rappelé le spectre infrarouge moyen et donné quelques applications dans cette gamme spectrale. Nous avons présenté les sources lasers qui fonctionnent dans le moyen infrarouge et nous avons décrit le laser à cascade quantique. Les techniques de verrouillage de modes ont été ensuite présentées tout en décrivant les difficultés à les transposer aux QCLs. La fin de ce chapitre a été consacrée à des exemples de verrouillage de modes de QCLs dans le moyen infrarouge pour la génération d'impulsions lumineuses ultra brèves et la description de l'apport de cette thèse pour ces dispositifs.

Chapitre 2

Modélisation de la dynamique des QCLs avec les équations de Maxwell-Bloch

Dans ce chapitre, nous allons présenter le modèle du laser à cascade quantique développé avec les équations de Maxwell-Bloch. L'utilisation de ce modèle simplifié est largement exploité, d'une manière générale dans les structures oscillantes, car l'émission laser est effectuée par les transitions radiatives entre deux niveaux d'énergie. Les autres états énergétiques des QCLs sont utilisés pour le transport des électrons entre les différentes périodes du QCL. Ainsi, il est suffisant, pour décrire l'émission laser, de ne considérer que deux niveaux énergétiques. L'équation de Maxwell-Bloch, décrivant les processus physiques au sein du laser est résolue par la méthode de différence finie dans le domaine temporel (FDTD).

2.1 Équations de Bloch

L'interaction d'un champ électrique ou magnétique avec la matière peut être ramenée au cas simple d'un atome à deux niveaux d'énergie et ce malgré le nombre important d'états énergétiques constituant les milieux solides. En effet, comme l'émission laser est liée à une transition entre deux niveaux d'énergie, la considération physique de ces niveaux dans la description du processus est suffisante. D'une façon similaire, le pompage d'un laser peut être décrit d'un point de vue phénoménologique par un processus de relaxation entre un niveau d'énergie supérieure et un niveau d'énergie inférieure. Ainsi, l'évolution de l'état des électrons dans la matière est décrite par les équations de Bloch à travers l'Hamiltonien du système [105]

2.1.1 Hamiltonien et interaction d'énergie dans un atome

L'Hamiltonien est un opérateur quantique qui décrit la somme de l'énergie cinétique et de l'énergie potentielle [105]. Il est donné dans le cas d'un atome et en présence d'un champ électrique par :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_I \tag{2.1}$$

où \hat{H}_0 est l'Hamiltonien de l'atome isolé indépendant du temps et \hat{H}_I est l'Hamiltonien en présence du champ électrique rectiligne $\vec{E}(y,t) = \tilde{E}(t)\cos(\omega t - ky)\vec{z}$ se propageant suivant l'axe y. L'orientation vectorielle de ce champ électrique est choisie suivant l'axe z. L'amplitude de ce champ $|\tilde{E}|$ varie lentement avec sa position et le terme de phase (ky) varie plus rapidement avec sa position. Étant donné que les dimensions de l'atome sont très petites devant la longueur d'onde aux fréquences considérées, le terme de phase peut être négligé. L'approximation d'un champ uniforme sur le volume de l'atome peut être considérée.

L'évolution temporelle du système est déterminée par l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d}{dt}|\psi(t)\rangle = \hat{H}|\psi(t)\rangle$$
 (2.2)

où $\hat{H}|\psi(t)\rangle$ est la fonction d'onde des électrons de l'atome. La mise en équation de l'Hamiltonien se fait sous l'hypothèse que l'interaction ne met en jeu que deux niveaux d'énergie de l'atome, référencées par E_b et E_a , et qui sont respectivement le premier niveau excité (b) et l'état fondamental (a) de l'atome (figure 2.1). La différence entre l'énergie de ces deux niveaux est donnée par :

$$E_b - E_a = h\nu_{ba} = \frac{h\omega_{ba}}{2\pi} = \hbar\omega_{ba} \tag{2.3}$$

où ω_{ba} est la pulsation d'émission ou la pulsation de Bohr, h est le constante de Planck et \hbar est la constante de Planck réduite.

Le niveau d'énergie E_b (i.e. E_a) correspond à un seul état d'énergie de l'atome défini par la fonction d'onde $|\psi_b\rangle$ (i.e. $|\psi_a\rangle$). Ces deux fonctions d'onde représentent donc les seules fonctions (vecteurs propres) du Hamiltonien \hat{H}_0 en l'absence du champ électrique. Pour simplifier les expressions, nous prendrons la condition $E_b = -E_a$ pour les états d'énergie de l'atome à deux niveaux et donc le niveau où l'énergie est nulle se situe au milieu de ces deux niveaux [106]. Ainsi, nous pouvons écrire à partir de (2.3) :

$$E_b = \frac{\hbar\omega_{ba}}{2}$$

$$E_a = -\frac{\hbar\omega_{ba}}{2}$$
(2.4)

L'Hamiltonien pour un atome à deux niveaux s'écrit donc :

$$\hat{H}_0 = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} -\hbar\omega_{ba} & 0\\ 0 & \hbar\omega_{ba} \end{bmatrix}$$
(2.5)



FIGURE 2.1 – Etats d'énergie d'un atome à 2 niveaux

L'Hamiltonien d'interaction \hat{H}_I se déduit de l'énergie classique d'interaction, notée en général W, en remplaçant ses composantes par des opérateurs quantiques. Dans la détermination de l'énergie d'interaction d'un champ électrique uniforme avec un atome, le terme prépondérant est le moment dipolaire électrique tel que :

$$W = -\overrightarrow{p} \bullet \overrightarrow{E} = -\left(\sum_{n} q_{i} \overrightarrow{r}_{i}\right) \bullet \overrightarrow{E}$$
(2.6)

où \overrightarrow{p} est un opérateur atomique ou vecteur du moment dipolaire électrique, q_i sont les charges électriques de l'atome et \overrightarrow{r}_i la distance de la charge q_i à l'origine choisie au centre du noyau. Dans le cas décrit ici, la polarisation du champ électrique est rectiligne suivant l'axe z, l'énergie d'interaction devient :

$$W = -p_z E(t) = -p_z E\cos(\omega t)$$
(2.7)

L'Hamiltonien s'obtient donc à partir de l'expression précédente et s'écrit :

$$\hat{H}_I = -\hat{\mu}_z \ E(t) \tag{2.8}$$

où $\hat{\mu}_z$ est l'opérateur dipolaire. Le changement de notation signifie que la variable position classique z de p_z devient l'opérateur z qui agit sur les fonctions d'onde de l'atome.

Dans l'espace des états atomiques $|\psi\rangle$, les deux fonctions d'onde $|\psi_a\rangle$ et $|\psi_b\rangle$ définissent chacune un sous-espace à deux dimensions où l'opérateur $\hat{\mu}_z$ est représenté par une matrice (2×2) de même dimension. Les éléments diagonaux de cette matrice sont nuls. Ceci est dû à la parité des fonctions d'onde $|\psi\rangle$ qui peut être soit paire soit impaire dans une symétrie par rapport au centre de l'atome. L'opérateur $\hat{\mu}_z$ est impair ce qui transforme une fonction qui lui est appliquée en une parité opposée. Ceci s'écrit donc pour la même fonction $|\psi_a\rangle$ ou $|\psi_b\rangle$ par :

$$\langle \psi_a \left| \hat{\mu}_z \right| \psi_a \rangle = \langle \psi_b \left| \hat{\mu}_z \right| \psi_b \rangle = 0 \tag{2.9}$$

Les éléments non diagonaux de la matrice sont obtenus par les produits scalaires

suivants:

$$\mu_{ab} = \langle \psi_a | \hat{\mu}_z | \psi_b \rangle$$

$$\mu_{ba} = \langle \psi_b | \hat{\mu}_z | \psi_a \rangle$$
(2.10)

Ces deux produits scalaires sont complexe conjuguées et par un choix judicieux de la phase des fonctions d'onde, ils peuvent être égaux et réels. Avec ce choix, nous obtenons la solution suivante : $\mu_{ab}^* = \mu_{ba}$. En reprenant l'expression 2.8, l'Hamiltonien d'interaction ou dipolaire électrique comporte quatre éléments :

$$\hat{H}_I = \begin{bmatrix} 0 & V_{ab} \\ V_{ba} & 0 \end{bmatrix}$$
(2.11)

avec la relation suivante :

$$V_{ba} = -\mu_{ba} E(t) = -\mu_{ab}^* E(t) = V_{ab}^*$$
(2.12)

Finalement, l'Hamiltonien total du système peut s'écrire sous sa forme matricielle :

$$\hat{H} = \hat{H}_I + \hat{H}_0 = \begin{bmatrix} 0 & V_{ab} \\ V_{ba} & 0 \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} -\frac{\hbar\omega_{ba}}{2} & 0 \\ 0 & \frac{\hbar\omega_{ba}}{2} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -\frac{\hbar}{2} \omega_{ba} & V_{ab} \\ V_{ba} & \frac{\hbar}{2} \omega_{ba} \end{bmatrix}$$
(2.13)

2.1.2 Matrice densité

En pratique, plutôt que de décrire chaque interaction au sein d'un système, on se satisfait de décrire l'effet moyen sur ce dernier. Si par exemple, un atome décrit par un état initial subit des collisions avec d'autres atomes, la fonction d'onde le décrivant doit également prendre en compte l'état des nombreux atomes voisins. Dans ce cas, la description d'un état de ses sous-systèmes au moyen d'un vecteur d'état va se trouver limitée par le nombre important d'états d'énergie décrivant les interactions. Cette approche statistique pour décrire ces interactions nécessite l'utilisation de l'opérateur densité d'état $\hat{\rho}$ au lieu d'un vecteur d'état pour décrire le système comme $|\psi\rangle$ par
exemple. L'opérateur densité est le projecteur du vecteur d'état qui s'écrit :

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix}$$
(2.14)

Dans chaque base, l'opérateur densité d'état d'énergie est exprimé sous forme d'une matrice d'où le nom employé de matrice densité. Les éléments de sa diagonale ρ_{ii} représentent la probabilité de trouver le système dans un état propre $|\psi_i\rangle$ et sont donnés par $\rho_{ii} = \langle \psi_i | \hat{\rho} | \psi_i \rangle$ (i = a, b). Ils sont appelés population du niveau i et la probabilité de trouver le système dans un état quelconque de l'espace est normalisée à 1 :

$$\sum_{i=a,b} \rho_{ii} = Tr\left(\hat{\rho}\right) = 1 \tag{2.15}$$

avec Tr la trace de la matrice. Les éléments non-diagonaux, appelés cohérence, prennent en compte la phase relative des composantes relatives aux deux vecteurs états $|\psi_a\rangle$ et $|\psi_b\rangle$. Ces éléments sont complexes conjugués.

L'évolution temporelle de la matrice densité d'un système se déduit de l'équation de Schrödinger 2.16 et fait intervenir le commutateur entre l'Hamiltonien du système et la matrice densité

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H}, \ \hat{\rho} \right] \tag{2.16}$$

L'expression précédente est connue sous le nom de l'équation de Liouville, en développant le commutateur ceci entraîne :

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = \begin{pmatrix} \frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} & \frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t} \\ \frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t} & \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} \end{pmatrix} = -\frac{i}{\hbar} \left[\hat{H} \hat{\rho} - \hat{\rho} \hat{H} \right]$$
(2.17)

Le développement de cette expression donne :

$$\frac{\partial \hat{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} \left[\begin{pmatrix} -\frac{\hbar}{2} \omega_{ba} & V_{ab} \\ V_{ba} & \frac{\hbar}{2} \omega_{ba} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\frac{\hbar}{2} \omega_{ba} & V_{ab} \\ V_{ba} & \frac{\hbar}{2} \omega_{ba} \end{pmatrix} \right]$$
(2.18)

Les quatre éléments de cette équation matricielle deviennent :

$$\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} V_{ab} \rho_{ba} + \frac{i}{\hbar} \rho_{ab} V_{ba} = -\frac{i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right)
\frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \rho_{ba} V_{ab} - \frac{i}{\hbar} V_{ba} \rho_{ab} = \frac{i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right)
\frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t} = i \omega_{ba} \rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} V_{ab} \left(\rho_{bb} - \rho_{aa} \right)
\frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t} = -i \omega_{ba} \rho_{ba} + \frac{i}{\hbar} V_{ba} \left(\rho_{bb} - \rho_{aa} \right)$$
(2.19)

Les équations 2.19 constituent les équations de la matrice densité en l'absence des processus de relaxation. Il apparaît que $\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} + \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} = 0$, ce qui montre que la population totale des niveaux d'énergie $\rho_{aa} + \rho_{bb}$ est toujours conservée. A partir de la définition de la densité de matrice, les éléments diagonaux représentent des probabilités d'occupation, ainsi :

$$\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1 \tag{2.20}$$

Si le système subit un changement, il peut être décrit par un opérateur de relaxation qui se rajoute à l'expression 2.19. Les populations ρ_{ii} du niveau b (ou a) peuvent diminuer (ou augmenter) par suite d'un transfert vers le (ou du) niveau a. Dans le cas où la transition a pour effet de vider l'état énergétique haut de l'atome vers l'état fondamental, ceci décrit une émission de photon. On définit le temps de relaxation qui représente le temps nécessaire au système pour atteindre son état stable après la transition. Les termes de relaxation pour les populations ρ_{ii} s'expriment par [107] :

$$\frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t}\Big|_{sp} = -\gamma_2 \rho_{bb}$$

$$\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t}\Big|_{sp} = \gamma_2 \rho_{bb}$$
(2.21)

où γ_2 représente le taux d'émission radiative exprimé en s⁻¹. La première relation de 2.21 décrit une décroissance exponentielle de la population à l'état excité avec une durée de vie γ_2^{-1} vers l'état fondamental. Cet effet de relaxation d'un électron de l'état énergétique haut vers l'état fondamental est le processus d'émission spontanée d'un photon [107]. La seconde relation de 2.21 montre que la population quittant le niveau b se dirige vers le niveau *a*. La somme des populations des deux niveaux est constante et cette relaxation est dite fermée.

Par principe de cohérence, la relaxation du niveau b pour une émission spontanée est donnée par le taux :

$$\frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t}\Big|_{sp} = -\frac{\gamma_2}{2} \rho_{ba} \tag{2.22}$$

En ce qui concerne la relaxation ρ_{ab} , elle est identique à la précédente, tel que :

$$\left. \frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t} \right|_{sp} = -\frac{\gamma_2}{2} \rho_{ab} \tag{2.23}$$

Lorsque le système subit un changement à des instants aléatoires mais fréquents, par interaction avec d'autres atomes, alors l'effet moyenné de nombreuses collisions (peu intenses et brèves) est décrit par un opérateur de relaxation. Ainsi, l'atome à deux niveaux peut interagir avec des atomes voisins mais perturbateurs. Ces collisions induisent un transfert de population du niveau b vers le niveau a (effet quenching) ou l'inverse (*excitation collisionnelle*). Ces processus sont généralement négligeables devant l'émission spontanée [107] et la relaxation des populations reste convenablement décrite par la relation 2.21.

Cependant, l'évolution des cohérences peut être fortement perturbée durant chaque collision en raison d'une variation de la fréquence $\hbar \omega_{ba}$. Ceci provoque l'émission d'un photon avec une énergie différente de celle du photon incident mais elle retourne à sa valeur non perturbée à la suite de la collision. Ces collisions, dites *collisions déphasantes*, ramènent un terme supplémentaire dans la relaxation de la cohérence :

$$\frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t}\Big|_{coll} = -\Gamma \rho_{ab}$$

$$\frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t}\Big|_{coll} = -\Gamma \rho_{ba}$$
(2.24)

où Γ est le taux de relaxation collisionnelle qui est proportionnel à la densité d'atomes perturbateurs et à leur vitesse, à la pression et à la température.

Ainsi, la relaxation totale est égale à la somme des relaxations spontanée et collision-

nelle. Cette dernière se résume comme suit :

$$\frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t}\Big|_{\text{Relax}} = -\gamma_2 \rho_{bb}$$

$$\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t}\Big|_{\text{Relax}} = \gamma_2 \rho_{bb}$$

$$\frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t}\Big|_{\text{Relax}} = -\left(\frac{\gamma_2}{2} + \Gamma\right) \rho_{ab}$$

$$\frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t}\Big|_{\text{Relax}} = -\left(\frac{\gamma_2}{2} + \Gamma\right) \rho_{ba}$$
(2.25)

Les éléments de l'équation de Liouville en considérant les termes de relaxation deviennent à partir de l'équation 2.19 :

$$\frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right) + \frac{\rho_{bb}}{T_1}$$
(2.26a)

$$\frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right) - \frac{\rho_{bb}}{T_1}$$
(2.26b)

$$\frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t} = \left(i \ \omega_{ba} - \frac{1}{T_2}\right) \rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} V_{ab} \left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right) \tag{2.26c}$$

$$\frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t} = -\left(i \ \omega_{ba} + \frac{1}{T_2}\right)\rho_{ba} + \frac{i}{\hbar}V_{ba}\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right) \tag{2.26d}$$

On définit les paramètres $T_1 = \gamma_2^{-1}$ et $T_2 = \left(\frac{\gamma_2}{2} + \Gamma\right)^{-1}$ qu'on appellera temps de relaxation longitudinal et transversal, respectivement. On définit également la différence $\rho_{bb} - \rho_{aa}$ qui correspond à l'inversion de population Δ , ce qui permet d'écrire à partir des deux premières expressions de 2.26 :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\rho_{bb} - \rho_{aa} \right) = \left[\frac{i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right) - \frac{\rho_{bb}}{T_1} \right] - \left[-\frac{i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right) + \frac{\rho_{bb}}{T_1} \right]$$

$$\frac{\partial \Delta}{\partial t} = \frac{2i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right) - \frac{2\rho_{bb}}{T_1}$$
(2.27)

A partir de 2.20, on peut écrire $2\rho_{bb} = \rho_{bb} - \rho_{aa} + 1$. En l'absence de champ électrique et d'après la relation 2.27, on a $2\rho_{bb} = 0$ ce qui permet d'obtenir la différence de la population des deux niveaux de l'atome dit isolé ou à l'état stationnaire une fois l'équilibre atteint telle que $(\rho_{bb} - \rho_{aa})_{eq} = -1$. En présence de champ électrique $2\rho_{bb} =$ $(\rho_{bb} - \rho_{aa}) - (\rho_{bb} - \rho_{aa})_{eq}$ ce qui permet d'écrire :

$$\frac{\partial \Delta}{\partial t} = \frac{2i}{\hbar} \left(V_{ab} \rho_{ba} - \rho_{ab} V_{ba} \right) - \frac{\Delta - \Delta_{eq}}{T_1}$$
(2.28)

Ainsi, la matrice densité d'un système fermé se résume à deux expressions sachant que les expressions 2.26c et 2.26d sont complexes conjuguées. La solution de la dernière expression en l'absence de champ électrique est de la forme :

$$\rho_{ba}(t) = \rho_{ba}(0) \, \exp\left[-\left(i\omega_{ba} + \frac{1}{T_2}\right)t\right]$$
(2.29)

avec $\rho_{ba}(0)$ la valeur initiale. Ainsi, ρ_{ba} tend à évoluer dans le temps en $\exp(-i\omega_{ba}t)$. L'atténuation liée au terme $\exp\left(-\frac{t}{T_2}\right)$ est plus lente.

Pour la résolution des équations de la matrice densité, comme décrit auparavant, un choix judicieux des termes de phase permet d'avoir des valeurs réelles et négatives de μ_{ab} et μ_{ba} telles que $\mu_{ab} = \mu_{ba}^* = -\mu$. Ce qui permet d'écrire :

$$V_{ba} = -\mu_{ba} E(t) = \hbar\Omega \cos(\omega t)$$
(2.30)

On définit la fréquence de Rabi par 2.31. Cette fréquence permet de mesurer en unité de fréquence l'amplitude maximale $\mu_{ab}E$ de l'énergie sinusoïdale d'interaction. La probabilité de transition d'un état à un autre est proportionnelle à Ω^2 .

$$\Omega = \frac{2 \ |\mu_{ab}| \ |E|}{\hbar} \tag{2.31}$$

Ce choix de valeurs pour les fonctions d'onde a pour objectif de simplifier les expressions. Ces dernières se généralisent dans le cas d'une représentation complexe de Ω et du champ électrique E(t). Les calculs nécessitent l'utilisation de l'approximation résonante (appelée aussi approximation de l'onde tournante).

Afin d'éliminer la partie imaginaire des éléments de la matrice densité, il est possible

d'utiliser les formules suivantes [107]:

$$\rho_{a} = \rho_{ab} + \rho_{ba} = 2 \operatorname{Re} \{\rho_{ab}\} = 2 \operatorname{Re} \{\rho_{ba}\}$$

$$\rho_{b} = i (\rho_{ab} - \rho_{ba}) = -2 \operatorname{Im} \{\rho_{ab}\} = 2 \operatorname{Im} \{\rho_{ba}\}$$
(2.32)

Finalement, les quatre élément de l'équation de liouville : les équations 2.26c, 2.26d et 2.28 se résument à trois relations connues sous le nom d'équations de Bloch :

$$\frac{\partial \rho_a}{\partial t} = \omega_{ba} \rho_b - \frac{1}{T_2} \rho_a$$

$$\frac{\partial \rho_b}{\partial t} = -\omega_{ba} \rho_a - \frac{1}{T_2} \rho_b + 2 \frac{\mu E}{\hbar} \Delta$$

$$\frac{\partial \Delta}{\partial t} = -2 \frac{\mu E}{\hbar} \rho_b - \frac{\Delta - \Delta_{eq}}{T_1}$$
(2.33)

2.2 Equations de Maxwell

Les quatre équations de Maxwell relient le champ électrique $\overrightarrow{E}(\overrightarrow{r},t)$ et le champ magnétique $\overrightarrow{H}(\overrightarrow{r},t)$ aux densités de charge $\rho_V(\overrightarrow{r},t)$ et courant $\overrightarrow{J}(\overrightarrow{r},t)$ se propage dans un milieu. Ces équations s'écrivent en omettant d'indiquer les dépendances spatiales \overrightarrow{r} et temporelles t:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \left(\vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}\right)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho_V$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0$$
(2.34)

On considère un milieu sans charges libres et ayant une densité de courant nulle. Le milieu est isotrope et linéaire dans le sens où les champs \overrightarrow{D} et \overrightarrow{E} sont reliés par :

$$\overrightarrow{D} = \varepsilon_0 \ \overrightarrow{E} + \overrightarrow{P} \tag{2.35}$$

avec \overrightarrow{P} le vecteur de polarisation linéaire qui est proportionnel à la valeur locale de l'intensité du champ électrique, à la susceptibilité électrique χ_e et à la constante

diélectrique ε_0 :

$$\overrightarrow{P} = \varepsilon_0 \ \chi_e \ \overrightarrow{E} \tag{2.36}$$

Le milieu est diamagnétique, ce qui signifie que $\overrightarrow{B} = \mu_0 \overrightarrow{H}$, où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide. Dans notre cas d'étude, la polarisation du champ électrique est suivant l'axe z, le champ magnétique est suivant l'axe x et la direction de propagation selon l'axe y. Ainsi, les équations de Maxwell deviennent :

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_z}{\partial y}$$

$$-\frac{\partial H_x}{\partial y} = \frac{\partial}{\partial t} \left(\varepsilon_0 E_z + P_z\right)$$
(2.37)

Ce qui permet d'exprimer la variation temporelle du champ électrique par :

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial P_z}{\partial t}$$
(2.38)

La définition de la polarisation en mécanique quantique est déterminée à partir de la formulation de l'expression 2.6. La polarisation macroscopique est définie comme étant la valeur moyenne du moment dipolaire électrique par unité de volume. L'interaction de l'atome avec un champ électrique peut induire une dépendance non-linéaire de la matrice densité $\hat{\rho}$, ce qui implique, comme dans le cas général, que la polarisation possède une dépendance non-linéaire en fonction de l'amplitude du champ électrique. La polarisation en mécanique quantique est obtenue à partir de l'opérateur dipolaire $\hat{\mu}_z$ et la matrice densité $\hat{\rho}$ par :

$$P(\overrightarrow{r},t) = -N \ Tr(\hat{\mu}_z \hat{\rho}) = -N \left[\mu_{ba} \rho_{ab} + \mu_{ab} \rho_{ba}\right]$$
(2.39)

où Tr est la trace de la matrice [108] et N est la densité des électrons.

Les éléments non-diagonaux de l'opérateur dipolaire sont réels ce qui revient à écrire :

$$P = -N\mu \left(\rho_{ab} + \rho_{ba}\right) \tag{2.40}$$

La variation temporelle de la polarisation s'écrit :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -N\mu \,\frac{\partial}{\partial t} \left(\rho_{ab} + \rho_{ba}\right) \tag{2.41}$$

Les variations temporelles de la cohérence sont [109] :

$$\frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t} = i\omega_{ba}\rho_{ab} - \gamma_{ab}\rho_{ab}$$

$$\frac{\partial \rho_{ba}}{\partial t} = -i\omega_{ba} \rho_{ba} - \gamma_{ba}\rho_{ba}$$
(2.42)

avec les taux de relaxation $\gamma_{ab} = \gamma_{ba} = \frac{\gamma_2}{2} + \Gamma = T_2^{-1}$. En prenant $\omega_{ba} = \omega_0$ et en remplaçant les relations de 2.42 dans 2.41, on trouve :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -N\mu \left\{ i\omega_0 \left(\rho_{ab} - \rho_{ba}\right) - \frac{1}{T_2} \left(\rho_{ab} + \rho_{ba}\right) \right\}$$
(2.43)

On reprend les représentations données en 2.32 concernant les notations réelles pour obtenir le résultat ci-après :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -N\mu \left(\omega_0 \rho_b - \frac{1}{T_2}\rho_a\right) \tag{2.44}$$

La relation de Maxwell-Ampère 2.38 s'exprime en remplaçant le terme de la polarisation et en ne considérant que les amplitudes des champs par :

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{1}{\varepsilon_0} \left[-N\mu \left(\omega_0 \rho_b - \frac{1}{T_2} \rho_a \right) \right]
\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial H_x}{\partial y} + \frac{N\mu\omega_0}{\varepsilon_0} \rho_b - \frac{N\mu}{\varepsilon_0 T_2} \rho_a$$
(2.45)

2.3 Equations de Maxwell-Bloch

Les équations de Maxwell-Bloch décrivant l'interaction d'un champ électromagnétique avec un atome à deux niveaux d'énergie, sont décrites dans les cinq équations suivantes à partir des équations 2.37, 2.45 et 2.33:

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_z}{\partial y}$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{N\mu}{\varepsilon_0 T_2} \rho_a + \frac{N\mu\omega_0}{\varepsilon_0} \rho_b$$

$$\frac{\partial \rho_a}{\partial t} = \omega_0 \rho_b - \frac{1}{T_2} \rho_a \qquad (2.46)$$

$$\frac{\partial \rho_b}{\partial t} = -\omega_0 \rho_a - \frac{1}{T_2} \rho_b + 2\frac{\mu E_z}{\hbar} \Delta$$

$$\frac{\partial \Delta}{\partial t} = -2\frac{\mu E_z}{\hbar} \rho_b - \frac{\Delta - \Delta_{eq}}{T_1}$$

La simulation des équations de Maxwell dans un milieu de permittivité relative ε_r nécessite de remplacer la constante ε_0 dans les équations de Maxwell par $\varepsilon_0\varepsilon_r$ [110]. Nous reviendrons sur ce point dans la partie décrivant les résultats de simulation. D'autre part, l'expression de l'inversion de population peut être complétée par un terme lié à la diffusion des porteurs dans le matériau et devient :

$$\frac{\partial \Delta}{\partial t} = -2\frac{\mu E_z}{\hbar}\rho_b - \frac{\Delta}{T_1} + I + D\frac{\partial^2 \Delta}{\partial^2 z}$$
(2.47)

où D est la constante de diffusion et $I = \frac{\Delta_{eq}}{T_1}$ représente le taux d'injection externe. Ces deux termes seront exploités dans l'étude du verrouillage de modes des QCLs.

2.4 Modélisation numérique des équations Maxwell-Bloch

De nombreux travaux sur la modélisation numérique des équations de Maxwell-Bloch ont été proposés pour résoudre ces équations différentielles comme la méthode de Runge-Kutta, la méthode de propagation de faisceau ou la méthode du point milieu [87] [3]. Ces méthodes de simulation reposent sur l'approximation d'enveloppe du champ électrique pour lequel son enveloppe est supposée avoir une variation en fonction de y et t plus lente que celle de l'exponentielle complexe en $(i\omega t)$ et (iky). Ainsi, la simulation fait appel uniquement à l'enveloppe et ne nécessite pas les termes de propagation d'où un relâchement sur la contrainte de discrétisation temporelle. Cependant, l'utilisation d'une onde progressive et d'une onde régressive est nécessaire pour la représentation d'une onde stationnaire qui est une caractéristique des milieux lasers. La méthode des différences finies dans le domaine temporel, connue sous l'acronyme FDTD pour « Finite-Difference Time-Domain » est beaucoup plus appropriée pour simuler de telles structures car aucune approximation des équations n'est nécessaire. La méthode est cohérente et présente une précision du second ordre dans les domaines spatiaux et temporels. La FDTD permet également une résolution plus précise des effets optiques non linéaires tels que la transparence auto-induite ou SHB. C'est une méthode qui est bien adaptée à la modélisation de l'évolution dynamique du QCL.

2.4.1 Méthode des différences finies dans le domaine temporel

2.4.1.1 Principe de la méthode

La méthode FDTD est une résolution numérique de problèmes électromagnétiques à l'aide d'une discrétisation temporelle et spatiale de la structure. Les équations de Maxwell sont résolues avec la différence centrée suivant l'algorithme de Yee [111] dans l'allocation spatiale des composantes de champs électrique et magnétique et dans le temps avec un pas spécifique pour l'évolution de la procédure [112].

Le champ électrique est calculé aux instants $(n + j)\Delta t$ et aux positions $(m+j)\Delta y$ et le champ magnétique est calculé aux instants $\left(n + \frac{j}{2}\right)\Delta t$ et aux positions $\left(m + \frac{j}{2}\right)\Delta y$, où l'indice $j = 1, 2, 3, \ldots$. Ceci veut dire que les composantes du champ électrique et les composantes du champ magnétique sont spatialement séparées de $\frac{\Delta y}{2}$ et temporellement séparées de $\frac{\Delta t}{2}$ dans chaque maille. Si nous considérons une polarisation du champ électrique rectiligne et identique à la description précédente suivant l'axe z, le champ magnétique est suivant l'axe x et la direction de propagation selon y. La relation entre les champs électrique et magnétique est donc :

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_0} \frac{\partial H_x}{\partial y}
\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_z}{\partial y}$$
(2.48)

Les discrétisations spatiale et temporelle de ces équations avec les points (m, n), signifiant $E_z(m, n) \equiv E_z(m\Delta y, n\Delta t)$ et d'une manière équivalente pour la composante H_y , sont données par le système d'équations (2.49) dans laquelle les indices des axes (z, x)des composantes (E_z, H_x) sont supprimés afin d'alléger les notations. Ces équations 2.49 présentent la discrétisation temporelle et spatiale de la FDTD à une seule dimension des équations de Maxwel-Ampère et Maxwell-Faraday. La figure 2.2 illustre les points des champs E_z et H_x avec cette discrétisation temporelle et spatiale des deux équations de Maxwell. L'indice inférieur (m) correspond à la discrétisation spatiale et l'indice supérieur (n) à la discrétisation temporelle.

$$\frac{1}{\Delta t} \left(E_m^{n+1} - E_m^n \right) = -\frac{1}{\varepsilon_0 \Delta y} \left(H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_{m-\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} \right)
\frac{1}{\Delta t} \left(H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_{m+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} \right) = -\frac{1}{\mu_0 \Delta y} \left(E_{m+1}^n - E_m^n \right)$$
(2.49)



FIGURE 2.2 – Discrétisassion en temps et espace des équations de Maxwell.

Les dérivées secondes temporelle et spatiale dans la méthode FDTD sont calculées par :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial y^2} = \frac{E_{m+1}^n - 2E_m^n + E_{m-1}^n}{(\Delta y)^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{E_m^{n+1} - 2E_m^n + E_m^{n-1}}{(\Delta t)^2}$$
(2.50)

Comme les valeurs du champ magnétique à l'instant (n + j) et du champ électrique à l'instant $\left(n + \frac{j}{2}\right)$ n'existent pas ou ne sont pas stockées dans la mémoire lors de la simulation, il faut utiliser une méthode d'approximation de Crank-Nicholson dite "la méthode semi-implicite" (figure 2.3) donnée par l'équation :

$$E^{n+\frac{1}{2}} = \frac{E^{n+1} + E^n}{2}$$

$$H^n = \frac{H^{n+\frac{1}{2}} + H^{n-\frac{1}{2}}}{2}$$
(2.51)



FIGURE 2.3 – Méthode explicite, implicite et semi-implicite.

2.4.1.2 Condition de stabilité

Comme toute méthode de résolution numérique, la méthode FDTD est confrontée au critère de stabilité afin de garantir la convergence. Les conditions de stabilité sont tributaires des choix des pas temporels et spatiaux et un choix arbitraire de ces deux pas de discrétisation spatio-temporel peut conduire à des solutions erronées du champ électromagnétique. Le pas spatial est défini à partir de la géométrie des objets étudiés et doit être suffisamment fin afin de décrire correctement l'objet [112]. Le choix du pas spatial pour la 1D-FDTD est également dicté par la longueur d'onde minimale du champ électromagnétique, il est généralement estimé à moins de sa dixième de valeur :

$$\Delta y \le \frac{\lambda_{\min}}{10} \tag{2.52}$$

Concernant le pas temporel, il est choisi de sorte que les composantes du champ électromagnétique ne se propagent pas plus vite que la taille d'une cellule [112]. Si on considère par exemple le flux du champ électrique comme représenté sur la figure 2.4a. Le déplacement de ce flux sur un temps Δt est sur une distance v Δt au niveau de la cellule de dimension Δy . On définit le rapport entre ces deux longueurs par C_0 suivant 2.53 pour qu'un système d'équations aux dérivées partielles produise une solution cohérente. Cette condition est connue sous le nom de Courant-Friedrich-Levy (CFL) ou Courant-Number. Un exemple est donné sur la figure 2.4b pour lequel C_0 est inférieur à 1 sur le schéma de gauche et supérieur à 1 sur celui de droite. La propagation du flux est pus rapide que l'épaisseur de la cellule dans le second cas.





FIGURE 2.4 – Déplacement de ce flux sur un temps Δt est sur une distance v Δt

2.4.1.3 Conditions aux limites absorbantes

L'espace de simulation avec la méthode FDTD est fini et doit être tronqué par des conditions aux limites. L'application d'un mur absorbant comme ABC (Absorbing Boundary Conditions) nécessite des conditions particulières sur la distance entre l'objet à simuler et la condition aux limites afin de limiter l'impact de la réflexion sur la surface absorbante [113]. Ces conditions absorbantes correspondent à des milieux de propriétés non physiques placés sur la limite extérieure du domaine simulé. Leurs propriétés particulières permettent d'atténuer rapidement les ondes sortantes de fréquence et direction de propagation arbitraires. Il existe plusieurs conditions de type ABC et les plus célèbres sont la couche absorbante parfaitement adaptée (PML, Perfectly matched layer) et ABC de premier ordre et de deuxième ordre. Nous avons utilisés les conditions aux limites ABC de deuxième ordre régies par l'équation suivante :

$$E^{n+1}(0) = \frac{-1}{\frac{1}{s'_c} + 2 + s'_c} \left[\left(\frac{1}{s'_c} - 2 + s'_c \right) \left(E^{n+1}(2) + E^{n-1}(0) \right) + 2 \left(s'_c - \frac{1}{s'_c} \right) \left(E^n(0) + E^n(2) - E^{n+1}(1) \right).$$

$$-E^{n-1}(1) - 4 \left(\frac{1}{s'_c} + s'_c \right) E^n \right] - E^{n-1}(2)$$
(2.54)

avec $s'_c = \frac{\Delta_t}{\sqrt{\mu \varepsilon} \Delta_y} = \frac{s_c}{\sqrt{\mu_r \varepsilon_r}}$

2.4.2 Discrétisation des équations de Maxwell-Bloch

La résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch est réalisée avec la méthode FDTD [4]. En fonction de la position où la polarisation apparaît dans ces équations, les propriétés du milieu sont considérées aux mêmes points que le champ électrique. Ainsi, toutes les variables ρ_a , ρ_b et Δ sont donc discrétisées temporellement aux instants $n\Delta t$ (figure 2.3.a) et spatialement aux positions $m\Delta y$. Ce type de discrétisation est appelé couplage fort [109]. Une autre méthode de couplage, dite faible, consiste à découpler les équations de Bloch et Maxwell-Ampère en discrétisant temporellement les variables ρ et Δ aux instants $\left(n + \frac{1}{2}\right)t$ aux mêmes instants que le champ magnétique (Figure 2.3.b). Les positions spatiales restent identiques à celles du champ électrique. Ces deux méthodes donnent toutefois des résultats très similaires [109].

Nous avons utilisé la méthode du couplage faible pour la résolution numérique. Ce choix réside dans la simplicité de la discrétisation temporelle des équations de Maxwell-Bloch contrairement à celui du couplage fort où des termes quadratiques sont présents



FIGURE 2.5 – Discrétisation temporelle des équations de Maxwell-Bloch avec la méthode de couplage (a) fort et (b) faible

et rendent la mise en équation complexe. Nous décrivons ci-après, la formulation de la méthode de couplage faible [109] appliquée aux équations 2.46 de Maxwell-Bloch :

$$H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} = H_{m+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{\mu_{0}\Delta y} \left(E_{m+1}^{n} - E_{m}^{n} \right)$$

$$E_{m}^{n+1} = E_{m}^{n} - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta y} \left[H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_{m-\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} \right] - \frac{\Delta t N \mu}{\varepsilon T_{2}} \rho_{a_{m}}^{n+\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t N \mu \omega_{0}}{\varepsilon} \rho_{b_{m}}^{n+\frac{1}{2}}$$

$$\rho_{a_{m}}^{n+\frac{1}{2}} = \rho_{a_{m}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{2T_{2}} \left[\rho_{a_{m}}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{a_{m}}^{n-\frac{1}{2}} \right] + \frac{\Delta t \omega_{0}}{2} \left[\rho_{b_{m}}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{b_{m}}^{n-\frac{1}{2}} \right]$$

$$\rho_{b_{m}}^{n+\frac{1}{2}} = \rho_{b_{m}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t \omega_{0}}{2} \left[\rho_{a_{m}}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{a_{m}}^{n-\frac{1}{2}} \right] - \frac{\Delta t}{2T_{2}} \left[\rho_{b_{m}}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{b_{m}}^{n-\frac{1}{2}} \right]$$

$$+ \frac{\Delta t \mu E_{m}^{n}}{\hbar} \left[\Delta_{m}^{n+\frac{1}{2}} + \Delta_{m}^{n-\frac{1}{2}} \right]$$

$$\Delta_{m}^{n+\frac{1}{2}} = \Delta_{m}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t \mu E_{m}^{n}}{\hbar} \left[\rho_{b_{m}}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{b_{m}}^{n-\frac{1}{2}} \right] - \frac{\Delta t}{2T_{1}} \left[\Delta_{m}^{n+\frac{1}{2}} + \Delta_{m}^{n-\frac{1}{2}} \right] + \frac{\Delta t}{T_{1}} \Delta_{eq}$$
(2.55)

2.5 Implémentation du code FDTD

2.5.1 Outil d'implémentation

Nous avons implémenté les différentes équations de (2.55) en langage C. Nous avons utilisé la structure et les données de la référence [4]. La structure est constituée d'une région d'atomes à deux niveaux représentant la cavité laser de longueur 135 µm et qui est délimitée par deux couches d'air de longueur 7,5 µm chacune (figure 2.6). Une condition d'absorption de type « super absorbant » est ajoutée à chaque extrémité de la structure afin d'éliminer les réflexions. Le champ électrique de type sécante hyperbolique (2.56) est appliqué au niveau de la limite de la couche d'air de gauche comme indiqué sur la Figure (2.6). Ce type d'impulsion permet de simuler la transparence auto induite [4], [71].

$$E_{t} = E_{0} \operatorname{Sech}\left[\frac{10\left(t - \frac{T_{p}}{2}\right)}{\frac{T_{p}}{2}}\right] \sin(\omega t)$$

$$E_{0} = \frac{2\hbar f_{0}}{0,999942 \pi \mu} \frac{A_{P}}{2\pi} = 4,2186 \ 10^{9} \ \frac{A_{P}}{2\pi}$$
(2.56)

où $\frac{A_P}{2\pi}$ est l'aire de l'enveloppe de l'impulsion, $T_p = \frac{20}{f_0} = 100$ fs correspond à une longueur de propagation en espace libre de 30 μ m (i.e. largeur spatiale de l'impulsion), $f_0 = 2 \ 10^{14}$ Hz est la fréquence de la transition laser, E_0 est l'amplitude du champ électrique et vaut 2,1093 $10^9 \ V/m$ pour une impulsion π (i.e. A_p), et 4,2186 $10^9 \ V/m$ pour une impulsion 2π (i.e. $A_P = 2\pi$) et 8,4372 $10^9 \ V/m$ pour une impulsion 4π (i.e. $A_p = 4\pi$).

Le champ électrique est prélevé dans la cavité laser entre les distances 25 et 55 μ m après un temps de simulation de 187,5 fs. Les paramètres de simulation sont les mêmes que dans [4] et sont listés dans le tableau (2.1). Les valeurs de T_1 et T_2 sont prises arbitrairement de valeurs égales et doivent être très élevées comparées à T_p afin de satisfaire la condition de la transparence auto-induite.



FIGURE 2.6 – Configuration de la structure simulée pour valider le code développé.

Le tableau (2.1) représente les paramètres physiques et géométriques utilisés en simulation.

Paramètres	Symbole	Valeur
Temps de relaxation longitudinal	$T_1(ps)$	10^{-10}
Temps de relaxation transversal	$T_2(ps)$	10^{-10}
Fréquence de transition	$f_0(s^{-1})$	2×10^{14}
Densité des atomes	$N(cm^1)$	10^{24}
Élément de la matrice dipôle	$\mu(e \times nm)$	10^{-29}
Longueur de la cavité	$L(\mu m)$	135
Inversion de population à l'équilibre	Δ_{eq}	-1
Pas spatial	$\Delta t (nm)$	7.5
Pas temporel	Δt (s)	1.25×10^{-17}

TABLE 2.1 – Paramètres physiques et géométriques utilisés en simulation

2.5.2 Résultats de simulation

Les résultats de simulation de la dynamique du laser pour les impulsions π , 2π et 4π sont représentés sur la figure 2.7. Pour l'impulsion π , l'inversion de population initiale est égale à 1 signifiant que la population de l'état excité est remplie contrairement à la population du fondamental. L'interaction du champ électrique avec le milieu a fait basculer sa population de l'état excité à l'état fondamental (figure 2.7a). L'atome à deux niveaux se désexcite par émission stimulée rendant ainsi l'énergie initiale à l'impulsion. L'inversion de population initiale pour les impulsions 2π et 4π est à -1 indiquant que l'état excité est vide. Pour l'impulsion 2π , l'interaction permet au système de passer de l'état fondamental à l'état excité et ensuite de revenir à son état initial (figure 2.7b). Pour l'impulsion 4π , la population de l'atome passe de l'état fondamental à l'état excité et ensuite revient à l'état fondamental à l'état fondamental à deux reprises (figure 2.7c).

Les résultats obtenus sont conformes aux résultats discutés dans [4] ce qui nous permet de valider l'implémentation des équations de Maxwell-Bloch avec la méthode FDTD.



FIGURE 2.7 – Résultats de simulation pour une impulsion (a) π , (b) 2π et (c) 4π . En bleu le champ électrique et en rouge l'inversion de population pris entre les positions 25 μ m et 55 μ m de la cavité.

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons modélisé la dynamique du laser à cascade quantique par les équations de Maxwell-Bloch pour un atome à deux niveaux. Ensuite, nous avons considéré le couplage faible entre les équations de Maxwell et Bloch et nous les avons implémentés par la méthode FDTD en langage C. L'implémentation a été validée avec les résultats présentés dans [4] pour une méthode de couplage fort. Suite à cette étape de modélisation de la dynamique du laser à cascade quantique, nous étudierons le verrouillage de modes de QCLs dans le chapitre suivant par l'adaptation des équations de Maxwell-Bloch en introduisant un paramètre d'injection de courant et les effets non linéaires.

Chapitre 3

Verrouillage de modes de QCLs moyen infrarouge

Dans ce chapitre, nous allons décrire les équations de Maxwell-Bloch présentées dans le chapitre précédent avec la méthode FDTD dans le cas de verrouillage de modes. Afin de valider l'implémentation de ces équations, nous avons dans un premier temps simulé des configurations de verrouillage de modes actif de la structure étudiée par Wang et al. [3]-[5] et le verrouillage de modes passif dans une cavité à une section proposé par Talukder [6]. Cette validation permettra d'envisager la simulation des structures spécifiques de verrouillage de modes du QCL moyen infrarouge.

3.1 Introduction

Dans les travaux de Wang *et al.* [3] et [5], les conditions optimales du verrouillage de modes actif d'un laser à cascade quantique émettant dans le moyen infrarouge à 6,2 μ m ont été déterminées à partir des simulations. La méthode de simulation utilisée dans ces travaux repose sur l'approximation de l'enveloppe du champ électrique. La variation de cette enveloppe en fonction de y et t aux longueurs d'onde du moyen infrarouge est plus lente que celle des exponentielles complexes en $(i\omega t)$ et (iky), avec y l'axe de propagation de l'onde. Pour la prise en compte de l'effet SHB lié à l'onde stationnaire formée dans la cavité laser par la saturation de gain, il est nécessaire de considérer une onde progressive et une onde régressive. Le couplage entre ces ondes imprime dans le réseau cristallin un profil de gain qui est favorable à l'émission laser d'un spectre multimode.

3.2 Verrouillage de modes actif du QCL

3.2.1 Structure simulée

La cavité laser décrite sur la figure 3.1 comporte deux sections de longueur totale de 2,6 mm. La première section d'une longueur de 240 μ m est utilisée pour l'injection du signal RF superposé à la composante continue. La seconde section d'une longueur de 2,36 mm représente la section de gain polarisée en continu. Le champ électrique temporel se propageant dans la structure est obtenu par la simulation FDTD. Ce dernier permet de quantifier les impulsions générées tout au long de la cavité. En complément, nous avons appliqué la technique d'auto-corrélation par interférométrie du second ordre qui est utilisée expérimentalement pour déterminer le nombre d'impulsions générées dans un aller-retour du signal et estimer leur largeurs à mi-hauteur.



FIGURE 3.1 – Configuration de la structure du laser pour le verrouillage de modes actif.

L'autocorrélation par interférométrie du second ordre (IAC) est une technique de caractérisation des impulsions [87]. Cette dernière permet de déterminer le nombre d'impulsions dans l'intervalle temporel correspondant au temps d'un aller-retour dans la cavité. La configuration expérimentale est représentée sur la figure 3.2. Elle est basée sur l'interféromètre de Michelson associé à un photodétecteur infrarouge à puits quantique à deux photons appelé QWIP (Quantum Well Infrared Photodetector) [5]. Dans cet interféromètre, le faisceau laser est divisé en deux à l'aide d'un miroir semi-réfléchissant (lame séparatrice) et l'un des deux faisceaux est retardé d'une durée τ à l'aide d'un miroir positionné sur un système mécanique micrométrique. Le balayage en position du miroir permet l'ajustement du retard τ et ainsi de relever le résultat d'interférence entre ces deux chemins. Après photodétection, le photocourant (I_{IAC}) obtenu est donné par la relation suivante :

$$I_{IAC}(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} \left| E(t+\tau) e^{i\omega\tau} + E(t) \right|^4 dt$$

= $\int_{-\infty}^{\infty} \left[|E(t+\tau)|^4 + |E(t)|^4 + 4|E(t+\tau)E(t)|^2 + 2|E(t)|^2 E^*(t) E(t+\tau) e^{i\omega\tau} + 2|E(t+\tau)|^2 E^*(t) E(t+\tau) e^{i\omega\tau} + \left[E(t+\tau) E^*(t) e^{2i\omega\tau} \right]^2 + \text{c.c} \right] dt$ (3.1)

Le courant de plancher est défini par l'équation (3.2) et est égal à $\frac{1}{8} I_{IAC}(0)$ [87].

$$I_p = \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t)|^4 dt$$
 (3.2)

Pour la résolution de l'équation 3.1, nous supposons dans un premier temps que E(t)est une impulsion isolée non nulle sur un intervalle défini par T et nulle pour $\tau > T$. Par conséquent, $I_{IAC}(\tau < T) = I_p$, ce qui permet d'écrire l'équation :

$$I_{IAC} = \frac{I_{IAC}(\tau > T)}{I_{IAC}(0)} = \frac{1}{8}$$
(3.3)

Dans un second temps, nous supposons que E(t) est un signal aléatoire complexe dont sa phase varie entre 0 et 2π . Nous définissons T tel que pour $\tau > T$ le signal E(t)et $E(t + \tau)$ soient statistiquement indépendants ce qui permet d'écrire l'équation (3.4) pour une impulsion aléatoire. Le rapport entre le maximum et le niveau du plancher est de 8 : 1 pour une impulsion isolée et devient 8 : 3 pour un signal avec une phase complètement aléatoire [5]



$$I_{IAC} = \frac{I_{IAC}(\tau > T)}{I_{IAC}(0)} = \frac{3}{8}$$
(3.4)

FIGURE 3.2 – Dispositif expérimental pour l'autocorrélation du second ordre par interférométrie de Michelson.

Le résultat de l'auto-corrélation interférométrique du second-ordre utilisant un QWIP à deux photons est représentée sur la figure 3.3. Dans cette expérience, la mesure de l'autocorrélation interférométrique a été obtenue pour des impulsions optiques de larguer *ps* générées par un laser à électrons libres afin de caractériser la propriété de saturation du QWIP à deux photons à 77 K et sa propriété de détection à 300 K. Le photocourant mesuré présente un rapport 8 : 1 entre le pic et le plancher ce qui renseigne sur la présence d'une seule impulsion par un aller-retour.



FIGURE 3.3 – Photocourant obtenu par autocorrélation interférométrique utilisant un QWIP à deux photons [114], pour une seule impulsion générée lors d'un aller-retour.

Le QWIP à deux photons est un photodétecteur qui présente des puits quantiques ayant trois niveaux énergétiques E_1 , E_2 et E_3 équidistants. Les deux états d'énergie E_1 et E_2 sont localisés dans le puits quantique et l'état E_3 est étendu dans le continuum légèrement au-dessus de la barrière de la bande de conduction. Cette configuration des niveaux d'énergie est schématisée pour un puits quantique sur la figure (3.4).



FIGURE 3.4 – Bande d'énergie de QWIP à deux photons [114]

Nous avons implémenté l'expression (3.1) avec la méthode du trapèze pour le calcul de l'intégrale. Cette méthode consiste à calculer approximativement l'intégrale en déterminant l'aire entre les limites a et b d'un nombre d'échantillons N selon l'algorithme :

$$\int_{b}^{a} f(x)dx \approx \frac{(b-a)}{2N} \{f(a) + f(b) + \sum_{j=2}^{N-1} f(j)\}$$
(3.5)

3.2.2 Mise en équation

La cavité du QCL utilisée pour le verrouillage de modes actif est représentée sur la figure 3.1. Elle est constituée de deux sections : une section courte dans laquelle un signal radiofréquence est injecté avec la polarisation continue et une section plus longue polarisée seulement en continu. Dans la section courte, l'application d'un signal RF permet la modulation des pertes ce qui induit une réduction par absorption des ailes de l'impulsion se propageant dans la cavité. En conséquence, le processus de verrouillage à travers cette absorption se met en place et les impulsions deviennent de plus en plus courtes jusqu'à atteindre le régime établi. Cette injection active peut être considérée dans l'équation de Bloch avec le terme lié à l'inversion de population. Ainsi, nous considérons l'injection par le terme I qui représente la quantité $\frac{\Delta eq}{T_1}$ (équation 3.8).

La modulation du courant dans la section courte de la cavité est donnée par 3.6. C'est la somme d'une contribution DC et d'une autre composante AC à la fréquence de résonance de la cavité laser. Dans le reste de la cavité, seule la polarisation continue est appliquée.

$$I_{ac} = I_{th} \left(a_p + a_m \sin(\omega_{rt} t) \right) \tag{3.6}$$

avec a_m le taux de modulation du signal radiofréquence qui a été estimé à une valeur de 5 pour une puissance RF de 35 dBm pour la structure étudiée en [3], $a_p = \frac{I_{dc}}{I_{th}}$ le taux de pompage continu, I_{dc} représente l'injection continue pour assurer le gain et I_{th} est sa valeur de seuil, ω_{rt} est la pulsation d'un aller-retour dans la cavité. Le courant de seuil est donné par [87]

$$I_{th} = \frac{2\varepsilon\hbar \ l_0}{T_1 T_2 N \mu^2 k} \tag{3.7}$$

avec l_0 est l'atténuation intrinsèque dans la cavité, T_1 et T_2 sont respectivement les

temps de relaxation longitudinal et transversal, \hbar la constante de Planck réduite, N la densité d'atome, μ l'élément de matrice dipolaire, k le vecteur d'onde et $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$ la permittivité dans la cavité.

La structure du QCL est décrite par un modèle d'atome à deux niveaux suivant les équations de Maxwell-Bloch [4]. L'injection électrique est proportionnelle au terme I dans l'équation de l'inversion de population [3]. Comme décrit précédemment, l'effet du SHB est également considéré avec le terme de diffusion des porteurs D ajouté à la même expression. Les équations de Maxwell-Bloch adaptées à chaque section s'écrivent :

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_z}{\partial y}$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{N\mu}{\varepsilon T_2} \rho_a + \frac{N\mu\omega_0}{\varepsilon} \rho_b - l_0 E$$

$$\frac{\partial \rho_a}{\partial t} = -\frac{1}{T_2} \rho_a + \omega_0 \rho_b \qquad (3.8)$$

$$\frac{\partial \rho_b}{\partial t} = -\omega_0 \rho_a - \frac{1}{T_2} \rho_b + 2\frac{\mu E_z}{\hbar} \Delta$$

$$\frac{\partial \Delta}{\partial t} = -2\frac{\mu E_z}{\hbar} \rho_b - \frac{\Delta}{T_1} + I + D\frac{\partial^2 \Delta}{\partial y^2}$$

Les équations de Maxwell-Bloch dans la grande section sont donc équivalentes aux équations dans la petite section à l'exception du paramètre I qui est référencé par I_{ac} dans la petite section et I_{dc} dans la grande section. Le terme $-l_0E$ est ajouté pour tenir compte des pertes dans la cavité, l_0 modélise ces pertes intrinsèques et le terme $D\frac{\partial^2 \Delta}{\partial y^2}$ est considéré pour l'effet de SHB, lie a la diffusion des porteuse dans la matériau (équation 2.47.

La discrétisation temporelle de la dérivée seconde avec la méthode FDTD est donnée dans le cas du couplage faible par [112] :

$$\frac{\partial^2 \Delta}{\partial y^2} = \frac{\Delta_{m+1}^{n-\frac{1}{2}} - 2\Delta_m^{n-\frac{1}{2}} + \Delta_{m-1}^{n-\frac{1}{2}}}{\Delta_y^2} \tag{3.9}$$

La discrétisation des équations de Maxwell-Bloch s'écrivent selon l'équation (3.10). Nous avons implémenté ces équations et nous avons considéré les paramètres physiques et géométriques donnés dans le tableau ci-dessous, nous avons utilisé les mêmes paramètres que ceux donnés dans [3] pour un QCL basé sur une transition diagonale. Dans une telle structure, le chevauchement des fonctions d'onde entre les états supérieur et inférieur est réduit, ce qui conduit à une durée de vie de porteurs de l'état supérieur à environ 50 ps. Ce temps est de l'ordre du temps d'un aller-retour de l'onde dans la cavité. Un temps de relaxation longitudinal court de l'ordre de 5 ps est ensuite utilisé pour analyser les performances de QCL à transition énergétique verticale. L'objectif des simulations présentées dans cette section réside essentiellement sur la validation de la modélisation et plus particulièrement de la prise en compte de l'effet du SHB. Ceci permettra par ailleurs de comparer nos résultats de simulation avec des données expérimentales issues de [3].

$$\begin{aligned} H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} &= H_{m+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta y} \left(E_{m+1}^n - E_m^n \right) \\ E_m^{n+1} &= E_m^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta y} \left[H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - \left[H_{m-\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} \right] - \frac{\Delta t N \mu}{\varepsilon T_2} \rho_{a_m}^{n+\frac{1}{2}} \\ &+ \frac{\Delta t N \mu \omega_0}{\varepsilon} \rho_{b_m}^{n+\frac{1}{2}} - \Delta t \ l_0 \frac{E_m^n + E_m^{n+1}}{2} \\ \rho_{a_m}^{n+\frac{1}{2}} &= \rho_{a_m}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{2T_2} \left[\rho_{a_m}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{a_m}^{n-\frac{1}{2}} \right] + \frac{\Delta t \omega_0}{2} \left[\rho_{b_m}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{b_m}^{n-\frac{1}{2}} \right] \\ \rho_{b_m}^{n+\frac{1}{2}} &= \rho_{b_m}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t \omega_0}{2} \left[\rho_{a_m}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{a_m}^{n-\frac{1}{2}} \right] - \frac{\Delta t}{2T_2} \left[\rho_{b_m}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{b_m}^{n-\frac{1}{2}} \right] \\ &+ \frac{\Delta t \mu E_m^n}{\hbar} \left[\Delta_m^{n+\frac{1}{2}} + \Delta_m^{n-\frac{1}{2}} \right] \\ \Delta_m^{n+\frac{1}{2}} &= \Delta_m^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t \mu E_m^n}{\hbar} \left[\rho_{b_m}^{n+\frac{1}{2}} + \rho_{b_m}^{n-\frac{1}{2}} \right] \\ &+ \frac{\Delta t}{\Delta_y^2} D \left[\Delta_{m+1}^{n-\frac{1}{2}} - 2\Delta_m^{n-\frac{1}{2}} + \Delta_{m-1}^{n-\frac{1}{2}} \right] \end{aligned}$$
(3.10)

Paramètres	Symbole	Valeur
Indice de réfraction	n	3,2
Temps de relaxation longitudinal	$T_1 (ps)$	5 ou 50
Temps de relaxation transversal	$T_2 (fs)$	50
Longueur d'onde	$\lambda ~(\mu { m m})$	6,2
Longueur de cavité	L (mm)	2,6
Longueur de la section courte	$L_a \ (\mu \mathrm{m})$	240
Longueur couche d'air	$L_v \ (\mu \mathrm{m})$	7,5
Constante de diffusion	$D (cm^2/V/s)$	46

TABLE 3.1 – Paramètres physiques utilisés en simulation selon la configuration de la figure(3.1)

3.2.3 Résultats obtenus

La figure 3.5 représente les résultats de simulation obtenus du courant d'autocorrélation interférométrique pour une valeur du taux de modulation du signal radiofréquence a_m de 5 et des valeurs du taux de pompage a_p de 1,1, 1,45 et 1,6. Ce photocourant (I_{IAC}) normalisé est obtenu avec l'expression (3.1) en considérant le champ électrique de 29 derniers allers-retours sur les 600 fixés en simulation. Le résultat de simulation pour $a_p = 1, 1$ est présenté sur la figure 3.5a et montre un rapport de 8 :1 entre le pic et le plancher de l'IAC ce qui correspond aux résultats expérimentaux et aux simulations présentées dans [3]. Nous pouvons conclure qu'une seule impulsion par un aller-retour est générée dans ces conditions d'injection. Lorsque le pompage DC augmente et qu'on s'écarte de courant de seuil, nous observons l'apparition de pics au niveau du plancher de l'IAC ce qui renseigne sur des fluctuations de phase des différents modes. La figure 3.5b illustre l'apparition de ces pics autour du pic principal. En augmentant davantage le pompage, cet effet s'accentue et s'accompagne aussi par l'apparition de pics supplémentaires. Le rapport du pic et le plancher n'est plus de 8 :1 mais plutôt 8 :1,5 sur la figure 3.5c. Ceci est lié essentiellement à l'effet du SHB qui a été considéré par le terme de diffusion dans la dernière expression du système des équations (3.8). Le niveau de modulation RF n'est pas suffisant pour contrebalancer cet effet.

Lorsque l'amplitude du signal radiofréquence diminue et pour un pompage DC optimal a_p de 1,1, la stabilité des impulsions est fortement détériorée pour a_m égal à 0,5 comme représentée sur la figure 3.6b. Le rapport entre le pic et le plancher est de 8 :2,5 ce qui est proche du cas où la phase des modes est complètement aléatoire. Néanmoins, ce qui nous intéresse dans les résultats affichés avec la fonction d'autocorrélation interférométrique est d'établir une comparaison directe avec les résultats de simulation et mesure décrites dans les travaux [3] afin de valider notre modélisation et la prise en compte de l'effet SHB.



FIGURE 3.5 – IAC simulé pour $a_m = 5$, L = 2.6 mm, $L_a = 240 \ \mu$ m et (a) $a_p = 1, 1$, (b) $a_p = 1, 45$ et (c) $a_p = 1, 61$.



FIGURE 3.6 – IAC simulé pour $a_p = 1, 1, L = 2.6$ mm, $L_a = 240 \ \mu m$ et a_m de (a) 3,5 et (b) 0,5.

Les variations du rapport du plancher x de la fonction d'autocorrélation interférométrique sont décrites sur la figure 3.7. Nous pouvons observer que le rapport entre le pic et le plancher diminue lorsque le taux d'injection a_p varie de 1,1 à 1,61. Cette modification est due à l'effet SHB qui est responsable de l'apparition de plusieurs impulsions par aller-retour et qui s'intensifie lorsque le pompage augmente. D'un autre côté, ce rapport augmente lorsque a_m passe de 0,5 à 5 traduisant le passage d'un état aléatoire de phases à un verrouillage de modes stable. Cependant, il est nécessaire d'appliquer un pompage proche du seuil ce qui illustre de la faible efficacité de cette technique.



FIGURE 3.7 – Variation du plancher de l'IAC pour (a) a_p variable et $a_m = 5$ et (b) a_m variable et $a_p = 1, 1$.

Les résultats obtenus de la simulation IAC pour la configuration précèdent, permettent de valider l'implémentation des équations Maxwell-Bloch avec la méthode FDTD. Ces résultats pour les différents points de pompage DC et amplitude du signal RF sont conformes aux résultats expérimentaux et de simulation présentés dans [3]. Nous avons ensuite étudié l'effet de la longueur de la section courte (L_a) sur le verrouillage de modes. Les courbes de la figure 3.8 montrent les résultats de simulation pour différentes longueurs L_a et pour des taux a_m et a_p . Nous observons que le verrouillage de modes est sensible à L_a de telle sorte que l'augmentation de cette dernière entraîne une meilleure stabilité du verrouillage de modes. Pour $L_a = 120 \ \mu m$ (figure 3.8b), deux impulsions sont générées avec l'amplitude de l'impulsion secondaire égale à environ la moitié de celle de l'impulsion principale. Le verrouillage de modes stable est obtenu lorsque $L_a = 240 \ \mu m$ (figure 3.8d) et dont l'amplitude de l'impulsion secondaire est très réduite. Elle est encore réduite pour $L_a = 300 \ \mu m$ (figure 3.8f). La longueur totale de la cavité



est toujours la même à savoir L = 2.6 mm.

FIGURE 3.8 – Résultats de simulation du champ électrique (gauche) et un train d'impulsions dans une fenêtre temporelle de 5 aller-retour (droite) pour $a_p = 1, 1, a_m = 5$ et (a, b) $L_a = 120 \ \mu m$, (c, d) $L_a = 240 \ \mu m$ et (e, f) $L_a = 300 \ \mu m$.

Nous avons ensuite observé l'effet du temps de relaxation longitudinal T_1 sur le verrouillage de modes en gardant la largeur de la section courte de 240 μ m et les valeurs optimales de $(a_m \text{ et } a_p)$. Nous avons considéré un temps de relaxation de $T_1 = 5$ ps qui représente une valeur typique de ce type de structure. La figure 3.9 illustre les résultats de simulation obtenus pour $a_p = 1, 1$ et $a_m = 5$. Nous observons que la dynamique est fortement déformée sous l'effet du SHB puisque plusieurs impulsions par aller-retour sont distinguées.



FIGURE 3.9 – Résultats de simulation pour $a_p = 1, 1, a_m = 5$ et $T_1 = 5$ ps du champ électrique (a) après 600 aller-retour et (b) fenêtre temporelle des cinq dernières impulsions en régime établi.

Sachant que l'effet du SHB est très caractéristique de niveau du pompage DC et de la formation des ondes stationnaires dans la cavité, la longueur de la cavité est un élément non négligeable qui influe sur la forme de l'impulsion. En gardant la longueur de la section courte L_a à la valeur initiale de 240 μ m, nous avons diminué la longueur de la section longue à 1,26 mm ce qui fait une longueur totale de 1,5 mm. La figure 3.10 montre le résultat de simulation pour un temps de relaxation $T_1 = 5 ps$ et une fréquence de modulation choisie en fonction de la longueur de la cavité. Nous observons un effet de SHB plus faible qu'avec la cavité de 2,6 mm de longueur. Le niveau de maximum du champ électrique de l'impulsion principale n'est pas impacté par la longueur de cavité sauf que les impulsions secondaires sont nettement atténuées.



FIGURE 3.10 – Résultat de simulation pour $a_p = 1, 1, a_m = 5, T_1 = 5 ps$, L = 1, 5 mm et $L_a = 240 \ \mu m$ du profil de champ électrique (a) après 600 aller-retour et (b) une fenêtre temporelle des cinq dernières impulsions en régime établi.

La longueur de la cavité est ensuite réduite à 1 mm et le résultat obtenu est représenté sur la figure 3.11. Nous observons la génération d'une seule impulsion par aller-retour démontrant un effet du SHB très négligeable. La valeur du pic du champ électrique dans la cavité reste inchangé par rapport aux résultats précédents obtenus avec une longueur de cavité plus élevée.



FIGURE 3.11 – Résultat de simulation pour $a_p = 1, 1, a_m = 5, T_1 = 5$ ps, L = 1 mm et et $L_a = 240 \ \mu$ m du profil de champ électrique (a) après 600 aller-retour et (b) une fenêtre temporelle des cinq dernières impulsions en régime établi.

Toutefois, ces résultats sont obtenus avec un pompage DC proche de la valeur du seuil du laser. Lorsqu'on augmente le taux de pompage à $a_p = 1,61$, nous observons

l'apparition d'une autre impulsion par aller-retour. Les résultats de simulation pour $a_p = 1, 6, a_m = 5, T_1 = 5$ ps, L = 1 mm et $L_a = 240 \ \mu$ m sont représentés sur la figure 3.12.



FIGURE 3.12 – Résultat de simulation pour $a_p = 1, 61, a_m = 5, T_1 = 5$ ps, L = 1 mm et $L_a = 240 \ \mu$ m (a) profil de champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant des cinq dernières impulsions en régime établi.

En conclusion à travers ces différentes simulations, nous avons confirmé l'obtention du verrouillage de modes actif par la technique d'injection d'un signal RF permettant de moduler le gain. Ce verrouillage de modes stable est obtenu lorsque le pompage DC est proche de la valeur du seuil et pour une puissance RF élevée. Avec un taux de pompage DC plus élevé, l'effet du SHB est important ce qui induit la génération de plusieurs impulsions par aller-retour. Cependant, le verrouillage de modes actif des QCLs en moyen infrarouge nécessite un niveau de puissance RF élevé pour générer des impulsions isolées. Il a été estimé à 35dBm donnant une valeur de a_m de 5 [3]. D'autre part, la génération des impulsions stables dans les QCLs est influencée par leurs paramètres physiques et la structure de la transition laser. En effet, une région active de haute performance est conçue avec une transition radiative verticale et se caractérise par un temps de recouvrement de gain très faible comparé à la durée d'un aller-retour dans la cavité. Une comparaison approfondie de ces deux structures a été menée dans [115] montrant des performances plus robustes avec un QCL ayant un temps de recouvrement de gain élevé. De même, nous avons simulé la structure du QCL à transition radiative verticale en réduisant le temps de relaxation T_1 à 5 ps. Nous avons observé l'apparition

des impulsions secondaires (figure 3.9) pour un taux de pompage DC proche du seuil contrairement au cas de $T_1 = 50$ ps (figure 3.8e). Ceci est dû à l'effet du SHB qui est plus significatif lorsque le temps de recouvrement du gain est faible comparé à la durée d'un aller-retour. La diminution de la longueur de la cavité à 1 mm a permis de mettre en évidence ces effets sur le profil temporel du champ électrique généré (figure 3.11).

3.3 Verrouillage de modes passif de QCLs avec un absorbant saturable

Nous nous intéressons dans cette section au verrouillage de modes passif à l'aide d'un absorbant saturable. Nous reprenons les travaux présentés dans [116] et [6] dans lesquels la cavité laser est divisée en deux sections comme dans le cas de l'injection active sauf que la section courte est dédiée ici à un absorbant saturable et la section longue est celle du milieu à gain (figure 3.13). Cette structure peut être réalisée par report de la section d'absorbant saturable au niveau de la section à gain [116]. Ce qui nous intéresse particulièrement dans l'étude de cette structure est le développement de la méthode de modélisation en considérant la non-linéarité de l'absorption. Cette modélisation numérique est également basée sur la résolution des équations de Maxwell-Bloch décrivant l'interaction de la lumière avec un atome à deux niveaux d'énergie.



FIGURE 3.13 – Structure de la cavité laser avec un absorbant saturable.

L'absorbant saturable exploité dans cette structure présente un effet optique nonlinéaire qui est la transparence auto-induite [6]. Son principe est basé sur la dépendance de l'absorption du milieu à l'intensité du champ électrique qui s'y propage. Le milieu absorbant devient ainsi transparent au-delà d'un seuil d'intensité et reste absorbant pour les intensités plus faibles. La relation décrivant cette absorption non-linéaire s'écrit :

$$l(t) = \frac{l_0}{1 + \frac{I(t)}{I_s}}$$
(3.11)

où l_0 est l'absorption intrinsèque du matériau, $I(t) \propto |E|^2$ est l'intensité lumineuse et I_s est l'intensité de saturation de l'absorbant [49]. Le rôle de l'absorbant saturable est de favoriser la transmission de fortes intensités lumineuses tout en absorbant les plus faibles. Pour assurer le verrouillage passif de modes, il faut satisfaire la condition selon laquelle l'absorption doit saturer plus rapidement que le gain. Cette dernière peut être réalisée dès que le rapport ξ_a/ξ_g est supérieur à l'unité, où les paramètres ξ_g et ξ_a sont donnés par l'expression (3.12). Cette condition assure que l'effet de l'absorbant est plus important que l'effet d'amplification du milieu à gain. Les coefficients ξ_g et ξ_a sont appelés respectivement paramètres de saturation non-linéaire du milieu à gain et du milieu absorbant. Une autre condition garantissant un verrouillage de modes passif stable avec ce type de structure est un temps de relaxation de l'absorbant de très faible valeur [116].

$$\xi_{g} = \frac{(\mu^{2} T_{1}T_{2})_{g}}{\hbar^{2}}$$

$$\xi_{a} = \frac{(\mu^{2} T_{1}T_{2})_{a}}{\hbar^{2}}$$
(3.12)

3.3.1 Équation de Maxwell-Bloch avec un absorbant saturable

Les équations de Maxwell-Bloch données par (3.8) ont été reformulées pour la structure étudiée. Le pompage DC est un paramètre important dans cette étude. Il doit être suffisamment élevé pour assurer l'inversion de population dans la section de gain et doit être plus faible dans la section à absorbant pour assurer l'absorption. Les valeurs limites de ces paramètres, notées respectivement, $I_{g,min}$ et $I_{a,max}$ sont données par 3.13. La formulation de ces conditions limites n'est pas reprise ici et de plus amples détails sont fournis dans [6].
$$I_{g,\min} = \frac{2l_0L}{(T_1T_2)_g L_g} \frac{\hbar\varepsilon}{N_g \mu_g^2 k}$$

$$I_{a,\max} = \left[I_g \frac{(T_1T_2)_g L_g}{(T_1T_2)_a L_a} - \frac{2l_0L}{(T_1T_2)_a L_a} \right] \frac{\hbar\varepsilon}{N_a \mu_a^2 k}$$
(3.13)

Les indices g et a se réfèrent respectivement aux milieux à gain et absorbant, L est la longueur totale de la cavité, L_g est la longueur de la section à gain, L_a est la longueur de la section d'absorbant saturable, T_1 et T_2 sont respectivement les temps de relaxation longitudinale et transversale, $N_{g,a}$ est la densité d'atomes et $\mu_{g,a}$ est la matrice dipolaire.

3.3.2 Résultats de simulation

La cavité laser fait une longueur totale L de 2,6 mm, la longueur de la section de l'absorbant saturable L_a est de 240 μ m de long et la section à gain L_g fait donc 2,36 mm. La longueur d'onde d'émission du laser est de 6,2 μ m. Les paramètres physiques des deux sections sont identiques et correspondent à ceux utilisés pour le verrouillage de modes actif (tableau 3.1) à l'exception de la matrice dipolaire μ_a qui vaut le double de μ_b afin de satisfaire la condition de verrouillage de modes et ce qui fait $\xi_a = 2 \xi_g$. Cependant, lorsque la valeur de la matrice dipolaire change cela induit un changement des paramètres physiques de la structure du QCL. Par contre, nous gardons dans nos simulations les paramètres physiques identiques à ceux du milieu à gain. Ces paramètres de simulation sont résumés dans le tableau 3.2.

Paramètres	Symbole	Valeur
Indice de réfraction	n	3,2
Rapport de saturation non-linéaire	$\xi_{ m a}/\xi_{ m g}$	2
Temps de relaxation longitudinal	$T_1 (ps)$	50
Temps de relaxation transversal	T_2 (fs)	50
Longueur d'onde	$\lambda ~(\mu { m m})$	6,2
Longueur de cavité	L(mm)	2,6
Longueur de l'absorbant	$L_a \ (\mu m)$	240
Longueur de la couche d'air	$L_v \ (\mu m)$	7,5
Constante de diffusion	$D (\mathrm{cm/V/s})$	46

TABLE 3.2 – Paramètres de simulation utilisés.

Les paramétrages utilisés pour cette simulation sont comme suit :

- pas spatial égal à $\lambda/200$;
- nombre d'aller-retour égal à 200;
- taux de pompage DC dans la région à gain $I_g = 1, 7 I_{g,min}$;
- taux de pompage DC dans le milieu absorbant $I_a = a_{p,a} I_{a,max}$ avec $a_{p,a} = 0,3$; 0,7; 0,9 et 1.

Il faut noter que la valeur du taux de pompage de 1,7 $I_{g,min}$ appliqué dans le milieu à gain a été choisie afin d'assurer l'amplification du champ électrique en présence de l'absorbant saturable. Les résultats de simulation sont représentés sur les figures 3.14 à 3.16. La stabilité du verrouillage de modes n'est pas assurée pour une injection faible dans l'absorbant à savoir 0,3 $I_{a,max}$ comme est représentée sur la figure 3.14. Le relevé temporel présente plusieurs impulsions par un aller-retour dans la cavité.



FIGURE 3.14 – Résultat de simulation pour $I_g = 1,7 I_{g,min}$ et $I_a = 0,3 I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.

Pour I_a égal à 0,7 $I_{a,max}$ et 0,9 $I_{a,max}$, nous remarquons que le verrouillage de modes est stable révélant la formation d'une impulsion par un aller-retour qui vaut 56 ps. La différence majeure entre ces deux résultats est le temps transitoire à l'établissement des impulsions, qui est relativement long et avec un niveau du champ électrique plus faible, pour $I_a = 0.9 I_{a,max}$. Ceci s'explique par une absorption plus élevée.



FIGURE 3.15 – Résultat de simulation pour $I_g = 1, 7 I_{g,min}$ et $I_a = 0, 7 I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.



FIGURE 3.16 – Résultat de simulation pour $I_g = 1,7 I_{g,min}$ et $I_a = 0,9 I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.

Pour un taux de pompage à la valeur limite $I_{a,max}$, l'impulsion est complètement absorbée dans la cavité comme est décrit sur la figure 3.17. Les pertes sont plus importantes dans ce cas et le gain n'est pas saturé.

Contrairement aux résultats obtenus pour le verrouillage de modes actif [3], l'absorbant saturable permet de diminuer l'effet du SHB et prévient la formation des ondes continues lorsque le taux d'injection est largement supérieur à la valeur du seuil.



FIGURE 3.17 – Résultat de simulation pour $I_g = 1,7 I_{g,min}$ et $I_a = I_{a,max}$ (a) profil du champ électrique et (b) fenêtre temporelle des trois premières impulsions.

3.3.3 Verrouillage de modes hybride

Maintenant, nous combinons les deux techniques de verrouillage de modes actif et passif précédemment étudiées. La cavité laser est toujours divisée en une section courte jouant le rôle du modulateur optique et de l'absorbant saturable et une grande section assurant le gain. La structure de la cavité est représentée sur la figure suivante :



FIGURE 3.18 – Structure du laser utilisée pour le verrouillage de modes hybride.

Au niveau de la section à gain, une polarisation continue I_{dc} est appliquée de valeur suffisamment élevée afin d'assurer l'inversion de population. Au niveau de la section courte, le pompage DC est superposé avec la composante RF suivant l'équation (3.14). Nous utilisons le taux de pompage dans l'absorbant saturable référencé par $a_{p,a}$ et dans la zone à gain référencé par a_p .

$$I_{dc} = a_p \ I_{g,min}$$

$$I_{ac} = I_{a,\max} \ (a_{p,a} + a_m \ \sin(\omega_{rt}t))$$

$$(3.14)$$

Les équations de Maxwell-Bloch utilisées pour la simulation de cette structure sont similaires aux équations (3.8). Nous étudions ce verrouillage de modes hybride en variant le taux d'injection a_p qui prend successivement les valeurs 1,1, 1,6, 2 et 3 dans la section à gain pour un taux d'injection dans la section courte $a_{p,a}$ fixé à 0,7. Cette valeur est optimale pour obtenir un verrouillage de modes passif stable suivant les simulations précédentes. Les figures 3.19 à 3.26 représentent les résultats de simulation du verrouillage de modes hybride. Nous observons la génération d'une seule impulsion par aller-retour pour les conditions de pompage $a_{p,a} = 0, 7, a_m = 5$ et $a_p = 1, 6$ jusqu'à $a_p = 2$ pour lesquelles l'effet de SHB est faible. Pour $a_p = 3$, nous observons l'apparition d'une seconde impulsion, de faible amplitude, mais qui sera amenée à augmenter avec le taux de pompage. Ceci est lié, comme dans tous les cas précédents, à la distorsion de la forme du gain et également à la saturation de l'absorbant saturable par le niveau du champ électrique.



FIGURE 3.19 – Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0,7$ et $a_p = 1,1$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.



FIGURE 3.20 – Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0,7$ et $a_p = 1,6$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.



FIGURE 3.21 – Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0, 7$ et $a_p = 2$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.



FIGURE 3.22 – Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0,7$ et $a_p = 3$ (a) profil du champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.

Nous avons ensuite diminué le taux de pompage de la section courte à la plus faible valeur et en considérant $a_p = 1, 1$ et $a_m = 5$. Pour rappel, le verrouillage de modes sans l'absorbant saturable est stable avec ces paramètres d'injection (figure 3.8d). La figure 3.23 montre les résultats de simulation de ce verrouillage de modes hybride avec le maintien de la génération d'une seule impulsion par un aller-retour. Néanmoins, nous constatons une légère absorption du champ électrique qui possède une valeur maximale en dessous de celle sans absorbant, 0,8 MV/m contre 1 MV/m.



FIGURE 3.23 – Résultat de simulation pour $a_m = 5$, $a_{p,a} = 0, 3$ et $a_p = 1, 1$ (a) profil de champ électrique complet et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions

L'influence du taux de modulation par un signal RF sur le verrouillage de modes est analysée en diminuant a_m à 3,5 et 0,5. Dans un premier temps, nous prenons la valeur du taux de pompage de la région à gain $a_p = 1, 6$ et nous gardons la valeur $a_{p,a} = 0,7$ dans la section courte. Pour $a_m = 3,5$ et suivant le résultat décrit sur la figure 3.24, nous observons la génération d'une seule impulsion par un aller-retour. La réduction du taux de modulation à 0,5 maintient le verrouillage de modes comme on peut le voir sur la figure 3.25. Le maximum du champ électrique des impulsions diminue d'un rapport 3,6. En gardant la même valeur de $a_m = 0,5$ et en réduisant a_p à 1,1 nous observons l'absorption de la totalité du champ électrique ce qui montre un effet du signal injecté très faible pour compenser la modulation des pertes. Ainsi, en combinant les deux méthodes, l'effet de SHB apparaît avec des conditions de pompage et d'injection différentes en comparaison avec les résultats obtenus pour le verrouillage de modes actif (figures 3.5 et 3.6).



FIGURE 3.24 – Résultat de simulation pour $a_{p,a} = 0, 7, a_p = 1, 6$ et $a_m = 3, 5$ (a) profil du champ électrique total et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.



FIGURE 3.25 – Résultat de simulation pour $a_{p,a} = 0, 7, a_p = 1, 6$ et $a_m = 0, 5$ (a) profil du champ électrique total et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.



FIGURE 3.26 – Résultat de simulation pour $a_{p,a} = 0, 7, a_p = 1, 1$ et $a_m = 0, 5$.

3.4 Conclusion

Dans ce troisième chapitre, nous avons validé les outils de modélisation basés sur la méthode FDTD en simulant différentes techniques de verrouillage de modes des QCLs en moyen infrarouge. Nous avons abordé le verrouillage de modes actif et la mise en évidence de l'influence du SHB sur la dynamique des QCLs. La stabilité du verrouillage de modes est étroitement liée à ce dernier de part la formation des ondes stationnaires dans la cavité. Le fonctionnement du laser proche de son point de seuil est nécessaire afin de garantir la génération d'une impulsion isolée. Le choix de prendre une dimension de la cavité laser plus courte a démontré une diminution de l'effet du SHB. L'apport d'un absorbant saturable dans ce type de structure est aussi important et les résultats de simulation ont démontré une amélioration des performances avec la possibilité d'augmenter le taux de pompage DC. L'intérêt de ce verrouillage de modes hybride est l'application d'un taux de modulation du signal RF de faible amplitude. Sans ce signal RF, le verrouillage de modes passif avec une cavité à deux sections peut-être obtenu avec une structure à transition diagonale caractérisée par un temps de relaxation des porteurs de l'ordre de grandeur du temps d'un aller-retour des ondes dans la cavité. Sachant la difficulté de concevoir une telle cavité laser avec un milieu jouant le rôle d'un absorbant saturable, nous verrons dans le prochain chapitre deux autres alternatives.

Chapitre 4

Structures proposées pour le verrouillage de modes de QCL moyen infrarouge

Dans ce chapitre, nous présentons notre contribution au verrouillage de modes de QCL moyen infrarouge à travers des simulations basées sur les outils validés au chapitre précèdent sur des structures étudiées en littérature. Nous présentons une structure simplifiée du verrouillage de modes passif qui s'appuie sur l'effet de la transparence auto-induite. Ensuite, nous décrivons l'effet de l'ajout d'une couche de graphène utilisée comme un absorbant saturable sur une des facettes du QCL. La couche de graphène est modélisée par deux différentes méthodes afin de confirmer et comparer les résultats obtenus. La première méthode est basée sur les équations de Maxwell-Bloch et la seconde s'appuie sur la modélisation par les équations de Maxwell en considérant la conductivité du graphène comme une fonction non-linéaire de l'intensité du champ électrique. Nous terminons par une discussion sur le verrouillage de modes avec un miroir à haute réflectivité intégrant une couche de graphène.

4.1 Transparence auto-induite (SIT)

Nous avons décrit le principe de la transparence auto-induite section 1.5.8.3) dans le chapitre 1 . Une impulsion courte d'une énergie suffisante, de largeur τ_p inférieure au temps de relaxation transversale T_2 peut traverser un milieu optique sans être absorbée. En raison du faible temps de recouvrement du gain des QCLs, cette condition est parfaitement adaptée pour le verrouillage de modes passif basé sur le SIT [78]. Cet effet a été décrit pour un QCL moyen infrarouge avec une structure alternant une couche d'absorbant confinée entre quatre périodes de gain. Cette structure est toutefois complexe à fabriquer et c'est pourquoi nous présentons dans cette thèse une structure simplifiée. Nous n'utiliserons que deux périodes de couches, jouant le rôle d'un absorbant saturable, qui enveloppent les régions actives comme décrit sur la figure 4.1. L'épaisseur des couches absorbantes est fixée au double de l'épaisseur d'une période des QCL pour satisfaire la condition relative aux moments dipolaires tel que $\mu_a = 2 \mu_g$. Ainsi, étant donné les épaisseurs des couches quantiques non égales il advient que les temps de relaxation sont légèrement différents mais sans être d'un écart significatif. Nous pouvons ainsi supposer que $T_{1g} = T_{1a} = T_1$ et $T_{2g} = T_{2a} = T_2$ puisque les couches quantiques des régions de gain et d'absorption sont développées avec le matériau. La structure simulée est une cavité laser de 3 mm de long et les mêmes configurations du champ électromagnétique et direction de propagation sont maintenues.



FIGURE 4.1 – Configuration de la structure du laser pour la transparence auto-induite (SIT)

4.1.1 Equations de Maxwell-Bloch

La dynamique du QCL est modélisée par l'équation de Maxwell-Bloch pour un système ouvert à deux niveaux. Comme l'absorbant saturable est disposé à la limite transversale du QCL, le champ électrique interagit avec ces deux couches simultanément ce qui est typique d'un confinement latéral. Nous introduisons le facteur de confinement afin de définir le recouvrement du champ électrique dans les deux milieux. Le système d'équations (4.1) modélise l'interaction de la lumière avec chaque milieu référencé par l'indice g pour le milieu à gain et a pour l'absorbant saturable. Ce système d'équations est basé sur les équations de Maxwell-Bloch (3.8) développées précédemment dans lesquelles le terme $(l_0 - \gamma |E|^2)$, qui remplace le terme l_0 reflète la transmission de la lumière à travers l'absorbant saturable. Nous avons introduit des coefficients de recouvrement Γ_a et Γ_g qui renseigne sur le recouvrement du champ électrique avec chaque milieu.

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_z}{\partial y}$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{\Gamma_a N_a \mu_a}{\varepsilon T_{2a}} \rho_{aa} + \frac{\Gamma_a N_a \mu_a \omega_0}{\varepsilon} \rho_{ba}$$

$$-\frac{\Gamma_g N_g \mu_g}{\varepsilon T_{2g}} \rho_{ag} + \frac{\Gamma_g N_g \mu_g \omega_0}{\varepsilon} \rho_{bg} - (l_0 - \gamma |E_z|^2) E_z$$

$$\frac{\partial \rho_{a(a,g)}}{\partial t} = -\frac{1}{T_{2(a,g)}} \rho_{a(a,g)} + \omega_0 \rho_{b(a,g)}$$

$$\frac{\partial \rho_{b(a,g)}}{\partial t} = -\omega_0 \rho_{a(a,g)} - \frac{1}{T_{2(a,g)}} \rho_{b(a,g)} + 2\frac{\mu_{(a,g)} E_z}{\hbar} \Delta_{(a,g)}$$

$$\frac{\partial \Delta_{(a,g)}}{\partial t} = -2\frac{\mu_{(a,g)} E_z}{\hbar} \rho_{b(a,g)} - \frac{\Delta_{0(a,g)}}{T_{1(a,g)}} + I + D\frac{\partial^2 \Delta_{(a,g)}}{\partial y^2}$$
(4.1)

où l_0 est l'absorption intrinsèque du matériau, γ est le coefficient de l'absorbant saturable, Γ_a et Γ_g sont les facteurs de recouvrement décrivant respectivement la fraction de l'intensité lumineuse répartie dans la région de l'absorbant et dans la région à gain. La seconde équation de la dérivée temporelle du champ électrique E indique la propagation de l'onde dans les deux milieux à gain et absorbant saturable.

Afin d'obtenir un verrouillage de modes à l'aide du SIT, les ondes continues doivent avoir une énergie inférieure à la valeur du seuil. Pour analyser ce point, nous exploitons les conditions de fonctionnement données dans [78] qui ont été développées à partir des équations de Maxwell-Bloch avec l'approximation de l'enveloppe variant lentement ou SVEA (slowly varying envelope approximation). Ces conditions restent valables dans notre cas puisque l'approximation SVEA peut avoir un impact sur le comportement non-linéaire de l'interaction mais n'a pas un effet majeur au seuil du laser. La formulation de ces conditions est présentée en annexe C. Au niveau du seuil, nous obtenons la relation suivante [78] :

$$\frac{\Gamma_g N_g \mu_g^2 T_{2g} \Delta_{0g}}{2\varepsilon\hbar} + \frac{\Gamma_a N_a \mu_a^2 T_{2a} \Delta_{0a}}{2\varepsilon\hbar} - l_0 = 0$$
(4.2)

Cette relation peut s'écrire sous la forme $G \Delta_{0g} + A \Delta_{0a} - l_0 = 0$, où G et A représentent respectivement le gain et l'absorption quantique cohérente par unité de longueur donnés par :

$$G = \frac{\Gamma_g N_g \mu_g^2 T_{2g}}{2\varepsilon \hbar}$$

$$A = \frac{\Gamma_a N_a \mu_a^2 T_{2a}}{2\varepsilon \hbar}$$
(4.3)

La normalisation de cette dernière relation par rapport à l'atténuation linéique est plus simple à analyser. Ce qui revient à écrire :

$$\bar{g}\Delta_{0g} + \bar{a}\Delta_{0a} - 1 = 0 \tag{4.4}$$

avec $\bar{g} = \frac{G}{l_0}$ et $\bar{a} = \frac{A}{l_0}$.

La dynamique de cette structure est analysée en fonction des paramètres G et A et sous la condition que le gain est inférieur au seuil laser. Cela signifie que le gain laser est inférieur à l'ensemble des pertes dans la cavité l_0 et A. Ce qui revient à poser la première condition de stabilité sous la forme $\bar{g} \Delta_{0g} + \bar{a} \Delta_{0a} - 1 < 0$. Il est ainsi possible d'établir la limite de stabilité pour le cas idéal dans lequel le gain est complètement inversé $\Delta_{0g} = 1$ et l'absorbant est totalement non inversé $\Delta_{0a} = -1$. La première condition limite pour éviter la formation des ondes continues s'écrit $\bar{g} - \bar{a} - 1 = 0$. Cette limite est représentée par la ligne bleue (symboles carrés) sur la figure 4.2 qui donne les valeurs de \bar{a} pour lesquelles en-dessous de ces dernières les ondes continues ont une forte probabilité de se mettre en place. La deuxième condition limite, représentée par la ligne rouge (symboles ronds), indique les valeurs limites au-dessus desquelles l'impulsion initiale est absorbée. Cette condition est donnée par la borne supérieure de l'expression (4.5) dans le cas où $T_{2a} = T_{2g}$ [78]. Ainsi, l'obtention d'une impulsion isolée est en fonction du choix de ces valeurs de telle sorte d'avoir \bar{a} compris entre les deux courbes. Cependant, suivant les conditions initiales Δ_{0g} et Δ_{0a} , ces deux courbes limites varient et ne reflètent pas les valeurs décrites sur la figure 4.2 qui correspondent au cas idéal.

$$\bar{g} - 1 < \bar{a} < \frac{(3\bar{g} - 2)^2}{12}$$
(4.5)



FIGURE 4.2 – Limites de stabilité de l'absorption normalisée fonction du gain normalisé pour le cas idéal ($\Delta_{0g}=1$ et $\Delta_{0a}=-1$)

Dans l'étude du verrouillage de modes passif exploitant l'effet SIT, nous utiliserons le taux de pompage comme paramètre de simulation au lieu de modifier directement l'inversion de population et l'absorption totales qui représentent le cas idéal. Pour cela, l'équation (4.2) est reformulée en fonction du taux de pompage dans les régions à gain et de l'absorbant comme suit :

$$I_{(g,a)} = \frac{\Delta_{0(g,a)}}{T_{1(g,a)}}$$

$$G I_g T_{1g} + A I_a T_{1a} - l_0 = 0$$
(4.6)

L'équation (4.6) permet de définir le taux de pompage au seuil (I_{gth}) pour le milieu à gain en l'absence de l'absorbant saturable, i.e. $I_a = 0$, par :

$$I_{gth} = \frac{l_0}{G T_{1g}} \tag{4.7}$$

Nous pouvons ainsi réécrire l'équation (4.6) comme suit :

$$\bar{g}_n - \bar{a}_n - 1 = 0 \tag{4.8}$$

avec $\bar{g}_n = \frac{G T_{1g}}{l_0} I_g$ et $\bar{a}_n = -\frac{A T_{1a}}{l_0} I_a$.

Les taux d'injection qui seront utilisés comme éléments de paramétrage dans les couches à gain et d'absorption sont donnés par :

$$I_g = \bar{g}_n \ I_{gth}$$

$$I_a = -\frac{\bar{a}_n \ l_0}{A \ T_{1a}}.$$
(4.9)

4.1.2 Discrétisation temporelle des équations de Maxwell-Bloch

La discrétisation des équations de Maxwell-Bloch est décrite par les équations 4.10 et 4.11. Le système d'équations 4.11 est appliqué soit à la couche d'absorbant (indice a) ou soit à la couche de gain (indice g).

$$H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} = H_{m+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta y} \left(E_{m+1}^n - E_m^n \right)$$

$$E_m^{n+1} = E_m^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta y} \left(H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_{m-\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} \right)$$

$$- \frac{\Delta t \, \Gamma_g N_g \mu_g}{\varepsilon T_{2,g}} \rho_{a,g} \, {}_{m}^{n+\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t \, \Gamma_g N_g \mu_g \omega_0}{\varepsilon} \rho_{b,g} \, {}_{m}^{n+\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t \, \Gamma_a N_a \mu_a}{\varepsilon T_{2,a}} \rho_{a,a} \, {}_{m}^{n+\frac{1}{2}}$$

$$+ \frac{\Delta t \, \Gamma_a N_a \mu_a \omega_0}{\varepsilon} \rho_{b,a} \, {}_{m}^{n+\frac{1}{2}} - \Delta t \, l_0 \frac{(E_m^{n+1} + E_m^n)}{2} + \Delta t \, \gamma \left(\frac{E_m^{n+1} + E_m^n}{2} \right)^3$$

$$(4.10)$$

$$\rho_{a,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} = \rho_{a,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} - \frac{\Delta t}{2T_{2,(a,g)}} \left[\rho_{a,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \rho_{a,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] + \frac{\Delta t \omega_0}{2} \left[\rho_{b,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \rho_{b,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] \\\rho_{b,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} = \rho_{b,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} - \frac{\Delta t \omega_0}{2} \left[\rho_{a,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \rho_{a,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] - \frac{\Delta t}{2T_{2,(a,g)}} \\\left[\rho_{b,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \rho_{b,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] + \frac{\Delta t \mu_{(a,g)}}{\hbar} E_m^{-n} \left[\Delta_{(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \Delta_{(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] - \frac{\Delta t}{2T_{1,(a,g)}} \\\Delta_{(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} = \Delta_{(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} - \frac{\Delta t \mu_{(a,g)}}{\hbar} E_m^{-n} \left[\rho_{b,(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \rho_{b,(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] - \frac{\Delta t}{2T_{1,(a,g)}} \\ \left[\Delta_{(a,g)} \overset{n+\frac{1}{2}}{m} + \Delta_{(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} \right] + \Delta t I_{a,g} \\+ \frac{\Delta t D}{\Delta y^2} \left[\Delta_{(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m+1} - 2\Delta_{(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m} + \Delta_{(a,g)} \overset{n-\frac{1}{2}}{m-1} \right] \end{cases}$$
(4.11)

L'expression (4.10) est de forme implicite à cause de son terme de troisième ordre. Étant donné que l'algorithme FDTD nécessite l'utilisation des valeurs de champ aux instants $(n+1)\Delta t$ (composante nouvelle) et $n\Delta t$ (composante ancienne), il devient indispensable d'employer des méthodes spécifiques pour la résolution comme le prédicteur-correcteur [4]. Dans cette référence sur l'interaction d'une impulsion avec un atome à deux niveaux, il a été constaté que le processus converge en 3-4 itérations avec une erreur relative imposée à 10^{-5} entre deux valeurs calculées successives. D'une manière générale, les schémas implicites sont souvent inconditionnellement stables. Dans notre résolution des équations Maxwell-Bloch, nous utilisons la méthode de Newton-Raphson afin de déterminer le champ électrique inconnu E_m^{n+1} [117]. Cette méthode itérative pour prédire la racine de n'importe quelle fonction est extrêmement efficace.

En ré-écrivant la seconde expression du système d'équations de (4.10), nous avons obtenu la fonction suivante simplifiée :

$$\frac{\gamma \,\Delta t}{8} \,x^3 + \frac{3\gamma \Delta t}{8} E_m^n \,x^2 - A \,x + B = 0 \tag{4.12}$$

où $x = E_m^{n+1}$ est la variable à déterminer, E_m^n est connue, A et B sont des constantes

données par :

$$A = 1 + \frac{\Delta t}{2} l_0 - \frac{3\gamma \Delta t}{8} \left(E_m^n \right)^2$$

$$B = \left(1 - \frac{\Delta t}{2} l_0 \right) E_m^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta y} \left[H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_{m-\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} \right] - \frac{\Delta t}{\varepsilon T_{2,g}} \rho_{a,g} \frac{n+\frac{1}{2}}{m} \qquad (4.13)$$

$$+ \frac{\Delta t}{\varepsilon} \frac{\Gamma_g N_g \mu_g \omega_0}{\varepsilon} \rho_{b,g} \frac{n+\frac{1}{2}}{m} - \frac{\Delta t}{\varepsilon T_{2,a}} \frac{\Gamma_a N_a \mu_a}{\varepsilon T_{2,a}} \rho_{a,a_m}^{n+\frac{1}{2}} + \frac{\Delta t}{\varepsilon} \frac{\Gamma_a N_a \mu_a \omega_0}{\varepsilon} \rho_{b,a} \frac{n+\frac{1}{2}}{m}$$

La solution de l'expression (4.12) est déterminée à partir du processus itératif donné par (4.14) jusqu'à atteindre la convergence. Nous avons fixé comme critère de convergence une valeur de 10^{-8} . La convergence est obtenue dans notre cas après 3 ou 4 itérations.

$$x_{j+1} = x_j - \frac{f(x_j)}{f'(x_j)}$$
(4.14)

où f(x) est la fonction donnée par (4.12), f'(x) est la dérivée de f(x), x_{j+1} et x_j sont deux valeurs consécutives du champ électrique.

Pour la simulation de la structure, nous avons implémenté les équations de Maxwell-Bloch avec les paramètres physiques et géométriques donnés dans le tableau 4.1. Nous avons changé les paramètres de simulation par rapport aux tableaux 3.1 et 3.2 afin de respecter les conditions de verrouillage de modes et de prendre en compte l'effet du SIT $(T_1 \ll T_{rt})$, où T_{rt} est le temps d'un aller-retour dans la cavité. Ces paramètres sont identiques à ceux décrits dans [118].

Paramètre	Symbole	Valeur
Indice de réfraction	n	3.2
Temps de relaxation longitudinal	$T_1 (ps)$	1
Temps de relaxation transversal	$T_2 (\mathrm{ps})$	0.1
Longueur d'onde	$\lambda \; (\mu { m m})$	6,2
Longueur de cavité	$L \ (mm)$	3
L'épaisseur de la période	L_p (Å)	580
L'épaisseur de l'absorbant saturable	L_a (Å)	1160
Constante de diffusion	$D (\mathrm{cm/V/s})$	46
Constante d'absorbant	$\gamma ~({ m cm/V^2})$	0 à 1,9 10^{-11}
Facteur de confinement de QCL	Γ_g	0,96
Facteur de confinement d'absorbant	Γ_a	0,04

TABLE 4.1 – Paramètres physiques utilisés en simulation.

Afin d'obtenir la transparence auto-induite, l'impulsion initiale doit avoir une forme d'une sécante hyperbolique [71], [78]. Cette fonction est donnée par :

$$E(t) = E_0 \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau_p}\right) \sin(\omega t) \tag{4.15}$$

où $\tau_p = 50$ fs est la largeur de l'impulsion, E_0 est l'amplitude de l'impulsion et ω est la fréquence angulaire de la porteuse prise égale à la fréquence de transition radiative du QCL. L'amplitude est déterminée à 5,18 10⁶ [V/m] pour présenter une impulsion π dans la zone de gain et une impulsion 2π dans les zones absorbantes. Cette impulsion est représentée sur la figure 4.3.



FIGURE 4.3 – Forme de l'impulsion initiale pour la structure SIT.

4.1.3 Résultats de simulation

Les simulations du verrouillage de modes passif basé sur l'effet SIT sont réalisées pour différentes valeurs du taux de pompage et coefficient d'absorption non-linéaire. Pour $\bar{g}_n = 2,5$ donnant un taux de pompage $I_g = 2,5 I_{gth}$, \bar{a}_n est choisi à une valeur de 2,01 afin de respecter les conditions de stabilité décrites par l'équation (4.5). Pour le coefficient d'absorbant saturable variant de 0 à 1,9.10⁻¹¹ m/V², les résultats simulation après 600 aller-retour sont représentés sur la figure 4.4. Les relevés temporels du champ électrique montrent la génération d'une seule impulsion par aller-retour de période égale à environ 66 ps. Ceci est équivalent au temps d'un aller-retour dans la cavité.

Pour $\gamma = 1, 9.10^{-11} \text{ m/V}^2$, l'impulsion présente un pic de 13, 4 MV/m et la largeur à mi-hauteur de l'impulsion est estimée à 42, 6 fs. Ces valeurs sont sensibles au coefficient d'absorption non-linéaire.



FIGURE 4.4 – Résultat de simulation pour $\bar{g}_n = 2, 5$, $\bar{a}_n = 2$ et (a)-(b) $\gamma = 0$ m/V², (c)-(d) $\gamma = 1,9 \ 10^{-11}$ m/V² et (e)-(f) $\gamma = 10^{-11}$ m/V². Profil du champ électrique (gauche) et zoom sur une impulsion (droite).

Pour analyser l'effet de la non-linéarité de l'absorbant saturable sur l'impulsion générée, plusieurs simulations ont été effectuées en faisant varier la valeur de γ . Le tableau 4.2 résume l'amplitude du champ électrique, la largeur à mi-hauteur et de la période des impulsions générées en fonction de ce coefficient d'absorption. Lorsque γ est augmenté à 10^{-11} m/V², l'amplitude maximale du champ électrique augmente d'environ 20 % par rapport au cas initial où γ à 0 et la période diminue légèrement. L'augmentation de γ à 1,9 10^{-11} m/V² implique une augmentation de l'amplitude crête du champ électrique de 40% et s'accompagne d'une diminution de la largeur à mi-hauteur à 42,5 fs. Ainsi, les impulsions stables deviennent moins intenses et plus larges quand γ diminue. Pour illustrer cette variation, nous avons représenté sur la figure 4.5 le pic du champ électrique et la durée de l'impulsion en fonction du coefficient d'absorption non-linéaire. Dans ce verrouillage de modes stable, nous remarquons une variation quasi-linéaire du maximum du champ électrique et une réduction de la largeur de l'impulsion qui s'accentue avec celle de γ .

$\gamma (m/V^2)$	E (MV/m)	FWHM (ps)	période (ps)
$1,9 \ 10^{-11}$	13,42	42,6	65,95
10^{-11}	$10,\!57$	48,9	66
0	9,11	$54,\!3$	66,03

TABLE 4.2 – Caractéristiques des impulsions obtenues.



FIGURE 4.5 – Champ électrique maximum et durée de l'impulsion en fonction de γ pour $\bar{g}_n = 2, 5$ et $\bar{a}_n = 2$.

Nous avons ensuite modifié le taux de pompage \bar{g}_n à 3,5 et nous avons considéré $\bar{a}_n = 4, 2$. Sur la figure 4.6 est représentée la variation du champ maximal et la durée des impulsions pour différentes valeurs de γ . Nous remarquons que le champ maximal des impulsions générées augmente avec γ . Cependant, par rapport aux précédents résultats, l'impulsion devient instable lorsque γ est supérieur à 1,9 10⁻¹¹ m/V². Dans [78], cette limite pour les mêmes valeurs de \bar{g}_n et \bar{a}_n est d'environ 2,8 10⁻¹² m/V² dans le cas de la structure de périodes entrelacées. L'augmentation de γ de 0 à 0,9 10⁻¹¹ m/V² induit une diminution de la durée des impulsions puis la durée d'impulsion augmente au delà de cette valeur de γ .



FIGURE 4.6 – Champ maximal et durée d'impulsion en fonction de γ pour $\bar{g}_n = 3, 5$ et $\bar{a}_n = 4, 2$.

En considérant des valeurs pour lesquelles la condition de stabilité n'est pas satisfaisante, comme par exemple $\bar{g}_n = 3, 5$ et \bar{a}_n est inférieure à 2,4, la dynamique du laser devient instable. La figure 4.7a montre la formation d'ondes continues au lieu d'un verrouillage de modes stable. Pour une valeur de \bar{a}_n supérieure à la limite haute, comme par exemple $\bar{a}_n = 6, 1$, le champ électrique initial est totalement absorbé tel qu'il est illustré sur la figure 4.7b. Ainsi, à travers les résultats de simulation, les conditions de stabilité données par les expressions (4.5) sont confirmées.



FIGURE 4.7 – Résultat de simulation pour $\bar{g}_n = 3,5$ et \bar{a}_n égale à (a) 2,4 et (b) 6,1.

4.1.4 Verrouillage de modes hybride

Nous avons analysé le verrouillage de modes hybride avec cette structure. Une telle étude a été proposée dans [119] pour une structure ayant des couches de gain entrelacées avec des couches d'absorption. Nous reprenons notre structure composée de deux zones d'absorption recouvrant en sandwich les couches de gain et dont une section courte est utilisée pour l'application d'un signal RF superposé à la composante DC suivant l'équation (4.16). Dans le reste de cavité, seule la polarisation DC est appliquée (équation 4.9). Cette configuration est décrite sur la figure suivante.



FIGURE 4.8 – Structure laser pour un verrouillage de modes hybride à l'aide d'un absorbant saturable enveloppant les couches de gain.

Les paramètres utilisés pour cette simulation sont similaires à ceux donnés dans le tableau (3.2). Ceci permet de comparer les résultats de simulation avec ceux obtenus

pour le verrouillage de modes actif avec la structure simple présentée au chapitre 3. Le signal RF appliqué au niveau de la section courte module les pertes dans les deux couches simultanément. Ainsi, nous prenons en compte les deux contributions AC et DC dans les couches de gain à travers l'expression (4.16) et dans les couches de l'absorbant saturable. Dans le reste de la section, nous gardons le même paramétrage précédent avec uniquement l'application de la composante DC.

$$I_{g,RF} = I_{gth} \left(\bar{g}_n + a_m \sin(\omega_{rt} t) \right) \tag{4.16}$$

A partir de l'équation (4.6), nous pouvons définir le taux de pompage au niveau des couches de l'absorbant saturable dans la section courte par (4.17) et dans le reste de la section par (4.18).

$$I_{a,RF} = \frac{l_0 - G \ I_{g,RF} T_{1g}}{A \ T_{1a}} \tag{4.17}$$

$$I_a = \frac{l_0 - G \ I_g T_{1g}}{A \ T_{1a}} \tag{4.18}$$

Toutefois, il est nécessaire de s'assurer que l'absorption est suffisamment élevée afin d'éviter la génération de multiple impulsions par un aller-retour. Nous ne pouvons pas non plus observer l'effet du SIT pour un temps de relaxation longitudinal T_1 de 50 ps lorsqu'il devient proche du temps d'un aller-retour dans la cavité $T_{rt} = 56$ ps.

Les résultats de simulation obtenus pour un nombre d'aller-retour fixé à 200 sont représentés sur la figure 4.9. Pour ces simulations, nous avons considéré l'amplitude du signal RF a_m égal à 5 et nous avons varié le taux de pompage \bar{g}_n de 1,6 à 5. Pour $\bar{g}_n = 1, 6$, nous observons la présence d'une impulsion principale d'une durée 0.5ps mais aussi des impulsions secondaires de faibles amplitudes qui sont dues à l'effet SHB. La saturation de l'absorption quantique avec ce taux d'injection est donc faible pour limiter cet effet de SHB. Le verrouillage de modes est par contre stable pour les deux autres taux de pompage de 2 et 5 et dont le maximum du champ électrique en est proportionnel. Les résultats obtenus avec cette structure sont comparables à ceux représentés sur la figure 3.22 du chapitre 3 pour le même taux d'injection. Toutefois, il n'y a pas d'apparition d'impulsion secondaire dans cette nouvelle structure. D'un autre coté, l'augmentation du taux d'injection \bar{g}_n à 5 maintient le verrouillage de modes avec la génération d'une impulsion isolée de largeur à mi-hauteur très étroite de 74, 1 fs.



FIGURE 4.9 – Résultats de simulation pour $a_m = 5$ et \bar{g}_n égal à (a)-(b) 1,6, (c)-(d) 3 et (e)-(f) 5. Profil du champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions (droite).

Nous avons ensuite analysé l'effet de l'amplitude du signal RF sur la stabilité du verrouillage de modes en réduisant a_m à 0,5. Les simulations ont été effectuées pour des taux de pompage \bar{g}_n de 1,6 et 3 et sont représentés sur la figure 4.10. Nous observons que le verrouillage de modes stable est toujours maintenu avec la génération d'une seule impulsion par un aller-retour. L'impulsion est par contre légèrement déformée pour un taux de pompage de 1,6 et sa largeur diminue pour le taux de pompage de 3.

Nous pouvons conclure à partir des résultats obtenus que le verrouillage de modes hybride basé sur la structure étudiée permet de renfoncer le verrouillage de modes. L'effet du SHB n'est pas aussi observable que dans le cas de verrouillage de modes actif sans l'absorbant saturable. Néanmoins, il subsiste la question de la fabrication technologique de cette architecture.



FIGURE 4.10 – Résultats de simulation pour $a_m = 0,5$ et \bar{g}_n égal à (a)-(b) 1,6 et (c)-(d) 3. Profil du champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions (droite).

4.2 Verrouillage de modes passif de QCLs à base de graphène

Nous allons désormais étudier la possibilité du verrouillage de modes passif en utilisant une couche de graphène comme un absorbant saturable. Le graphène est un matériau 2D ayant une propriété d'absorption qui sature avec l'intensité de la lumière le traversant. Il est composé d'un réseau cristallin bidimensionnel d'atomes de carbone dont l'épaisseur est celle d'un unique atome de carbone. Il est considéré aujourd'hui comme l'un des absorbants saturables les plus prometteurs du fait de sa structure de bande d'énergie de type point de Dirac. Ceci signifie qu'il y aura toujours des paires électron/trou en résonance et possède un temps de relaxation ultra-rapide de l'ordre de 0,1 ps [120]. Il est également facile à manipuler expérimentalement [121]-[122].

La nature du gap fait du graphène un matériau qui absorbe la lumière sur une bande spectrale très large qui s'étend du domaine du visible au moyen infrarouge [123]. Cette propriété a été exploitée dans différentes études sur le verrouillage de modes de source lasers à différentes longueurs d'onde. Nous pouvons citer dans le proche infrarouge l'exemple du laser à fibre [54] ou à état solide [56], les diodes lasers longitudinale [124] ou à cavité verticale émettant par la surface (VCSELs) [125]. Dans la région THz, le graphe est associé à une structure de génération de peigne de fréquence avec un QCL [126] et [88]. Dans cette dernière référence, les auteurs ont démontré expérimentalement l'apport du graphène dans la génération d'un peigne de fréquence.

L'intérêt du graphène réside dans ses caractéristiques d'absorption non-linéaires. En effet, une seule couche de graphène présente une absorbance de $\alpha \pi = 2,3\%$ [127] et qui est environ cinquante fois plus élevée que l'absorption d'une couche de GaAs de même épaisseur [128]. Ainsi, l'intensité de saturation du graphène est plus faible que celle des autres matériaux semiconducteurs. Pour plusieurs couches de graphène, la transmittance T dépend du nombre N de couches suivant $T = 1 - (N\alpha\pi)$ [129]. La figure 4.11 illustre cette configuration et le schéma de transmission de la lumière par les différentes couches de graphène.



FIGURE 4.11 – Transmission sur différentes couches de graphène.

L'absorption en fonction de l'intensité lumineuse est donnée par l'équation (4.19). Elle se divise en une partie saturable α_s et une partie non saturable α_{ns} . Pour une couche de graphène, le coefficient de saturation α_s est d'environ 0,72 et le coefficient non saturable α_{ns} est de 0,13 [130]. La transmittance du graphène est quasi stable dans le moyen infrarouge [61] que ça soit pour une seule couche ou plusieurs couches. La figure 4.12 illustre la transmittance de 5 couches de graphène déposées sur un substrat de silicium dans l'intervalle de longueur d'onde entre 2 et 12 μ m. L'intensité de saturation I_s dépend de la longueur d'onde de la lumière incidente et vaut 0,2 MW.cm⁻² [131] dans le moyen infrarouge. La relation entre l'intensité et le champ électrique s'écrit $I = |E|^2 (2\eta_0/n)^{-1}$ où η_0/n est l'impédance d'onde.

$$\alpha(I) = \alpha_{ns} + \frac{\alpha_s}{1 + \frac{I}{I_s}} \tag{4.19}$$



FIGURE 4.12 – Transmittance de 5 couches de graphène dans le moyen infrarouge [131].

4.2.1 Modélisation numérique du graphène

Dans la littérature, différentes méthodes ont été proposées pour considérer les propriétés non-linéaires de l'absorption du graphène. Dans [88], la dynamique non-linéaire du graphène a été modélisée par l'approximation de l'atome à deux niveaux d'une manière équivalente à la modélisation de la structure QCL pour le peigne de fréquence THz. Dans [124], les équations de continuité décrivant la dynamique des porteurs et des photons ont été utilisées pour la modélisation du laser à semiconducteur et la couche de graphène. Dans notre modélisation, nous considérons l'interaction du champ électrique avec le graphène avec deux méthodes. La première méthode de simulation est basée sur les équations de Maxwell-Bloch conjointement pour la région de gain et la couche de graphène. Nous reprenons le système d'équations (3.8) pour les deux milieux et seul le terme ($\alpha_{ns} E$) est ajouté à la modélisation du graphène pour tenir compte des pertes non saturables. Pour le graphène, les paramètres de ces équations comme le moment dipolaire μ_a et la densité électronique N_a sont déterminés respectivement à partir des équations suivantes [88] :

$$\mu_a = \sqrt{\frac{\hbar^2 c \,\varepsilon_0 n_s}{2I_s T_{1a} T_{2a}}} \tag{4.20}$$

$$N_a = \frac{2\alpha_s T_{1a} I_s}{\hbar\omega_0} \tag{4.21}$$

avec n_s l'indice de réfraction du graphène.

Pour la deuxième méthode de simulation, nous considérons l'équation de Maxwell-Ampère dans laquelle la conductivité est déterminée à partir du coefficient d'absorption non-linéaire. Ces équations pour le graphène sont les suivantes :

$$\frac{\partial H_x}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_z}{\partial y}$$

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_s} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{\sigma(I)}{\varepsilon_s} E_z$$

$$\sigma(I) \approx \frac{2n_s}{\eta_0} \alpha(I)$$
(4.22)

où ε_s est la constante diélectrique du graphène et $\sigma(I)$ est la conductivité en fonction de l'intensité lumineuse [124].

L'approximation de la conductivité est ici justifiée par la faible valeur de $\omega \tau$, où τ le temps de collision, au fréquence du moyen infrarouge. En effet, le modèle le Drude donne la conductivité d'un matériau en fonction de la fréquence. Dans ce modèle, la conductivité est complexe et est proportionnelle au terme $(1 - j\omega\tau)$. Pour les fréquences du moyen infrarouge et la grande mobilité des porteurs dans le graphène, la conductivité est réelle. En introduisant cette conductivité dans la seconde expression du système d'équation 4.22, nous obtenons :

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_s} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{2n}{\varepsilon_s \eta_0} \left(\alpha_{ns} + \frac{\alpha_s}{1 + \frac{I}{I_s}} \right) E_z \tag{4.23}$$

En remplaçant les termes d'intensité par les termes en champ électrique, l'expression devient :

$$\frac{\partial E_z}{\partial t} = -\frac{1}{\varepsilon_s} \frac{\partial H_x}{\partial y} - \frac{2n}{\varepsilon_s \eta_0} \left[\alpha_{ns} + \frac{\alpha_s}{1 + \left| \frac{E_z}{E_s} \right|^2} \right] E_z \tag{4.24}$$

4.2.2 Discrétisation des équations

Pour la FDTD, la discrétisation des équations (4.22) et (4.23) est appliquée pour les composantes temporelle et spatiale. Dans ce développement, le champ électrique du terme entre parenthèse de l'équation (4.24) est considérée par sa valeur moyenne. Ceci conduit au système d'équations suivant :

$$H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} = H_{m+\frac{1}{2}}^{n-\frac{1}{2}} - \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta y} \left(E_{m+1}^n - E_m^n \right)$$

$$E_m^{n+1} = \frac{1}{B} \left[A \ E_m^n - \frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta y} \left(H_{m+\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} - H_{m-\frac{1}{2}}^{n+\frac{1}{2}} \right) \right]$$
(4.25)

avec :

$$A = 1 - \frac{n}{\varepsilon\eta_0} \Delta t \left[\alpha_{ns} + \alpha_s \left(1 + \left(\frac{E_m^n + E_m^{n+1}}{2E_s} \right)^2 \right)^{-1} \right]$$
$$B = 1 + \frac{n}{\varepsilon\eta_0} \Delta t \left[\alpha_{ns} + \alpha_s \left(1 + \left(\frac{E_m^n + E_m^{n+1}}{2E_s} \right)^2 \right)^{-1} \right]$$

Le développement du carrée de la composante moyenne du champ électrique donne le terme $(E_m^{n+1})^2$ rendant la résolution directe de l'équation impossible. Il devient nécessaire, comme dans le cas du développement avec l'effet SIT, d'utiliser une méthode numérique adaptée. Nous avons implémenté la méthode du point fixe pour sa simplicité de mise en oeuvre en s'affranchissant de déterminer la dérivée contrairement à la méthode de Newton-Raphson. La méthode du point fixe consiste en une résolution itérative des équations non-linéaires de la forme [125] :

$$x = g(x) \tag{4.26}$$

où la variable x est égale à E_m^{n+1} et est considérée le point fixe de g(x). Cela revient à approcher les zéros de la fonction f(x) donnée par (4.14). Le principe de cette méthode est décrit en annexe E.

4.2.3 Résultats de simulation

Les paramètres de simulation utilisés pour le QCL sont ceux indiqués dans le tableau 3.2 et ceux du graphène sont donnés dans le tableau 4.3. Le graphène est considéré par un seul pas spatial ce qui nous amène à diviser les deux composantes de l'absorption non-linéaire de l'expression (4.19) par le pas spatial $\Delta y = 31$ nm.

Paramètre	Symbole	Valeur
Épaisseur	d~(nm)	31
Coefficient d'absorption saturée	$\alpha_s \ (m^{-1})$	$\frac{0,72}{d}$
Coefficient d'absorption non-saturée	$\alpha_{ns} \ (m^{-1})$	$0, 13 \ d^{-1}$
Intensité de saturation	$I_{s} \ (Wm^{-1})$	$0, 2 \ 10^{10}$
Temps de relaxation longitudinal	T_{1a} (fs)	150
Temps de relaxation transversal	T_{2a} (fs)	100
Indice de réfraction	n_s	3,2

TABLE 4.3 – Paramètres physiques du graphène dans le moyen infrarouge.

La figure 4.13 représente la configuration du QCL à verrouillage de modes passif intégrant la couche de graphène. La longueur totale de la cavité laser est de 2,6 mm et le graphène est positionné sur la face droite du laser. Dans la région à gain, nous appliquons les mêmes conditions d'injection que dans le cas du verrouillage de modes passif décrit dans le chapitre précédent.



FIGURE 4.13 – Structure du las er pour le verrouillage de modes passif à base de graphène.

Pour un taux de pompage dans la région à gain $a_p = 1, 1$, les impulsions ne sont pas générées due à l'absorption de la couche du graphène. La valeur du taux de pompage pour laquelle le verrouillage de modes se stabilise est $a_p = 1, 3$. Nous avons reporté sur la figure 4.14 les résultats obtenus pour un taux de pompage $a_p = 1, 6$ en considérant le graphène avec les deux modèles décrits par les équations de Maxwell-Bloch (2.46) et les équations de Maxwell-Ampère (4.22). Les amplitudes et les formes des impulsions obtenues avec les deux méthodes sont similaires. Nous observons un léger écart temporel d'environ 1 ps entre les deux impulsions. En comparaison avec les résultats de la section 3.3, l'amplitude du champ électrique est plus importante et la durée de l'impulsion est réduite.

Lorsque nous augmentons les rapports de pompage jusqu'à $a_p = 2$, nous observons une différence sur les résultats de simulation entre les deux modèles du graphène. Comme représenté sur la figure 4.15, l'amplitude du champ électrique avec les équations de Maxwell-Bloch est égale à la moitié de celle obtenue avec les équations de Maxwell-Ampère. Avec ce modèle, nous pouvons remarqué que l'amplitude de l'impulsion augmente avec le taux d'injection. Ainsi, la dynamique du laser avec les équations de Maxwell-Bloch est largement affectée par les valeurs des paramètres physiques du graphène (le temps de relaxation, l'élément de la matrice dipolaire et la densité d'atome). Nous utiliserons dans la suite uniquement les équations de Maxwell prenant en compte la conductivité du graphène en fonction de l'intensité du champ électrique.



FIGURE 4.14 – Résultats de simulation du verrouillage de modes passif utilisant le graphène comme absorbant saturable pour $a_p = 1,61$ selon deux méthodes de modélisation.



FIGURE 4.15 – Résultats de simulation du verrouillage de mode passif utilisant le graphène comme absorbant saturable pour $a_p = 2$ selon deux méthodes de modélisation.

4.3 Miroir absorbant saturable à base de graphène

4.3.1 Structure du miroir

Comme décrit dans le chapitre 1, une structure largement utilisée dans le verrouillage de modes des sources à semiconducteur est le SESAM. Nous avons décrit son principe et son rôle dans la section 1.5.6. L'association d'une couche de graphène au miroir réfléchissant crée un miroir spécifique avec un effet absorbant saturable que nous décrivons par GSAM (Graphène Saturable Absorber Mirror) [125]. Nous reprenons cette structure qui est décrite sur la figure 4.16 et dont cette fois-ci l'emplacement est sur la face gauche du laser. Nous avons considéré un réseau formée de 4 couches de séléniure de plomb polycristallin (PbSe) et 3 couches de fluorure de baryum (BaF_2) . Ce qui fait une alternance de 4 couches de forte indice avec trois couches de faible indice. L'épaisseur de chaque couche est fixée en fonction de son indice et de la longueur d'onde tel que $L_i = \frac{\lambda}{4 n_i}$, avec $i = PbSe, BaF_2$. Une couche de SiO_2 est insérée entre le graphène et le réseau de Bragg afin de contrôler les pertes non saturées du graphène en fonction de son épaisseur. Nous prendrons initialement une épaisseur de $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{4 n_{SiO_2}}$. La structure choisie permet d'augmenter l'intensité du champ électrique au niveau du graphène jusqu'à 400 % du fait de l'interférence entre le faisceau incident et réfléchi au niveau du miroir [125].



FIGURE 4.16 – Configuration de la structure du laser pour le verrouillage de modes passif à base de GSAM.

Nous avons effectué des simulations afin de visualiser le recouvrement entre le champ électrique et la couche du graphène. Plusieurs méthodes sont utilisées pour déterminer la réflexion d'un champ électrique sur un réseau de Bragg. Nous avons utilisé la méthode de matrice de transfert qui représente une méthode plus simple et efficace [132]. En reprenant les dimensions des différentes couches de la structure précédentes, nous avons obtenu les résultats représentés sur la figure 4.17. Le point x = 0 est l'emplacement du graphène au début de la cavité laser. Le champ électrique est injectée du coté droit de la figure. Nous constatons que le maximum de l'intensité (carré du champ électrique), à travers l'onde stationnaire, est au niveau de la couche du graphène. L'interaction entre le champ électrique et l'absorbant saturable est donc maximale. Nous remarquons aussi que le miroir est de haute réflectivité par l'absence de la transmission du champ électrique vers l'air (indice égale à 1 à gauche de la figure).



FIGURE 4.17 – Miroir à réseau de Bragg intégrant le graphène $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{4 n_{SiO_2}}$. Champ électrique et indice de réfraction.

4.3.2 Résultats de simulation

Comme dans le cas de la structure précédente, le graphène est considéré avec un pas spatial et est modélisé par l'équation de Maxwell-Ampère. Les épaisseurs des autres couches sont plus élevées que le pas spatial ce qui lève toute contrainte sur la discrétisation du réseau. En effet, l'épaisseur de la couche ayant l'indice de réfraction le plus élevé $(n_{PbSe} = 5)$ est de 310 nm. La figure 4.18 regroupe les résultats de simulation du verrouillage de mode passifs du laser intégrant un GSAM pour les taux de pompage a_p de 1,1 et 1,6 de la valeur au seuil donnée par l'équation (3.7). Nous observons la génération d'une seule impulsion par aller-retour pour ces deux taux de pompage. Les pertes du laser sont réduites par le miroir à forte réflectivité permettant d'assurer un verrouillage de modes stable pour $a_p = 1, 1$. L'amplitude du champ électrique augmente avec le taux de pompage.



FIGURE 4.18 – Résultats de simulation pour (a)-(b) $a_p = 1, 1$ et (c)-(d) $a_p = 1, 6$. Profil du champ électrique (gauche) et fenêtre temporelle contenant cinq impulsions (droite).

Ces résultats montrent de meilleures performances que les résultats obtenus avec le verrouillage de modes par application d'un signal RF (figure 3.8d). En effet, l'amplitude du champ électrique avec le GSAM est plus élevée pour $a_p = 1, 1$ proche du seuil du laser. L'effet de SHB est également négligeable car l'absorbant saturable réduit fortement les

faibles amplitudes du champ électrique.

En augmentant le taux de pompage à 2 fois le seuil laser, une seconde impulsion de forte amplitude apparaît ce qui renseigne sur la saturation du graphène. L'effet de SHB n'est plus éliminé par l'absorbant saturable et l'instabilité du verrouillage de modes devient compromise. Cet effet est d'autant accentué pour un taux d'injection a_p de 2,5. Ces résultats sont illustrés sur la figure ci-dessous.



FIGURE 4.19 – Résultat de simulation pour a_p égal à (a) 2 et (b) 2.5. Profil de champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions (droite).
4.3.3 Méthode de Maloney pour le graphène

La couche de graphène possède une épaisseur d'un atome de carbone ce qui représente une valeur de 0, 33 nm [55]-[133]. Ainsi, pour modéliser le graphène sur un pas spatial à l'échelle réelle avec la méthode FDTD, il est nécessaire d'utiliser un maillage très fin. L'impact sur sur le temps de calcul est considérable. Plusieurs méthodes ont été proposées pour modéliser des couches minces avec la FDTD et parmi elle la méthode de Maloney. Cette méthode a été utilisée pour la modélisation d'une couche de graphène déposée sur une antenne [134].

Nous appliquons cette méthode à la structure GSAM afin de valider la résolution numérique employée pour la couche du graphène. La formulation de la méthode est décrite sur la figure 4.20. Un pas spatial, qui représente une cellule 1D-FDTD, est fractionné en une sous-couche mince modélisant le graphène et le reste de la cellule un matériau voisin. Nous avons considéré le SiO_2 et non pas le QCL dans cette implémentation. Ainsi, l'épaisseur de la couche du graphène correspondant à une portion de $\frac{L_{gr}}{\Delta_y}$ de la cellule et le reste de la cellule représente le SiO_2 . Cette faible épaisseur n'influe pas sur l'épaisseur totale de L_{SiO_2} .



FIGURE 4.20 – Schéma équivalent de la couche de graphène utilisant la méthode de Maloney

La conductivité non-linéaire σ_M de la sous-cellule est donnée en fonction de la conductivité du graphène $\sigma(I)$ par :

$$\sigma_M = \left(\frac{L_{gr}}{\Delta_y}\right)\sigma(I) \tag{4.27}$$

La permittivité ε_M de la sous-cellule est donnée en fonction des permittivités du graphène et du SiO_2 par :

$$\varepsilon_M = \left(1 - \frac{L_{gr}}{\Delta_y}\right) \varepsilon_0 \varepsilon_{L_{SiO_2}} + \left(\frac{L_{gr}}{\Delta_y}\right) \varepsilon_0 \varepsilon_s \tag{4.28}$$

Une fois le paramétrage précisés et l'épaisseur du graphène fixée à 0,33 nm, les résultats de simulation du verrouillage de modes passif du QCL intégrant le GSAM sont représentés sur la figure 4.21. Nous pouvons observer que le verrouillage de modes est stable pour a_p égale à 1,6 et 2. Lorsque $a_p = 3$ et au delà, des impulsions secondaires apparaissent ce qui affecte considérablement la stabilité du verrouillage de modes.

En comparant ces résultats aux résultats précédents décrits sur les figures 4.18 et 4.7, une différence réside au niveau de l'apparition de l'instabilité en fonction du taux d'injection.



FIGURE 4.21 – Résultat de simulation pour a_p égal à (a) 1,6, (b) 2 et (c) 3. Profil de champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions (droite).

4.3.4 Influence de l'emplacement de la couche du graphène

Le recouvrement entre l'emplacement du graphène et le maximum de l'intensité optique est un paramètre important pour cette structure. La démonstration de l'influence de ce chevauchement a été étudié dans [125]. Il est intéressant aussi de faire la même analyse pour le QCL ayant des paramètres physiques très éloignés de ceux d'un laser à semiconducteur.

Afin de quantifier l'intensité du champ à une distance y du miroir, le paramètre $\xi(y)$ qui représente le facteur d'amélioration en intensité du champ a été défini par le rapport suivant :

$$\xi(y) = \frac{|E_{inc}(y) + E_{ref}(y)|^2}{|E_{inc}(y)|^2}$$
(4.29)

avec $E_{inc}(y)$ et $E_{ref}(y)$ sont respectivement les champs incident et réfléchi à la position y du miroir.

En introduisant les expressions de propagation de ces champs électriques et en développant ce rapport sur une interface SiO_2/air [125], la relation du facteur d'amélioration en intensité s'écrit à la position $y = L_{SiO_2}$ par :

$$\xi_{\rm ab}\left(L_{\rm SiO_2}\right) \approx \frac{4}{1 + n_{\rm SiO_2}^2 \cot^2\left(\frac{2\pi}{\lambda} n_{\rm SiO_2} L_{\rm SiO_2}\right)} \tag{4.30}$$

Ainsi, l'absorbance de la couche de graphène devient $\alpha \pi \xi_{ab}$ et ceci donne une estimation de l'absorption globale en fonction de l'épaisseur de la couche du SiO_2 . Pour $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{4n_{SiO_2}}$, le facteur d'amélioration est égale à 4 ce qui un produit $\xi_{ab} \times 2, 3\%$ de 9,2% ce qui représente une augmentation de 400%. Lorsque $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{8n_{SiO_2}}$, le produit $\xi_{ab} \times 2, 3\%$ est de 2,83%. L'absorption du graphène est proche de zéro pour $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{2n_{SiO_2}}$. La figure ci-dessous illustre le recouvrement nul du maximum de l'intensité du champ électrique et la couche de graphène.



FIGURE 4.22 – Miroir à réseau de Bragg intégrant le graphène pour $L_{SiO_2} = \frac{\lambda_n}{2}$. Champ électrique et indice de réfraction.

Nous avons ensuite effectué les simulations à partir de l'analyse précédente pour deux épaisseur de la couche SiO_2 . Les figures 4.23a et 4.23b représentent les résultats de ces simulations. Nous observons que par rapport à l'emplacement optimal de la couche du graphène pour une épaisseur $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{4n_{SiO_2}}$ (figure 4.21a et 4.21b), la génération d'une impulsion par aller-retour n'est pas obtenue. Avec une épaisseur $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{8 n_{SiO_2}}$, une seconde impulsion de forte intensité est générée mais pour $L_{SiO_2} = \frac{\lambda}{2 n_{SiO_2}}$ le verrouillage de modes est complètement perdu et le QCL génère plutôt une onde continue.



FIGURE 4.23 – Résultat de simulation du verrouillage de modes passif $a_p = 1, 6$ en fonction de l'épaisseur de la couche SiO_2 de (a) $\frac{\lambda_n}{8}$ et (b) $\frac{\lambda_n}{2}$.

4.3.5 QCL avec une transition verticale

Les résultats décrits ci-haut ont été obtenus avec les paramètres physiques d'un QCL basé sur une transition radiative diagonale pour lequel le temps de relaxation longitudinal est de 50 ps. Pour un laser ayant une transition verticale, le temps de relaxation est de l'ordre du picoseconde ce qui très inférieure au temps d'un aller-retour de photons dans la cavité. Nous avons réduit le temps de relaxation T_1 à 5 ps afin d'analyser les performances de ce type de structure.

La figure 4.24 montre les résultats de simulation pour $a_p = 1, 1$ où de multiple impulsions par aller-retour sont générées. L'amplitude de ces impulsions est assez importante malgré cette instabilité. Le temps de recouvrement de gain est assez faible afin de limiter l'effet SHB. Par comparaison aux résultats du verrouillage du modes actif représenté sur la figure (3.9) pour les mêmes paramètres, nous remarquons un effet quasisimilaire à l'exception de la non présence des faibles amplitudes qui sont complètement absorbées par le graphène. Les fortes amplitudes des différentes impulsions générées qui ne sont pas absorbées par le graphène.



FIGURE 4.24 – Résultat de simulation pour $a_p = 1.1$ et $T_1 = 5$ ps (a) profil de champ électrique complet et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq périodes d'un aller-retour.

Afin de limiter l'effet du SHB, il est possible d'intervenir directement sur la formation du réseau de gain au niveau de la cavité. Étant donné que cette modulation du profil de gain est due aux ondes stationnaires, la réduction de la longueur de la cavité permet une modification. En réduisant la longueur de la cavité à 2 mm, nous observons sur la figure 4.25 l'existence d'une seule impulsion par aller-retour pour un taux de pompage $a_p = 1, 1.$



FIGURE 4.25 – Résultat de simulation pour $a_p = 1.1$, $T_1 = 5 ps$ et L=2 mm (a) profil de champ électrique total et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq périodes d'un aller-retour.

4.4 Amélioration du verrouillage de modes actif par l'utilisation du graphène

Nous avons reporté dans le chapitre précédent, les limitations du verrouillage de modes actif notamment un pompage DC proche du seuil du laser. Dans cette section, nous étudierons l'influence d'une couche de graphène placée à l'extrémité de la cavité sur le verrouillage de modes actif. L'objectif consiste à générer de fortes intensités lumineuses et d'absorber celles de plus faibles intensités et dans ce cas diminuer l'effet de SHB.

Pour cela, nous utiliserons l'équation (3.8) pour le QCL et l'équation (4.22) pour le graphène. La configuration de la structure est décrite sur la figure ci-après dans laquelle les mêmes dimensions des différentes sections ont été maintenues.



FIGURE 4.26 – Configuration de la structure du laser pour le verrouillage de mode actif avec le graphène.

Les paramètres de simulation utilisés pour cette structure sont identiques à ceux donnés dans le tableau 3.2 pour le QCL et le tableau 4.3 pour le graphène. Dans cette structure, nous avons donc à la fois le verrouillage de modes actif et le verrouillage de mode passif.

Les résultats de simulation sont représentés sur la figure 4.27 pour trois valeurs de pompage DC et un taux de modulation $a_m = 5$. Nous observons pour $a_p = 1, 6$ le maintien du verrouillage de modes en présence d'une couche de graphène contrairement au cas du verrouillage de modes actif sans graphène (figure 3.5). La couche de graphène absorbe l'énergie latérale des impulsions apparaissent à cause de l'effet de SHB. Le verrouillage de modes reste stable jusqu'à $a_p = 2$ et qui s'accompagne d'une augmentation de l'amplitude du champ électrique. Cette augmentation est d'environ 25% contre 40 % obtenue pour le verrouillage de modes hybride décrit à la section 3.3.3. Pour $a_p = 3, 5$, une deuxième impulsion apparaît avec une intensité permettant de saturer le graphène. Lorsque a_p augmente davantage, de multiple impulsions par aller-retour régisse la dynamique du laser.



FIGURE 4.27 – Résultat de simulation pour $a_m = 5$ et a_p de (a)-(b) 1,1, (c)-(d) 1,6 et (e)-(f) 3,5. Profil du champ électrique (gauche) et une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions (droite).

Nous avons ensuite diminué le taux d'injection de la composante RF a_m à 0,5 et effectué plusieurs simulations en fonction du taux d'injection a_p . Nous présentons sur la

figure (4.28) les résultats de simulation obtenus pour $a_p = 1.6$ pour lesquels une seule impulsion par un aller-retour est obtenu avec ce faible taux d'injection. Le résultat est relativement proche de celui obtenu avec $a_m = 5$ et la même valeur de a_p . Ainsi, l'utilisation d'une couche de graphène permet d'augmenter l'efficacité du verrouillage de modes actif en termes de puissance RF injectée. L'intérêt d'utiliser le graphène est la possibilité d'augmenter le taux d'injection au delà de ce qui possible avec le verrouillage de modes actif tout en réduisant le taux de modulation.



FIGURE 4.28 – Résultat de simulation pour $a_m = 0, 5$ et $a_p = 1, 6$ (a) profil de champ électrique et (b) une fenêtre temporelle contenant cinq impulsions.

4.5 Conclusion

Nous avons montré la possiblité de réaliser un verrouillage de modes passif à base de l'effet SIT. Cette étude a repris une structure dont la région de gain est entrelacée avec une région assurant l'effet SIT. Nous avons proposé une simplification de celle-ci en y gardant que deux couches de part et d'autres de la région de gain. A travers les nombreuses simulations, nous avons obtenu des résultats comparables à ceux obtenus avec la structure initiale mais avec des conditions de paramétrage différentes.

Nous avons ensuite étudié une structure intégrant une couche de graphène. Les propriétés intéressantes en termes d'absorption non-linéaire du graphène permet de l'envisage comme un absorbant saturable pour le verrouillage de modes. Le graphène mono-couche possède des dimensions très faible ce qui nous a amené à investiguer trois méthodes de modélisation. La première méthode considère les équations de Maxwell-Bloch d'une manière similaire à celles utilisées pour le QCL. Les paramètres d'entrée de ce modèle ont été déterminée à partir de l'absorption non-linéaire au moyen infrarouge. Ce modèle nécessite par contre d'autres données plus précises des paramètres physiques comme par exemple le temps de relaxation. La deuxième méthode consiste à modéliser le graphène par les équations de Maxwell en prenant en compte la conductivité nonlinéaire du graphène en fonction de la lumière absorbée. La troisième méthode est basée sur la modélisation des couches minces ayant des épaisseurs très inférieures au pas de discrétisation spatial afin de relâcher les contraintes de temps de calcul. ainsi, nous avons montré un verrouillage de modes stable avec le graphène pour les QCLs ayant un temps de relaxation élevé. Pour les QCls à faible temps de relaxation, la génération de multiple impulsions est maintenue avec la couche de graphène.

L'utilisation d'un miroir à haute réflectivité associé au graphène a permis d'augmenter l'intensité du champ électrique dans la cavité tout en gardant une bonne stabilité. Nous avons également montré une amélioration du verrouillage de modes actif en introduisant une couche graphène. Le QCL ne fonctionne pas uniquement proche du seuil laser mais à des taux injections plus élevé ce qui a pour effet d'augmenter l'intensité et d'avoir une flexibilité sur le choix du aux de pompage.

Conclusion et perspectives

Le principal objectif de cette thèse est l'étude de faisabilité du verrouillage de modes passif de lasers à cascade quantique moyen infrarouge en intégrant du graphène. Pour menée cette étude de faisabilité, une modélisation numérique de lasers à cascade quantique a été développée avec le formalisme de l'atome à deux niveaux. L'interaction du champ électromagnétique, dans notre cas une impulsion ultra-brève, avec ce modèle de l'atome à deux niveaux est décrite par les équations de Maxwell-Bloch. La résolution numérique de ces équations a été réalisée avec la méthode de différence-finie dans le domaine temporelle ou FDTD. Sachant que cette méthode requiert une discrétisation spatio-temporelle nécessitant des ressources matériels conséquentes, l'intérêt de son utilisation est multiple. D'une part, elle s'affranchit de l'utilisation d'une implémentation numérique mettant en oeuvre une onde progressive et une autre régressive dans la structure afin de simuler une onde stationnaire. Cela rend l'implémentation plus simple avec une simple description des conditions initiales et les conditions aux limites. D'autres part, la prise en compte du champ électromagnétique temporelle sans avoir recours aux méthodes d'approximation. Un dernier point qui peut être intéressant mais qui n'a pas été traité dans ce travail concerne la simulation d'une structure 2D afin de considérer le profil de mode optique se propageant dans la cavité laser. Cela rend l'interaction avec le graphène mieux évaluée et également la prise en compte de la diffusion latérale des porteurs sachant qu'elle n'est pas fortement contraignante pour ce type de laser.

Nous avons appliqué les outils développés dans cette étude au verrouillage de modes d'une cavité à deux sections. Nous avons commencé par le verrouillage de modes actif qui représente le moyen le plus efficace de génération des impulsions ultra brèves dans le moyen infrarouge. Nous avons validé nos résultats avec les ceux publiés en littérature pour un QCL à transition diagonale. Nous avons aussi simulé le verrouillage de modes passif de QCLs intégrant un absorbant saturable réalisé avec le même matériau que le milieu à gain. L'absorbant saturable diffère du milieu à gain par la matrice densité qui est deux fois supérieure. Cela se traduit concrètement par des épaisseurs des puits quantiques différentes ce qui rend cette configuration non réalisable en structure monolithique mais peut l'être en structure hybride. Ensuite, nous avons combiné les deux méthodes pour simuler le verrouillage de modes hybride. Cette technique permet de diminuer l'effet du spatial hole burning pour les forts courants d'injection et le verrouillage de modes reste stable pour des faibles amplitudes RF.

L'ensemble des validations de l'outil de simulation développé nous a permis d'avoir une meilleure compréhension des phénomènes physiques résidant de l'interaction d'une onde ultra brève et le milieu non linéaire. Nous avons proposé une structure moins complexe à réaliser pour le verrouillage de modes passif basé sur l'effet de la transparence auto-enduite. Dans cette configuration, le milieu à gain est confiné entre deux couches d'absorbant saturable contrairement à la structure entrelaçant les deux milieux constituée d'une couche d'absorbant intégrée après quatre périodes à gain du QCL. Le résultat obtenu avec la structure simple reste identique à celui obtenu avec la structure initiale sauf que les conditions de stabilité ne sont pas identiques. La deuxième étude proposée concerne l'intégration d'une mono couche de graphène comme absorbant saturable. Le graphène est un matériau 2D dont les propriétés optoélectroniques sont très attractives pour ce type d'application. Il possède un temps de relaxation assez court et la configuration de ses bandes d'énergie lui confère une caractéristique d'absorption saturable rapide sur une très large bande spectrale. Comme l'épaisseur du graphène est un simple pas atomique, une étude spécifique de sa modélisation avec la méthode FDTD a été menée. Nous avons utilisé deux méthodes pour cette modélisation dont la première est basée sur les équations de Maxwell-Ampère en considérant la conductivité du graphène dépendante de l'intensité du champ électrique dans la cavité. La conductivité non linéaire est déterminée à partir des données expérimentales de l'absorption non linéaire. La deuxième méthode est basée sur les équations de Maxwell-Bloch, qui, décrit mieux ce type d'interaction puisque la cohérence est considérée. Après une comparaison entre ces deux méthodes, nous avons choisi d'utiliser le premier modèle car la deuxième

méthode est sensible aux paramètres physiques du graphène qui restent à déterminer expérimentalement. Le graphène a été considéré par un pas spatial et dont la conductivité a été calculée en fonction de cette épaisseur. Nous avons également utilisée la méthode de Maloney adaptée à une structure fine dont l'épaisseur est inférieure au pas spatial de la méthode FDTD. Le graphène ayant une épaisseur de 0,33 nm occupe une petite portion de la cellule FDTD et l'autre portion est complétée par le matériau de la région active ou du SiO_2 . Nous avons étudiée l'intégration du graphène sans et avec un réseau de Bragg afin de créer une structure de type GSAM (Graphène Saturable Absorber Mirror). L'utilisation d'un miroir à haute réflectivité associé au graphène permet d'augmenter l'intensité du champ électrique à l'intérieur de la cavité et ainsi exploiter l'effet de l'absorbant saturable. Avec l'intégration du graphène, nous avons observé une amélioration du verrouillage de modes actif. En effet, l'augmentation du courant d'injection loin du seuil laser a permis de maintenir la stabilité en présence du graphène. L'effet du spatial hole burning a été atténué par la nature de l'absorbant saturable. Nous avons aussi montré un verrouillage de modes passif de QCL dans le moyen infrarouge avec une transition diagonale. Les impulsions générées sont isolées et stables dans le temps. Le GSAM a permis de pousser les limites de fonctionnement en terme de courant d'injection en repoussant l'apparition du spatial hole burning. Nous avons terminé cette étude avec une structure radiative verticale du QCL qui présente une meilleure efficacité. Comme attendu pour des structures de 2 à 3 mm de long, des multiples impulsions par aller retour sont présentes à cause du faible recouvrement du gain. L'ajout du graphène n'a pas amélioré cette tendance. Par contre, pour de faibles longueurs de cavités, typiquement inférieures à 1.6 mm à la longueur d'onde de 6 μ m, la génération des impulsions isolées a été obtenue. L'absorbant saturable a permis de réduire considérable l'effet du spatial hole burning et d'assurer une stabilité du verrouillage de modes.

De nombreuses perspectives peuvent émergées suite à cette première étude. Il serait intéressant de considérer un modèle du laser plus réaliste prenant en compte les trois niveaux d'énergie pour les QCLs avec un temps de recouvrement de gain rapide. L'intérêt de ce modèle est l'utilisation du courant de désaccord et la prise en compte du temps de transit dans la zone d'injection. Le second point concerne la prise en compte de la dispersion de la vitesse de groupe. Nous ne l'avons pas considéré dans notre étude et son influence peut être non négligeable. L'implémentation de la modélisation FDTD en 2D serait intéresante pour la résolution des équations de Maxwell-Bloch afin de mieux observer l'effet de self-induced transparency et le spatial hole burning. La prise en compte du profil de gain et le recouvrement optique est nécessaire pour une telle étude. Elle serait aussi intéressante pour l'étude de l'interaction avec le graphène disposée sur la facette du QCL. L'étude d'une structure de type guide d'onde dans laquelle le graphène est déposé tout au long du guide ou sur une partie est une alternative à la configuration dans laquelle le graphène est sur une des facette. Pour la modélisation avec les équations de Maxwell-Bloch de l'interaction d'une impulsion ultra brève avec le graphène, il est nécessaire de déterminer les différents paramètres physiques. A cet effet, un aspect expérimental devient une évidence afin de déterminer ces différents paramètres mais également la démonstration des résultats obtenues dans cette étude.

Liste de mes publications

Mes travaux ont donné lieu aux publications suivantes :

- $\Box\,$ Revue internationale à comité de lecture :
 - A. Outafat, S. Faci, E. Richalot, S. Protat, and C. Algani, "Passive modelocking MIR quantum cascade laser incorporating self-induced transparency," Opt. Quantum Electron., vol. 54, no. 5, p. 283, May 2022, doi : 10.1007/s11082-022-03675-y.
 - A. Outafat, S. Faci, E. Richalot, S. Protat and C. Algani, "Active modelocking improvement of MIR-QCL by integrating graphene as a saturable absorber," in IEEE Journal of Quantum Electronics, doi: 10.1109/JQE.2022.3177220.
- \Box Conférences Nationales avec Actes :
 - 1. A. Outafat, S. Faci, E. Richalot, S. Protat, and C. Algani," Verrouillage de mode passif de laser a cascade quantique intégrant un absorbant saturable", OPTIQUE Dijon 2021, july 2021.
- \Box Journées thématiques
 - A. Outafat, S. Faci, E. Richalot, S. Protat, and C. Algani," Passive mode locking of MIR QCLs using graphene as a saturable absorber". JRS 2022, March 2022.

Annexes

Annexe A

Propriétés des impulsions

Une onde électromagnétique se propageant suivant l'axe y et polarisée suivant l'axe z s'écrit sous la forme :

$$E_z(y,t) = E_0(y,t) \ e^{i(ky-\omega t)}$$
 (A.1)

avec $E_0(y,t)$ l'enveloppe de l'onde, ω la pulsation et k le vecteur d'onde. Le passage dans le domaine fréquentiel est effectué à l'aide de la transformée de Fourier qui s'écrit :

$$\tilde{E}_z(y,\omega) = \int E_z(y,t) \ e^{-i\omega t} dt$$
(A.2)

La propagation de l'onde est décrite par l'équation de Helmoltz :

$$\frac{\partial^2 E_z(y,t)}{\partial y^2} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E_z(y,t)}{\partial^2 t} = \mu_0 \frac{\partial^2 P_z(y,t)}{\partial^2 t}$$
(A.3)

avec P_z la polarisation du matériau. Dans le domaine fréquentiel et à partir des relations suivantes :

$$\frac{\partial}{\partial t} \Leftrightarrow i\omega \quad ; \quad \frac{\partial^2}{\partial^2 t} \Leftrightarrow \omega^2$$

l'expression précédente s'écrit :

$$\frac{\partial^2 \tilde{E}(y,\omega)}{\partial y^2} + \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{E}(y,\omega) = -\mu_0 \omega^2 \tilde{P}(y,\omega) \tag{A.4}$$

avec $\tilde{P}(y,\omega) = \chi(\omega)\varepsilon_0 \ \tilde{E}(y,\omega)$. La susceptibilité s'écrit $\chi(\omega) = \varepsilon(\omega) - 1$.

Les formes de 3 types d'impulsion, spectre et produit temps bande passante sont

résumés dans le tableau suivant :

E(t)	$ ilde{E}_z$	Δt	$\Delta t \Delta f$
Gaussienne $e^{-\frac{t^2}{2\tau^2}}$	$\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \tau e^{-\frac{\tau^2}{2}\omega^2}$	$2\sqrt{\ln 2 \tau}$	0,441
Secant-Heperbolique $sech(\frac{t}{\tau})$	$\frac{\tau}{2} \operatorname{sech}(\frac{\pi}{2}\tau\omega)$	1,7626 τ	0,315
Lorentzienne $\frac{1}{1+(1/\tau)^2}$	$2\pi\tau \ e^{- \tau\omega }$	$1,287\ \tau$	0,142

TABLE A.1 – Paramètres physiques utilisés en simulation.



FIGURE A.1 – Relation de Fourier pour les impulsions Gaussienne et Secant Hyperbolique.

Annexe B

Approximation de l'enveloppe à variation lente

L'approximation de l'enveloppe à variation lente (SVEA) est utilisée pour simplifier la forme scalaire des équations de Maxwell qui décrivent la propagation d'une impulsion dans un milieu quelconque ou le vide. Cette approximation est largement utilisée dans la simulation de la dynamique des lasers en raison de la simplification des équations de propagation en négligeant toute variation rapide des champs électromagnétiques. L'équation de la propagation de l'impulsion (champ électrique) est donnée par (A.3).

En reprenant la formule du champ électrique (A.1) dans lequel $E_0(y, t)$ est l'enveloppe de l'impulsion et supposant aussi que la polarisation suit cette variation :

$$P(y,t) = P_0(y,t) e^{i(ky-\omega t)}.$$
 (B.1)

Les dérivées secondes de l'expression (A.3) s'appliquent sur l'enveloppe et le terme en exponentiel. Dans l'approximation de la variation lente de l'enveloppe ($E_0(y,t)$ et $P_0(y,t)$), nous avons les conditions suivantes :

$$\left| \frac{\partial^2 E_0(y,t)}{\partial y^2} \right| << \left| 2k \; \frac{\partial E_0(y,t)}{\partial y} \right| \\ \left| \frac{\partial^2 E_0(y,t)}{\partial t^2} \right| << \left| \omega \; \frac{\partial E_0(y,t)}{\partial t} \right|$$
(B.2)

A partir de ces approximations, A.3 devient :

$$\left[2i \ k\frac{\partial E_0(y,t)}{\partial y} - k^2 E_0(y,t) - 2i \ \omega\frac{\partial E_0(y,t)}{\partial t}\right] \ e^{i(ky-\omega t)} = -\mu_0 \omega^2 P_0(y,t) \ e^{i(ky-\omega t)}$$
(B.3)

En simplifiant les termes en exponentiel :

$$2i \ k \frac{\partial E_0(y,t)}{\partial y} - k^2 E_0(y,t) - 2i \ \omega \frac{\partial E_0(y,t)}{\partial t} = -\mu_0 \omega^2 P_0(y,t) \tag{B.4}$$

La figure (B.1) illustre la forme d'une impulsion gaussienne et son enveloppe.



 $\label{eq:Figure B.1-Impulsion gaussienne et son enveloppe.$

Annexe C

Structure du QCL intégrant le SIT

La structure du QCL utilisée pour le verrouillage de modes exploitant l'effet de la transparence auto-induite n'a pas été réalisée jusqu'à présent. En effet, la région active est confinée entre deux périodes d'absorption ce qui signifie qu'il existe des périodes qui produisent des pertes et d'autres du gain. Les électrons sont injectés dans le niveau de résonance inférieur des périodes d'absorption contrairement à la période de gain où les électrons sont injectés dans le niveau de résonance supérieur.

Dans nos travaux, nous avons proposé une structure simplifiée basée sur les travaux de Talukder [78]. Pour satisfaire les conditions de verrouillage du modes avec l'effet SIT, les temps de relaxation transversal $T_{1(a,b)}$ et longitudinal $T_{2(a,b)}$ doivent être différents dans ces deux région. De même, l'élément de la matrice densité où le moment dipolaire de la région absorbante doit être le double de celui de la région à gain. Bien que les épaisseurs des deux régions d'absorption et d'amplification ne soient pas identiques, l'énergie de transition dans les deux régions doit être égales. Une autre difficulté dans une telle structure est la fuite des porteurs dans le continuum car les électrons sont injectés dans le niveau résonnant inférieur dans les périodes d'absorption et le niveau d'énergie supérieur est suffisamment proche du bord de la bande de conduction. Cette contrainte peut être diminuée si les électrons restent au niveau supérieur pendant une demi-période d'oscillation de Rabi après l'inversion de population.

Nous avons utilisée les paramètres de la structure décrite dans [75]. Le QCL émet à 8 μ m . La figure (C.1) présente le diagramme de la bande de conduction des périodes de gain et d'absorption.



FIGURE C.1 – Configuration de la structure du laser pour la transparence auto-induite (SIT). Les séquences des épaisseurs en \mathring{A} sont : **42**, 34, **9**, 33, **12**, 30, **13**, 28, **16**, 28, **41**, 27, **18**, 62, **14**, 58, **28**, 42, **12**, 40, **13**, 37, **13**, 34, **16**, 34, **34**, 9, **31**, 50, **5**, 84. Les nombres en gras sont les matériaux $In_{0.52}Al_{0.48}As$ des barrières de potentiel et les autres sont $In_{0.53}Ga_{0.47}As$ puits quantiques [78].

Annexe D

Méthode de Newton-Raphson

La méthode de Newton-Raphsone est une implémentation itérative pour prédire la racine R d'une fonction quelconque f(x). Nous supposons dans un premier temps que $x_0 = R$ est la racine de la fonction qui satisfait la condition $\frac{f(x_0)}{f'(x_0)} = h$, où h est la précision de la méthode. Si cette condition n'est pas satisfaite, une nouvelle estimation x_1 est produite telle que :

$$x_1 = x_0 - \frac{f(x_0)}{f'(x_0)} \tag{D.1}$$

où f'(x) est la dérivée de f(x), x_1 et x_0 sont deux valeurs consécutives.

La racine de la méthode est déterminée à partir du processus itératif qui est répété autant de fois que nécessaire jusqu'à atteindre la précision souhaitée. La généralisation de la méthode s'écrit donc :

$$x_{j+1} = x_j - \frac{f(x_j)}{f'(x_j)}$$
 (D.2)

Annexe E

Méthode du point fixe

La méthode du point fixe est une méthode de résolution des équations non linéaires. Soit f(x) une fonction pour laquelle un schéma itératif d'une suite convergente vers un point fixe x est déterminée pour satisfaire la relation f(x) = 0 [125].

Dans cette méthodes, une suite itérative x_n est construite à partir de x_0 selon les étapes décrite par (E.1). Dans cette itération, on suppose que g(x) = x est l'équivalent de la fonction f(x) = 0.

$$x_{1} = g(x_{0})$$

$$x_{2} = g(x_{1})$$

$$\dots$$

$$(E.1)$$

$$\dots$$

$$x_{n+1} = g(x_{n})$$

La méthode converge vers un point fixe x, qui représente, la solution de g(x).

Annexe F

Fabrication du GSAM

Nous décrivons ici un procédé de fabrication de graphène intégré dans une cavité de Fabry-Pérot, la structure utilisée dans notre étude est identique à celle donnée dans [124]. Le réseau de Bragg est constitué de 4 couches de séléniure de plomb polycristallin PbSe et 3 couches de fluorure de baryum BaF_2 . Chaque couche est d'épaisseur égale au quart de la longueur d'onde dans le milieu. Le réseau de Bragg et le graphène sont séparés par une couche de SiO_2 . La figure F.1 illustre les étapes de fabrication du GSAM, dans lesquelles :

- Etape (A) : consiste en la préparation du réseau de Bragg PbSe/BaF₂ déposé sur un substrat de silicium par la méthode de dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD : Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition) [135].
- Etape (B) : une couche de SiO₂ est déposée sur le réseau de Bargg par la technique CVD.
- Etape (c) : dépôt de la couche de graphène sur une feuille de Cu par CVD et ensuite le graphène est transféré sur le réseau de Bragg [125]. Etand donnée que la couche de graphène est l'échelle atomique, il est difficile de l'intégrer dans la cavité Fabry-Pérot sans avoir des défauts dans le réseau de graphène au cours du procédé. Ainsi, une couche protectrice de 20 nm de Si_3N_4 est déposée [135] dans un premier temps.
- Etape (D) : dépôt de la couche de SiO₂ sur le graphène pour séparer le GSAM de la facette du QCL.



FIGURE F.1 – Etapes de fabrication du GSAM.

Résumé

Le verrouillage de modes passif des lasers à cascade quantique (QCL) moyen infrarouge reste un défi à relever en raison du temps de relaxation rapide du gain. L'utilisation d'un absorbant saturable conventionnel tel que les miroirs absorbants saturables semiconducteurs est inefficace. La technique de verrouillage de modes actif des QCLs moyen infrarouge est la méthode de génération des impulsions ultra brèves la plus efficace. Cependant, cette technique est fortement affectée par le niveau de courant de polarisation et l'amplitude du signal injecté en raison de l'effet du spatial hole burning (SHB). Dans cette thèse, nous avons démontré la faisabilité du verrouillage de modes passif de QCLs moyen infrarouge en intégrant une couche de graphène utilisé comme un absorbant saturable. L'ajout d'un miroir de haute réflectivité induisant un champ électrique plus fort dans la cavité a permis d'améliorer le verrouillage de modes. La dynamique du QCL a été modélisée avec les équations de Maxwell-Bloch pour un atome à deux niveaux et celle du graphène avec l'équation de Maxwell-Ampère en introduisant une conductivité non-linéaire. La résolution de ces équations a été effectuée par la méthode de différences finies dans le domaine temporel (FDTD). Les résultats de simulation ont montré la génération des impulsions isolées avec une larguer à mi-hauteur de 56.7 fs et que le verrouillage de modes reste stable pour un courant de polarisation élève.

Abstract

Passive modelocking of mid-infrared (QCL) quantum cascade lasers remains a challenge due to the fast gain recovery time. The use of a conventional saturable absorber such as Semiconductor Saturable Absorber Mirrors (SESAM) is inefficient. Active mode-locking of QCLs in the mid-infrared is the most efficient technique for generating ultrashort pulses. However, this technique is strongly affected by the injection current and the power of the injected RF signal due to the spatial hole burning (SHB) effect. In this work, we demonstrate the capability of isolated pulses generation by integrating a single-layer graphene to the QCL cavity. The saturable absorption of graphene is exploited here. The highly reflective graphene mirror is also studied to increase the internal electric field to enhance the performance. QCL dynamics are modeled with the Maxwell-Bloch equations for a two-level atom approximation and graphene is considered with nonlinear conductivity in the Maxwell-Ampère equation. These equations are solved using the Finite-Difference Time-Domain (FDTD) method. The simulation results showed the generation of isolated pulses with a width of 56.7 fs and the modelocking remains stable for high current injection.

Bibliographie

- K. RF et S. RA, « Possibility of the amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice, » Sov Phys Semicond, t. 5, nº 4, p. 707-709, 1971.
- [2] J. FAIST et al., « Quantum cascade laser : Temperature dependence of the performance characteristics and high T 0 operation, » Appl. Phys. Lett., t. 65, n° 23, p. 2901-2903, déc. 1994. DOI : 10.1063/1.112524.
- C. Y. WANG et al., « Mode-locked pulses from mid-infrared Quantum Cascade Lasers, » Opt. Express, t. 17, nº 15, p. 12929-12943, juill. 2009. DOI: 10.1364/ OE.17.012929.
- [4] R. W. ZIOLKOWSKI, J. M. ARNOLD et D. M. GOGNY, « Ultrafast pulse interactions with two-level atoms, » *Phys. Rev. A*, t. 52, n° 4, p. 3082-3094, oct. 1995.
 DOI: 10.1103/PhysRevA.52.3082.
- [5] V.-M. GKORTSAS et al., « Dynamics of actively mode-locked Quantum Cascade Lasers, » Opt. Express, t. 18, nº 13, p. 13616, juin 2010. DOI : 10.1364/0E.18.
 013616.
- [6] M. A. TALUKDER et C. R. MENYUK, « Quantum coherent saturable absorption for mid-infrared ultra-short pulses, » *Opt. Express*, t. 22, nº 13, p. 15608, 2014.
 DOI: 10.1364/oe.22.015608.
- [7] E. F. J. RING, « The discovery of infrared radiation in 1800, » The Imaging Science Journal, t. 48, nº 1, p. 1-8, 6 jan. 2000. DOI : 10.1080/13682199.2000.
 11784339.

- [8] V. ZÉNINARI et al., « Widely-Tunable Quantum Cascade-Based Sources for the Development of Optical Gas Sensors, » Sensors, t. 20, n° 22, p. 6650, nov. 2020.
- [9] A. SCHWAIGHOFER, M. BRANDSTETTER et B. LENDL, « Quantum cascade lasers (QCLs) in biomedical spectroscopy, » *Chem. Soc. Rev.*, t. 46, nº 19, p. 5903-5924, 2017. DOI : 10.1039/C7CS00403F.
- [10] T. HEMATI et B. WENG, « The Mid-Infrared Photonic Crystals for Gas Sensing Applications, » Photonic Crystals - A Glimpse of the Current Research Trends, 2019.
- [11] J. VK, « Free space optical communication : laser sources, modulation schemes and detection techniques, » International Conference on Telecommu- nication and Networking, nº March 2018, 2013.
- [12] F. NEELE, « Two-colour infrared missile warning sensors Filip, » S. H. WYATT,
 éd., t. 5787, 10 mai 2005, p. 134-145. DOI : 10.1117/12.603391.
- T. H. MAIMAN, « Stimulated Optical Radiation in Ruby, » Nature, t. 187, nº 4736, p. 493-494, août 1960. DOI : 10.1038/187493a0.
- [14] H. CHOI et al., « Gain Recovery Dynamics and Photon-Driven Transport in Quantum Cascade Lasers, » *Physical Review Letters*, t. 100, nº 16, p. 167 401, 24 avr. 2008. DOI : 10.1103/PhysRevLett.100.167401.
- [15] H. CHOI et al., « Femtosecond dynamics of resonant tunneling and superlattice relaxation in quantum cascade lasers, » Applied Physics Letters, t. 92, nº 12, p. 122 114, 24 mars 2008. DOI : 10.1063/1.2898518.
- [16] J. FAIST, Quantum Cascade Lasers. Oxford University Press, mars 2013, t. 15,
 p. 583-605. DOI : 10.1093/acprof:oso/9780198528241.001.0001.
- [17] J. FAIST, F. CAPASSO, D. L. SIVCO, C. SIRTORI, A. L. HUTCHINSON et A. Y. CHO, « Quantum Cascade Laser, » *Science*, t. 264, nº 5158, p. 553-556, 22 avr. 1994. DOI : 10.1126/science.264.5158.553.
- [18] A. CHO, « Advances in molecular beam epitaxy (MBE), » Journal of Crystal Growth, t. 111, nº 1-4, p. 1-13, mai 1991. DOI : 10.1016/0022-0248(91)90938-2.

- [19] J. FAIST et al., « High power mid-infrared (λ ~ 5μm) quantum cascade lasers operating above room temperature, » Applied Physics Letters, t. 68, n° 26, p. 3680-3682, 24 juin 1996. DOI : 10.1063/1.115741.
- [20] J. FAIST et al., « Distributed feedback quantum cascade lasers, » Applied Physics Letters, t. 70, n° 20, p. 2670-2672, 19 mai 1997. DOI : 10.1063/1.119208.
- [21] C. SIRTORI et al., « GaAs/AlxGa1-xAs quantum cascade lasers, » Applied Physics Letters, t. 73, nº 24, p. 3486-3488, 14 déc. 1998. DOI : 10.1063/1.122812.
- [22] J. FAIST, F. CAPASSO, D. L. SIVCO, A. L. HUTCHINSON, S.-N. G. CHU et A. Y. CHO, « Short wavelength (λ ~ 3.4µm) quantum cascade laser based on strained compensated InGaAs/AlInAs, » Applied Physics Letters, t. 72, n° 6, p. 680-682, 9 fév. 1998. DOI : 10.1063/1.120843.
- [23] R. COLOMBELLI et al., « Far-infrared surface-plasmon quantum-cascade lasers at 21.5 μm and 24 μm wavelengths, » Applied Physics Letters, t. 78, n° 18, p. 2620-2622, 30 avr. 2001. DOI : 10.1063/1.1367304.
- [24] M. BECK, « Continuous Wave Operation of a Mid-Infrared Semiconductor Laser at Room Temperature, » Science, t. 295, nº 5553, p. 301-305, 11 jan. 2002. DOI : 10.1126/science.1066408.
- [25] F. WANG, S. SLIVKEN, D. H. WU et M. RAZEGHI, « Room temperature quantum cascade lasers with 22% wall plug efficiency in continuous-wave operation, » Opt. Express, t. 28, nº 12, p. 17532-17538, juin 2020. DOI : 10.1364/0E.394916.
- [26] C. GMACHL, F. CAPASSO, D. L. SIVCO et A. Y. CHO, « Recent progress in quantum cascade lasers and applications, » *Reports on Progress in Physics*, t. 64, nº 11, p. 1533-1601, 1^{er} nov. 2001. DOI : 10.1088/0034-4885/64/11/204.
- [27] I. I. ZASAVITSKII, « Active-region designs in quantum cascade lasers, » Quantum Electron., t. 42, nº 10, p. 863-873, oct. 2012. DOI: 10.1070/QE2012v042n10ABEH014910.
- [28] G. SCAMARCIO, « High-Power Infrared (8-Micrometer Wavelength) Superlattice Lasers, » Science, t. 276, nº 5313, p. 773-776, 2 mai 1997. DOI : 10.1126/ science.276.5313.773.

- [29] J. FAIST, M. BECK, T. AELLEN et E. GINI, « Quantum-cascade lasers based on a bound-to-continuum transition, » *Applied Physics Letters*, t. 78, nº 2, p. 147-149, 8 jan. 2001. DOI : 10.1063/1.1339843.
- [30] J. FAIST, D. HOFSTETTER, M. BECK, T. AELLEN, M. ROCHAT et S. BLASER,
 « Bound-to-continuum and two-phonon resonance, quantum-cascade lasers for high duty cycle, high-temperature operation, » *IEEE Journal of Quantum Electronics*, t. 38, nº 6, p. 533-546, juin 2002. DOI : 10.1109/JQE.2002.1005404.
- [31] A. WITTMANN, Y. BONETTI, J. FAIST, E. GINI et M. GIOVANNINI, « Intersubband linewidths in quantum cascade laser designs, » Appl. Phys. Lett., t. 93, nº 14, p. 141 103, oct. 2008. DOI : 10.1063/1.2993212.
- [32] P. GUTOWSKI et al., « MBE growth of strain-compensated InGaAs/InAlAs/InP quantum cascade lasers, » Journal of Crystal Growth, t. 466, p. 22-29, mai 2017.
 DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2017.02.031.
- [33] A. CHO et J. ARTHUR, « Molecular beam epitaxy, » Progress in Solid State Chemistry, t. 10, n° PART 3, p. 157-191, jan. 1975. DOI : 10.1016/0079-6786(75)90005-9.
- [34] L. H. LI, J. X. ZHU, L. CHEN, A. G. DAVIES et E. H. LINFIELD, « The MBE growth and optimization of high performance terahertz frequency quantum cascade lasers, » *Optics Express*, t. 23, n° 3, p. 2720, 9 fév. 2015. DOI : 10.1364/ OE.23.002720.
- [35] J. S. ROBERTS et al., « Quantum cascade lasers grown by metalorganic vapor phase epitaxy, » Applied Physics Letters, t. 82, nº 24, p. 4221-4223, 16 juin 2003.
 DOI: 10.1063/1.1583858.
- [36] T. KUECH, « Recent advances in metal-organic vapor phase epitaxy, » Proceedings of the IEEE, t. 80, nº 10, p. 1609-1624, 1992. DOI: 10.1109/5.168669.
- [37] A. BISMUTO, « Mid-infrared quantum cascade lasers : active medium and waveguide, » 2011. DOI : 10.3929/ethz-a-006716259.
- [38] U. KELLER, « Recent developments in compact ultrafast lasers, » Nature, t. 424, nº 6950, p. 831-838, août 2003. DOI : 10.1038/nature01938.

- [39] M. DIDOMENICO, « Small-Signal Analysis of Internal (Coupling-Type) Modulation of Lasers, » Journal of Applied Physics, t. 35, nº 10, p. 2870-2876, 1964.
 DOI: 10.1063/1.1713121.
- [40] R. HARRACH et G. KACHEN, « Pulse Trains from Mode-Locked Lasers, » Journal of Applied Physics, t. 39, nº 5, p. 2482-2483, 1968. DOI : 10.1063/1.1656590.
- [41] H. J. EICHLER et al., « Acousto-optic mode locking of 3-μmEr lasers, » Applied Optics, t. 31, n° 24, p. 4909, 20 août 1992. DOI : 10.1364/A0.31.004909.
- [42] B. PELZ, M. K. SCHOTT et M. H. NIEMZ, « Electro-optic mode locking of an erbium :YAG laser with a rf resonance transformer, » *Applied Optics*, t. 33, n° 3, p. 364, 20 jan. 1994. DOI : 10.1364/A0.33.000364.
- [43] G. NEW, « Mode-locking of quasi-continuous lasers, » Optics Communications,
 t. 6, n° 2, p. 188-192, 1972. DOI : https://doi.org/10.1016/0030-4018(72)
 90225-8.
- [44] H. A. HAUS, « Theory of mode locking with a fast saturable absorber, » Journal of Applied Physics, t. 46, nº 7, p. 3049-3058, juill. 1975. DOI : 10.1063/1.321997.
- [45] F. X. KÄRTNER et U. KELLER, « Stabilization of solitonlike pulses with a slow saturable absorber, » Opt. Lett., t. 20, nº 1, p. 16-18, jan. 1995. DOI : 10.1364/0L.20.000016.
- [46] R. MONCORGE, « Matériaux absorbants saturables passifs pour lasers à impulsions brèves, » Techniques de l'ingénieur Optique Photonique, t. base documentaire : TIP520WEB. N° ref. article : e6362, 2019. DOI : 10.51257/av1-e6362.
- [47] G. AGRAWAL et N. OLSSON, « Self-phase modulation and spectral broadening of optical pulses in semiconductor laser amplifiers, » *IEEE Journal of Quantum Electronics*, t. 25, nº 11, p. 2297-2306, 1989. DOI : 10.1109/3.42059.
- [48] E. R. THOEN et al., « Two-photon absorption in semiconductor saturable absorber mirrors, » Applied Physics Letters, t. 74, nº 26, p. 3927-3929, 1999. DOI: 10. 1063/1.124226.

- [49] H. HAUS, « Mode-locking of lasers, » IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, t. 6, nº 6, p. 1173-1185, nov. 2000. DOI : 10.1109/2944.902165.
- [50] U. KELLER et al., « Semiconductor saturable absorber mirrors (SESAM's) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers, » *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, t. 2, nº 3, p. 435-453, 1996. DOI: 10.1109/2944.571743.
- [51] I. D. JUNG, L. R. BROVELLI, M. KAMP, U. KELLER et M. MOSER, « Scaling of the antiresonant Fabry–Perot saturable absorber design toward a thin saturable absorber, » *Opt. Lett.*, t. 20, nº 14, p. 1559-1561, juill. 1995. DOI : 10.1364/OL. 20.001559.
- [52] C. OSHIMA et A. NAGASHIMA, « Ultra-thin epitaxial films of graphite and hexagonal boron nitride on solid surfaces, » Journal of Physics : Condensed Matter, t. 9, nº 1, p. 1-20, jan. 1997. DOI : 10.1088/0953-8984/9/1/004.
- [53] K. S. NOVOSELOV, « Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films, » Science, t. 306, nº 5696, p. 666-669, 22 oct. 2004. DOI : 10.1126/science. 1102896.
- [54] G. ZHU et al., « Graphene Mode-Locked Fiber Laser at 2.8 μ m, » *IEEE Photonics Technology Letters*, t. 28, n° 1, p. 7-10, 1^{er} jan. 2016. DOI : 10.1109/LPT.2015. 2478836.
- [55] Q. BAO et al., « Atomic-Layer Graphene as a Saturable Absorber for Ultrafast Pulsed Lasers, » Advanced Functional Materials, t. 19, nº 19, p. 3077-3083, 9 oct.
 2009. DOI: 10.1002/adfm.200901007.
- [56] A. A. LAGATSKY et al., « 2 μm solid-state laser mode-locked by single-layer graphene, » Applied Physics Letters, t. 102, n° 1, p. 013113, 7 jan. 2013. DOI : 10.1063/1.4773990.
- [57] F. CANBAZ, N. KAKENOV, C. KOCABAS, U. DEMIRBAS et A. SENNAROGLU,
 « Generation of sub-20-fs pulses from a graphene mode-locked laser, » Optics Express, t. 25, n° 3, p. 2834, 6 fév. 2017. DOI : 10.1364/0E.25.002834.

- [58] A. H. CASTRO NETO, F. GUINEA, N. M. R. PERES, K. S. NOVOSELOV et A. K. GEIM, « The electronic properties of graphene, » *Rev. Mod. Phys.*, t. 81, p. 109-162, 1 jan. 2009. DOI : 10.1103/RevModPhys.81.109.
- [59] A. B. KUZMENKO, E. van HEUMEN, F. CARBONE et D. van der MAREL,
 « Universal Optical Conductance of Graphite, » *Phys. Rev. Lett.*, t. 100, p. 117 401,
 11 mars 2008. DOI : 10.1103/PhysRevLett.100.117401.
- [60] Q. BAO et al., « Monolayer graphene as a saturable absorber in a mode-locked laser, » Nano Research, nº 3, p. 297-307, mars 2011. DOI : 10.1007/s12274-010-0082-9.
- [61] G. ZHU, X. ZHU, K. BALAKRISHNAN, R. A. NORWOOD et N. PEYGHAMBARIAN,
 « Fe²⁺ : ZnSe and graphene Q-switched singly Ho³⁺-doped ZBLAN fiber lasers at 3 μm, » Optical Materials Express, t. 3, n° 9, p. 1365, sept. 2013. DOI : 10.1364/OME.3.001365.
- [62] M. YI et Z. SHEN, « A review on mechanical exfoliation for the scalable production of graphene, » J. Mater. Chem. A, t. 3, p. 11700-11715, 22 2015. DOI: 10.1039/C5TA00252D.
- [63] B. A. GARETZ, « The Kerr effect, » Optics News, t. 12, nº 10, p. 28-31, oct.
 1986. DOI: 10.1364/ON.12.10.000028.
- [64] D. E. SPENCE, P. N. KEAN et W. SIBBETT, « 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti :sapphire laser, » Opt. Lett., t. 16, n° 1, p. 42, jan. 1991.
 DOI: 10.1364/0L.16.000042.
- [65] R. SZIPÖCS, K. FERENCZ, C. SPIELMANN et F. KRAUSZ, « Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers, » Opt. Lett., t. 19, n° 3, p. 201-203, fév. 1994. DOI: 10.1364/0L.19.000201.
- [66] U. KELLER, « Ultrafast solid-state lasers, » Prog. Opt., t. 46, nº C, p. 1-115, 2004. DOI : 10.1016/S0079-6638(03)46001-0.
- [67] F. SALIN, J. SQUIER et M. PICHÉ, « Mode locking of Ti :Al₂O₃ lasers and self-focusing : a Gaussian approximation, » Opt. Lett., t. 16, nº 21, p. 1674-1676, nov. 1991. DOI : 10.1364/OL.16.001674.
- [68] M. PICHÉ et F. SALIN, « Self-mode locking of solid-state lasers without apertures, » Opt. Lett., t. 18, nº 13, p. 1041-1043, juill. 1993. DOI : 10.1364/0L.18. 001041.
- [69] R. L. FORK, O. E. MARTINEZ et J. P. GORDON, « Negative dispersion using pairs of prisms, » *Opt. Lett.*, t. 9, nº 5, p. 150-152, août 1984. DOI : 10.1364/0L. 9.000150.
- [70] P. WIEWIOR, « Group velocity dispersion compensation in femtosecond Ti :sapphire laser, » in *Refractometry*, M. PLUTA et M. SZYJER, éd., International Society for Optics et Photonics, t. 2208, SPIE, 1995, p. 11-17. DOI : 10.1117/ 12.213181.
- S. L. MCCALL et E. L. HAHN, « Self-Induced Transparency, » Phys. Rev., t. 183, nº 2, p. 457-485, juill. 1969. DOI : 10.1103/PhysRev.183.457.
- G. L. LAMB, « Analytical Descriptions of Ultrashort Optical Pulse Propagation in a Resonant Medium, » *Reviews of Modern Physics*, t. 43, n° 2, p. 99-124, 1^{er} avr. 1971. DOI: 10.1103/RevModPhys.43.99.
- [73] V. V. KOZLOV, « Self-induced transparency soliton laser via coherent mode locking, » Phys. Rev. A, t. 56, nº 2, p. 1607-1612, août 1997. DOI: 10.1103/ PhysRevA.56.1607.
- M. V. ARKHIPOV, A. A. SHIMKO, N. N. ROSANOV, I. BABUSHKIN et R. M. ARKHIPOV, « Self-induced-transparency mode locking in a Ti :sapphire laser with an intracavity rubidium cell, » *Phys. Rev. A*, t. 101, nº 1, p. 13803, 2020. DOI: 10.1103/PhysRevA.101.013803.
- [75] M. A. TALUKDER et C. R. MENYUK, « Analytical and computational study of self-induced transparency mode locking in quantum cascade lasers, » *Phys. Rev.* A, t. 79, n° 6, p. 063841, juin 2009. DOI : 10.1103/PhysRevA.79.063841.
- [76] L. ALLEN et J. EBERLY, Optical Resonance and Two-Level Atoms (Dover Books on Physics). Dover Publications, 2012.
- [77] A. G. FOX et P. W. SMITH, « Mode-Locked Laser and the 180° Pulse, » Phys.
 Rev. Lett., t. 18, p. 826-828, 20 août 1967. DOI: 10.1103/PhysRevLett.18.826.

- [78] M. A. TALUKDER et C. R. MENYUK, « Self-induced transparency modelocking of quantum cascade lasers in the presence of saturable nonlinearity and group velocity dispersion, » *Optics Express*, t. 18, n° 6, p. 5639, mars 2010. DOI : 10.1364/0E.18.005639.
- [79] H. RISKEN et K. NUMMEDAL, « Instability of off resonance modes in lasers, » *Physics Letters A*, t. 26, nº 7, p. 275-276, fév. 1968. DOI : 10.1016/0375-9601(68)90646-4.
- [80] H. RISKEN et K. NUMMEDAL, « Self-Pulsing in Lasers, » Journal of Applied Physics, t. 39, n° 10, p. 4662-4672, sept. 1968. DOI : 10.1063/1.1655817.
- [81] R. GRAHAM et H. HAKEN, « Quantum theory of light propagation in a fluctuating laser-active medium, » Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei, t. 213, n° 5, p. 420-450, 1^{er} oct. 1968. DOI : 10.1007/BF01405384.
- [82] N. VUKOVIC, J. RADOVANOVIC, V. MILANOVIC et D. L. BOIKO, « Low-threshold RNGH instabilities in quantum cascade lasers, » 2016. eprint : 1601.03212.
- [83] L. W. HILLMAN, J. KRASIŃSKI, R. W. BOYD et C. R. STROUD, « Observation of Higher Order Dynamical States of a Homogeneously Broadened Laser, » *Phys. Rev. Lett.*, t. 52, p. 1605-1608, 18 avr. 1984. DOI : 10.1103/PhysRevLett.52. 1605.
- [84] E. M. PESSINA, G. BONFRATE, F. FONTANA et L. A. LUGIATO, « Experimental observation of the Risken-Nummedal-Graham-Haken multimode laser instability, » *Phys. Rev. A*, t. 56, p. 4086-4093, 5 nov. 1997. DOI : 10.1103/PhysRevA. 56.4086.
- [85] E. ROLDÁN, G. J. de VALCÁRCEL, J. F. URCHUEGÚA et J. M. GUERRA,
 « Observability of the Risken–Nummedal–Graham–Haken instability in Nd :YAG lasers, » J. Opt. Soc. Am. B, t. 20, nº 5, p. 816-824, mai 2003. DOI : 10.1364/JOSAB.20.000816.
- [86] C. Y. WANG et al., « Coherent instabilities in a semiconductor laser with fast gain recovery, » *Physical Review A*, t. 75, n° 3, p. 031802, 30 mars 2007. DOI : 10.1103/PhysRevA.75.031802.

- [87] A. GORDON et al., « Multimode regimes in quantum cascade lasers : From coherent instabilities to spatial hole burning, » *Physical Review A*, t. 77, n° 5, p. 053 804, 7 mai 2008. DOI : 10.1103/PhysRevA.77.053804.
- [88] F. P. MEZZAPESA et al., « Terahertz Frequency Combs Exploiting an On-Chip, Solution-Processed, Graphene-Quantum Cascade Laser Coupled-Cavity, » ACS Photonics, t. 7, nº 12, p. 3489-3498, 2020. DOI : 10.1021/acsphotonics. 0c01523.
- [89] J. R. FREEMAN et al., « Laser-seeding dynamics with few-cycle pulses : Maxwell-Bloch finite-difference time-domain simulations of terahertz quantum cascade lasers, » *Phys. Rev. A*, t. 87, nº 6, p. 063 817, juin 2013. DOI : 10.1103/PhysRevA. 87.063817.
- [90] « Effect of spatial hole burning in a mode-locked diode end-pumped Nd :YAG laser, » Opt. Lett., t. 20, nº 1, p. 58, jan. 1995.
- [91] J. FAIST, F. CAPASSO, C. SIRTORI, D. L. SIVCO, A. L. HUTCHINSON et A. Y. CHO, « Laser action by tuning the oscillator strength, » *Nature*, t. 387, n° 6635, p. 777-782, juin 1997. DOI : 10.1038/42872.
- [92] K. NAGANUMA, K. MOGI et H. YAMADA, « General method for ultrashort light pulse chirp measurement, » *IEEE Journal of Quantum Electronics*, t. 25, n° 6, p. 1225-1233, 1989. DOI : 10.1109/3.29252.
- [93] D. G. REVIN, M. HEMINGWAY, Y. WANG, J. W. COCKBURN et A. BELYANIN, « Active mode locking of quantum cascade lasers in an external ring cavity, » *Nature Communications*, t. 7, nº 1, p. 11440, sept. 2016. DOI : 10.1038/ ncomms11440.
- [94] E. P. IPPEN, « Principles of passive mode locking, » Applied Physics B Laser and Optics, t. 58, nº 3, p. 159-170, mars 1994. DOI : 10.1007/BF01081309.
- [95] K. KASHIWAGI et S. YAMASHIT, « Optical Deposition of Carbon Nanotubes for Fiber-based Device Fabrication, » in *Frontiers in Guided Wave Optics and Optoelectronics*, tourism, InTech, 1^{er} fév. 2010, p. 13. DOI : 10.5772/39546.

- [96] V. A. ANTONOV et al., « Switching on and off the Risken-Nummedal-Graham-Haken instability in quantum cascade lasers, » arXiv, p. 1-31, 29 nov. 2017.
- [97] T. S. MANSURIPUR et al., « Single-mode instability in standing-wave lasers : The quantum cascade laser as a self-pumped parametric oscillator, » *Physical Review A*, t. 94, p. 063 807, 2016.
- [98] N. N. VUKOVIĆ, J. RADOVANOVIĆ, V. MILANOVIĆ et D. L. BOIKO, « Low-Threshold RNGH Instabilities in Quantum Cascade Lasers, » *IEEE Journal* of Selected Topics in Quantum Electronics, t. 23, n° 6, p. 1-52, 2017. DOI : 10.1109/JSTQE.2017.2699139.
- [99] J. BAI et D. S. CITRIN, « Enhancement of optical Kerr effect in quantum-cascade lasers with multiple resonance levels, » *Optics Express*, t. 16, n° 17, p. 12599, 18 août 2008. DOI : 10.1364/0E.16.012599.
- [100] H. CHOI et al., « Time-domain upconversion measurements of group-velocity dispersion in quantum cascade lasers, » Opt. Express, t. 15, nº 24, p. 15898-15907, nov. 2007. DOI : 10.1364/0E.15.015898.
- [101] R. ARKHIPOV, M. ARKHIPOV et I. BABUSHKIN, « Self-starting stable coherent mode-locking in a two-section laser, » Optics Communications, t. 361, n° c, p. 73-78, fév. 2016. DOI : 10.1016/j.optcom.2015.10.030. eprint : 1410.6667.
- [102] R. ARKHIPOV et al., « Hybrid Mode Locking in Semiconductor Lasers : Simulations, Analysis, and Experiments, » *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, t. 19, nº 4, p. 1100 208-1100 208, juill. 2013. DOI : 10.1109/JSTQE. 2012.2228633.
- [103] H. SCHMECKEBIER, G. FIOL, C. MEUER, D. ARSENIJEVIĆ et D. BIMBERG,
 « Complete pulse characterization of quantum dot mode-locked lasers suitable for optical communication up to 160 Gbit/s, » *Optics Express*, t. 18, nº 4, p. 3415, 2010. DOI : 10.1364/oe.18.003415.
- [104] M. BURGESS, R. FEDOSEJEVS, P. JAANIMAGI et M. RICHARDSON, « Activepassive mode locking of a flashlamp-pumped dye laser, » *IEEE Journal of*

Quantum Electronics, t. 17, n° 4, p. 496-500, avr. 1981. DOI : 10.1109/JQE. 1981.1071135.

- [105] H. J. CARMICHAEL et M. O. SCULLY, « Statistical Methods in Quantum Optics 1 : Master Equations and Fokker-Planck Equations, » *Physics Today*, t. 53, n° 3, p. 78-80, mars 2000. DOI : 10.1063/1.883009.
- [106] G. J. de VALCARCEL, E. ROLDAN et F. PRATI, « Semiclassical Theory of Amplification and Lasing, » Journal of the Optical Society of America B, t. 19, n^o 9, p. 2215, 9 mai 2006.
- [107] D. G. JONES, « Principles of Laser Spectroscopy and Quantum Optics, by Paul R. Berman and Vladimir S. Malinovsky, » *Contemporary Physics*, t. 52, n° 6, p. 621-622, nov. 2011. DOI : 10.1080/00107514.2011.603436.
- [108] R. W. BOYD et B. R. MASTERS, « Nonlinear Optics, Third Edition, » Journal of Biomedical Optics, t. 14, nº 2, p. 029 902, 2009. DOI : 10.1117/1.3115345.
- B. BIDÉGARAY, « Time discretizations for Maxwell-Bloch equations, » Numer. Methods Partial Differ. Equ., t. 19, n° 3, p. 284-300, août 2003. DOI : 10.1002/ num.10046.
- [110] Electromagnetic Simulation Using the FDTD Method. IEEE, 2000. DOI: 10. 1109/9780470544518.
- [111] K. YEE, « Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media, » *IEEE Trans. Antennas Propag.*, t. 14, n^o 3, p. 302-307, août 1966. DOI : 10.1109/TAP.1966.1138693.
- [112] A. TAFLOVE, S. C. HAGNESS et M. PIKET-MAY, « Computational Electromagnetics : The Finite-Difference Time-Domain Method, » in *Electr. Eng. Handb*. Elsevier, 2005, p. 629-670. DOI : 10.1016/B978-012170960-0/50046-3.
- [113] G. MUR, « Absorbing Boundary Conditions for the Finite-Difference Approximation of the Time-Domain Electromagnetic-Field Equations, » *IEEE Trans. Electromagn. Compat.*, t. EMC-23, n° 4, p. 377-382, nov. 1981. DOI : 10.1109/ TEMC.1981.303970.

- [114] H. SCHNEIDER, O. DRACHENKO, S. WINNERL, M. HELM, T. MAIER et M. WALTHER, « Autocorrelation measurements of free-electron laser radiation using a two-photon QWIP, » *Infrared Phys. Technol.*, t. 50, n° 2-3, p. 95-99, avr. 2007. DOI: 10.1016/j.infrared.2006.10.028.
- [115] Y. WANG et A. BELYANIN, « Active mode-locking of mid-infrared quantum cascade lasers with short gain recovery time, » Opt. Express, t. 23, nº 4, p. 4173, 2015. DOI: 10.1364/oe.23.004173.
- [116] P. TZENOV et al., « Passive and hybrid mode locking in multi-section terahertz quantum cascade lasers, » New J. Phys., t. 20, nº 5, p. 053 055, août 2018. DOI : 10.1088/1367-2630/aac12a. eprint : 1710.00739.
- [117] A. GALÁNTAI, « The theory of Newton's method, » Journal of Computational and Applied Mathematics, t. 124, nº 1-2, p. 25-44, déc. 2000. DOI : 10.1016/S0377-0427(00)00435-0.
- [118] A. K. WÓJCIK, P. MALARA, R. BLANCHARD, T. S. MANSURIPUR, F. CAPASSO et A. BELYANIN, « Generation of picosecond pulses and frequency combs in actively mode locked external ring cavity quantum cascade lasers, » Appl. Phys. Lett., t. 103, n° 23, p. 231 102, déc. 2013. DOI : 10.1063/1.4838275.
- [119] S. S. SHIMU, A. DOCHERTY, M. A. TALUKDER et C. R. MENYUK, « Suppression of spatial hole burning and pulse stabilization for actively modelocked quantum cascade lasers using quantum coherent absorption, » J. Appl. Phys., t. 113, n° 5, p. 053 106, fév. 2013. DOI : 10.1063/1.4790145.
- [120] D. BRIDA et al., « Ultrafast collinear scattering and carrier multiplication in graphene, » Nat. Commun., t. 4, nº 8, 2013. DOI : 10.1038/ncomms2987. eprint : 1209.5729.
- [121] F. BONACCORSO, Z. SUN, T. HASAN et A. C. FERRARI, « Graphene photonics and optoelectronics, » Nat. Photonics, t. 4, nº 9, p. 611-622, 2010. DOI : 10. 1038/nphoton.2010.186. arXiv : 1006.4854.

- [122] F. BONACCORSO, A. LOMBARDO, T. HASAN, Z. SUN, L. COLOMBO et A. C. FERRARI, « Production and processing of graphene and 2d crystals, » *Materials Today*, t. 15, nº 12, p. 564-589, 2012. DOI: https://doi.org/10.1016/S1369-7021(13)70014-2.
- [123] S. YAMASHITA, « A Tutorial on Nonlinear Photonic Applications of Carbon Nanotube and Graphene, » Journal of Lightwave Technology, t. 30, nº 4, p. 427-447, fév. 2012. DOI : 10.1109/JLT.2011.2172574.
- [124] A. MOCK, « Modeling Passive Mode-Locking via Saturable Absorption in Graphene Using the Finite-Difference Time-Domain Method, » IEEE J. Quantum Electron., t. 53, n^o 5, p. 1-10, oct. 2017. DOI : 10.1109/JQE.2017.2732399.
- [125] C. A. ZAUGG et al., « Ultrafast and widely tuneable vertical-external-cavity surface-emitting laser, mode-locked by a graphene-integrated distributed Bragg reflector, » Opt. Express, t. 21, nº 25, p. 31548, déc. 2013. DOI : 10.1364/OE. 21.031548. arXiv : 1310.2132.
- [126] H. LI et al., « Graphene-Coupled Terahertz Semiconductor Lasers for Enhanced Passive Frequency Comb Operation, » t. 6, n° 20, 2019. DOI : 10.1002/advs. 201900460.
- [127] R. R. NAIR et al., « Fine Structure Constant Defines Visual Transparency of Graphene, » Science, t. 320, nº 5881, p. 1308-1308, 6 juin 2008. DOI : 10.1126/ science.1156965.
- [128] Q. BAO et K. P. LOH, « Graphene photonics, plasmonics, and broadband optoelectronic devices, » ACS Nano, t. 6, nº 5, p. 3677-3694, 2012. DOI : 10. 1021/nn300989g.
- [129] F. V. KUSMARTSEV, W. M. WU, M. P. PIERPOINT et K. C. YUNG, « Application of Graphene Within Optoelectronic Devices and Transistors, » nº March 2015, p. 191-221, 2015. DOI: 10.1007/978-981-287-242-5_9. eprint: 1406.0809.
- [130] XIAOHUI LI et al., « Broadband Saturable Absorption of Graphene Oxide Thin Film and Its Application in Pulsed Fiber Lasers, » IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron., t. 20, nº 5, p. 441-447, sept. 2014. DOI: 10.1109/JSTQE.2014.2312952.

- [131] F. T. VASKO, « Saturation of interband absorption in graphene, » *Physical Review* B, t. 82, n° 24, p. 245422, déc. 2010. DOI : 10.1103/PhysRevB.82.245422. arXiv : 1010.2392.
- [132] К. ОКАМОТО, « Preface to the Second Edition, » in Fundamentals of Optical Waveguides (Second Edition), К. ОКАМОТО, éd., Second Edition, Burlington : Academic Press, 2006, р. xv-xvi. DOI : https://doi.org/10.1016/B978-012525096-2/50001-5.
- [133] V. KUMAR, A. KUMAR, D.-J. LEE et S.-S. PARK, « Estimation of Number of Graphene Layers Using Different Methods : A Focused Review, » Materials (Basel)., t. 14, nº 16, p. 4590, août 2021. DOI : 10.3390/ma14164590.
- [134] J. MALONEY et G. SMITH, « The efficient modeling of thin material sheets in the finite-difference time-domain (FDTD) method, » *IEEE Transactions on Antennas* and Propagation, t. 40, p. 323-330, 3 mars 1992. DOI : 10.1109/8.135475.
- [135] L. FANG, G. AUBIN, A. MADOURI et J.-L. OUDAR, « Fast Extinction Ratio Enhancement With a Graphene-Based Device on 1.5 μm Optical Signals, » *IEEE Photonics Technology Letters*, t. 29, n° 13, p. 1082-1084, 2017. DOI : 10.1109/LPT.2017.2702390.